

Pencantuman Foto-UV Akrilat Terfungsian pada Getah Asli Terepoksida sebagai Pengikat dalam Bateri Litium-Ion

(UV-Photografting of Functionalized Acrylates onto Epoxidized Natural Rubber for Use as Binders in Lithium-Ion Batteries)

CHAI KAI LING^{1,2}, JEREMY NG JIAN HAO¹, LIN RULEI³, ZHOU CHANG JI⁴, WONG CHEE SIEN^{4,5} & LEE TIAN KHOON^{1,2,*}

¹*Department of Chemical Science, Faculty of Science and Technology, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

²*Battery Technology Research Group (UKMBATT), Faculty of Science and Technology, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

³*Guoneng (Zhejiang) Energy Development Co., Ltd., Room 504, Building 2, No. 799 Huanzhan East Road, Shangcheng District, Hangzhou, China*

⁴*Zhejiang Province. Zhejiang Casnovo New Materials Co., Ltd. No.1 Zhongke Road, Zhanmao Street, Putuo District, Zhoushan City, Zhejiang Province, China*

⁵*School of Petrochemical Engineering and Environment, Zhejiang Ocean University, No. 1, Haida South Road, Lincheng Street, Dinghai District, Zhoushan City, Zhejiang Province, China*

Diserahkan: 27 Jun 2025/Diterima: 13 November 2025

ABSTRAK

Kajian ini memfokuskan kepada pengubahsuaian terhadap getah asli terepoksida-25% (ENR-25) melalui proses fotopempolimeran menggunakan sinaran UV bersama etilena glikol metil eter akrilat (EGMEA) bagi menghasilkan bahan pengikat baharu berasaskan getah yang dikenali sebagai Poli(EGMEA-g-ENR). ENR-25 dipilih disebabkan sifat elastomer semula jadinya yang fleksibel serta keupayaannya membentuk struktur rangkaian silang yang stabil. EGMEA pula berperanan sebagai penderma kumpulan akrilat yang bersifat polar, yang berpotensi meningkatkan interaksi dengan ion litium dan menambah baik sifat mekanikal serta lekatan pengikat terhadap komposit bahan aktif dalam elektrod. Hasil pencirian menunjukkan bahawa pencantuman EGMEA telah berjaya memperkenalkan kumpulan berfungsi -COOR (ester) ke dalam struktur polimer ENR-25, sekali gus meningkatkan keupayaan penyerapan ion dan sifat elektrokimia. Bahan pengikat Poli(EGMEA-g-ENR) yang dihasilkan menunjukkan rintangan pemindahan cas yang jauh lebih rendah (171.3 Ω) berbanding ENR-25 tulen (16,319.0 Ω). Ujian galvanostatik turut mencatatkan kapasiti nyahcas awal sebanyak 144.43 mAh g⁻¹ dengan kecekapan Coulombik mencapai 96.75%. Secara keseluruhan, hasil kajian ini membuktikan bahawa pengubahsuaian ENR-25 melalui fotopempolimeran dengan EGMEA berpotensi menghasilkan bahan pengikat mesra alam yang berprestasi tinggi untuk aplikasi dalam bateri litium-ion.

Kata kunci: Bahan pengikat; bateri litium-ion; fotopempolimeran UV; prestasi elektrokimia; Poli(EGMEA-g-ENR)

ABSTRACT

This study focuses on the modification of 25% epoxidized natural rubber (ENR-25) through a photopolymerization process using UV irradiation in the presence of ethylene glycol methyl ether acrylate (EGMEA), to produce a novel rubber-based binder known as Poly(EGMEA-g-ENR). ENR-25 was selected due to its inherent flexible elastomeric properties and its ability to form a stable crosslinked network structure. EGMEA serves as a donor of polar acrylate groups, which has the potential to enhance interactions with lithium ions and improve the mechanical properties and adhesion of the binder to the active material composite in the electrode. Characterization results showed that the grafting of EGMEA successfully introduced -COOR (ester) functional groups into the ENR-25 polymer structure, thereby enhancing ion absorption capacity and electrochemical performance. The resulting Poly(EGMEA-g-ENR) binder exhibited a significantly lower charge transfer resistance (171.3 Ω) compared to pure ENR-25 (16,319.0 Ω). Galvanostatic tests also recorded an initial discharge capacity of 144.43 mAh g⁻¹ with a Coulombic efficiency of 96.75%. Overall, the findings of this study demonstrate that the modification of ENR-25 via photopolymerization with EGMEA holds great potential for producing a high-performance, environmentally friendly binder material for lithium-ion battery applications.

Keywords: Binder material; electrochemical performance; lithium-ion battery; Poly(EGMEA-g-ENR); UV photopolymerization

PENGENALAN

Bateri litium-ion (LIB) kini menjadi pilihan utama dalam pelbagai aplikasi harian yang melibatkan penyimpanan tenaga, termasuk peranti elektronik mudah alih, kenderaan elektrik dan sistem tenaga boleh diperbaharui (El Kassas et al. 2024; Lee et al. 2019; Pigłowska et al. 2024; Whba et al. 2021). Hal ini demikian kerana LIB menawarkan beberapa kelebihan utama, antaranya: 1) kecekapan pengecasan dan nyahcas yang tinggi ($> 90\%$) (Azaki et al. 2025, 2023; Soontornnon, Kimura & Tominaga 2024; Tang et al. 2022), 2) ketumpatan tenaga yang tinggi (sekitar 300 Wh/kg) (Hasan et al. 2025; Khan et al. 2023; Wu et al. 2020), serta 3) kadar nyahcas sendiri yang rendah ($\sim 2\%$ hingga 5% sebulan) (Liao et al. 2022; Wu, Ho & Chung 2023; Xiao et al. 2022).

Sepanjang dekad yang lalu, teknologi LIB telah mengalami kemajuan pesat dengan peningkatan ketara dalam kapasiti cas dan ketumpatan kuasa. Perkembangan ini penting bagi memenuhi keperluan aplikasi berprestasi tinggi, terutamanya dalam aplikasi aeroangkasa, kenderaan elektrik (EV), kenderaan hibrid elektrik (HEV) dan sistem tenaga boleh diperbaharui seperti bateri hibrid solar. Sektor automotif khususnya, menuntut prestasi lebih tinggi dengan keperluan seperti kitaran cas–nyahcas lebih panjang ($> 1,000$ kitaran), julat suhu operasi luas ($-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ hingga $52\text{ }^{\circ}\text{C}$) serta penurunan kos kepada bawah USD100/kWh menjelang 2030 dengan sasaran sekitar USD80/kWh ($\sim$ RM 380/kWh) (BloombergNEF 2024; Gordon 2022). Kepentingan LIB dalam pembangunan teknologi dan tenaga bersih turut mendapat pengiktirafan global apabila Hadiah Nobel dalam Kimia tahun 2019 dianugerahkan kepada tiga tokoh saintis terkemuka iaitu John B. Goodenough (mendiang), M. Stanley Whittingham dan Akira Yoshino (Royal Swedish Academy of Sciences 2020). Sumbangan mereka dalam pembangunan bahan aktif dan teknologi bateri litium-ion menjadi asas kepada revolusi tenaga boleh diperbaharui dan peranti elektronik moden, seterusnya mempercepatkan inovasi dalam teknologi hijau.

Walaupun bagaimanapun, prestasi sel LIB masih dibatasi oleh beberapa faktor kritikal, terutamanya kemerosotan kapasiti akibat kehilangan bahan aktif dan litium semasa kitaran pengecasan dan nyahcas (Li et al. 2025; Menye, Camara & Dakyo 2025). Salah satu punca utama ialah kemerosotan bahan pengikat polimer dalam elektrod yang telah menyebabkan delaminasi elektrod serta pengurangan hubungan elektrik antara zarah aktif (He et al. 2024; Kumano et al. 2024; Yoon et al. 2024). Walaupun bahan pengikat digunakan dalam kuantiti kecil ($< 10\%$ bt.), ia memainkan peranan penting dalam mengekalkan keutuhan struktur elektrod serta memastikan lekatan yang kukuh antara bahan aktif dan pengumpul arus (Azaki et al. 2023; Dong et al. 2024; Yoon et al. 2024).

Pada masa kini, polivinilidena fluorida (PVDF) merupakan bahan pengikat tahap kemajuan semasa dalam katod kerana kestabilan elektrokimia yang tinggi serta keupayaan lekatan yang baik kepada zarah aktif dan

substrat. Namun, penggunaannya memerlukan pelarut organik toksik seperti N-metil-2-pirolidon (NMP) yang menimbulkan isu keselamatan dan alam sekitar. Tambahan pula, lekatan PVDF bergantung kepada ikatan van der Waals yang lemah. Hal ini boleh menjejaskan kekuatan lekatan jangka panjang serta ketahanan mekanikal elektrod, terutamanya selepas kitaran cas nyahcas berulang. Sehubungan itu, kajian dan pembangunan bahan pengikat alternatif yang berasaskan polimer mesra alam, yang boleh membentuk ikatan kovalen atau rangkaian silang mekanikal yang lebih kukuh diperlukan. Pendekatan ini bukan sahaja dijangka dapat meningkatkan prestasi dan ketahanan bateri litium-ion, malah dapat mengurangkan ketergantungan kepada pelarut organik toksik seperti NMP, menjadikan proses pembuatan bateri lebih selamat dan lestari.

Sehubungan itu, terdapat keperluan mendesak untuk membangunkan bahan pengikat alternatif yang lebih mesra alam, mampu membentuk ikatan kovalen atau interaksi mekanikal yang kukuh serta tidak bergantung kepada pelarut toksik. Antara alternatif lain adalah seperti bahan pengikat berasaskan air (karboksimetil selulosa, poli(asid akrilik) dan natrium alginat) serta pelbagai biopolimer. Dalam konteks ini, getah asli muncul sebagai calon bahan pengikat yang berpotensi disebabkan sifat elastomeriknya. Walau bagaimanapun, getah asli secara semula jadi mempunyai kekuatan mekanikal yang rendah dan bersifat tidak konduksi. Oleh itu, getah asli yang diubah suai secara kimia, seperti getah asli terepoksida dengan $25\text{ mol}\%$ kumpulan epoksida dicadangkan sebagai asas pengikat baharu. ENR-25 menawarkan lekatan yang baik dan bersifat elastomer, manakala etilena glikol metil eter akrilat (EGMEA) menyumbang kepada kumpulan berfungsi bersifat polar ($-\text{COOR}$ ester), meningkatkan kekonduksian ion serta membolehkan proses pempolimeran melalui UV. Dalam kajian ini, bahan pengikat berasaskan getah terubah suai Poli(EGMEA-g-ENR) telah dikaji secara sistematik dalam aplikasi sebagai katod. Gabungan ini berpotensi menghasilkan bahan pengikat yang cekap dan mesra alam untuk LIB generasi akan datang.

Beberapa kajian terdahulu telah meneliti pencantuman monomer berfungsi ke atas ENR untuk meningkatkan sifat mekanikal, ion atau lekatan. Wang et al. (2016) mencantumkan poli(etilena glikol) asid karboksilik monometiliter (mPEG-COOH) ke atas ENR untuk membentuk polimer berbentuk sisir dan menilai kekonduksian ion dalam elektrolit komposit. Walaupun kajian ini memfokuskan kepada pengangkutan ion, ia tidak membincangkan sifat mekanikal dan keanjalan bahan yang terhasil. Tambahan pula, Whba et al. (2021b) melakukan pencantuman akrilonitril (ACN) ke atas ENR-25 melalui fotopolimerisasi radikal bebas UV membincangkan sifat mekanikal menggunakan analisis mekanikal dinamik (DMA), sifat termo-mekanikal dan sifat dielektrik untuk pelbagai jenis getah, termasuk ENR. Azaki et al. (2023) membangunkan 49% poli(metil metakrilat)-cantum getah

asli (MG49) sebagai pengikat anod bateri litium-ion; walaupun berpotensi, pencantuman PMMA menghasilkan struktur semihablur yang agak tegar yang mungkin menjejaskan lekatan elastomerik dan hanya membolehkan laluan pengangkutan ion yang terhad. Secara selari, ulasan terdahulu menekankan bahawa walaupun pencantuman, kopolimerisasi dan pengikatan silang adalah strategi berkesan, sistem semasa masih menghadapi kelemahan seperti: (i) kekurangan kumpulan ester/eter polar untuk mobiliti ion; (ii) tiada kaitan jelas antara seni bina polimer (ketumpatan pencantuman, pengikatan silang) dengan prestasi elektrod; dan (iii) kurang pengoptimuman untuk pengikat katod voltan tinggi.

Kajian ini menangani jurang tersebut dengan mencantumkan EGMEA ke atas ENR-25 untuk membentuk Poli(EGMEA-g-ENR). Pencantuman EGMEA memperkenalkan rantai ester/eter polar yang memudahkan pengangkutan ion dan proses UV-pemvulkanan, manakala rangka ENR mengekalkan lekatan elastomerik dan ketahanan mekanikal. Kami menilai pengikat ini dalam pengikat katod bateri litium-ion, serta mengkaji secara sistematik bagaimana ketumpatan pencantuman dan pengikatan silang mempengaruhi kekonduksian ion, lekatan dan prestasi kitaran elektro-kimia, sekali gus melangkaui kajian ENR-cantun terdahulu yang jarang mengaitkan reka bentuk molekul pengikat dengan prestasi katod.

BAHAN DAN KAEDAH

BAHAN KIMIA

Getah asli teroksida dengan 25 mol% kumpulan epoksida (ENR-25) diperoleh daripada Lembaga Getah Malaysia (MRB), Sungai Buloh, Selangor, Malaysia. Polivinilidena fluorida (PVDF) dibeli daripada Solvay (Belgium). Etilena Glikol Metil Eter Akrilat (EGMEA), 2,2-Dimetoksi-2-fenilasetofenon (DMPA), aluminium oksida (Al_2O_3), kalium karbonat (K_2CO_3), tetrahidrofuran (THF) dan N-metil-2-pirolidon (NMP) diperoleh daripada Sigma-Aldrich (USA). Bahan aktif litium ferum fosfat (LFP) dan bahan tambahan konduktif karbon hitam (Super-P) diperoleh daripada KGC Resources Sdn. Bhd. (Malaysia), manakala metanol dan toluena diperoleh daripada Systerm Chemar (Shah Alam, Selangor, Malaysia). ENR-25 dan EGMEA telah dituliskan sebelum menggunakan. Semua bahan kimia dan reagen lain digunakan secara langsung tanpa penulenan.

KAEDAH PENYEDIAAN

PENULENAN ENR-25 DAN EGMEA

Sebanyak 10.0 g ENR-25 dipotong kecil dan direndam dalam SCHOTT DURAN® yang mengandungi 200 mL toluena selama 24 jam. ENR-25 yang telah mengembang dikacau secara berterusan pada 70 °C selama 48 jam, diikuti dengan

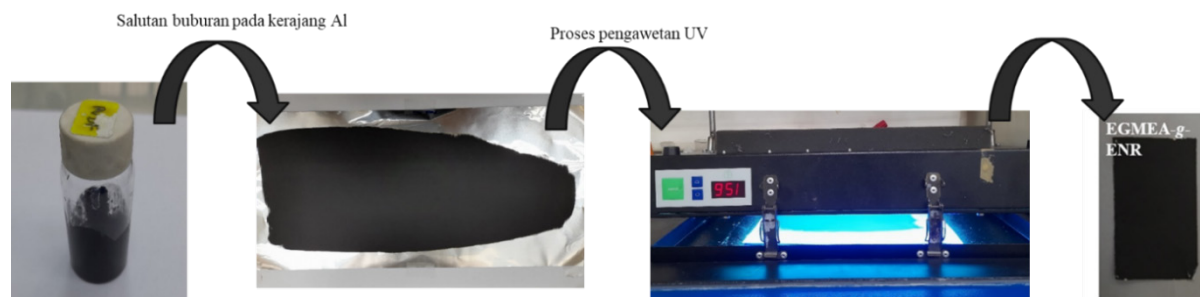
penapisan menggunakan kain nylon untuk memisahkan gel daripada ekstrak. Ekstrak tersebut dituangkan perlahan-lahan ke dalam bikar yang mengandungi 400 mL metanol sambil dikacau secara perlahan menggunakan rod kaca. ENR-25 tulen melekat pada permukaan rod kaca. ENR-25 tulen dipindahkan ke dalam piring petri dan dikeringkan di dalam kebuk wasap sebelum dipindahkan ke dalam ketuhar dan dikeringkan pada suhu 100 °C semalaman. Seterusnya, ENR-25 tulen dikeringkan lagi dalam ketuhar vakum pada suhu 50 °C selama 48 jam. Penulenan EGMEA dilakukan menggunakan kolum ringkas yang mengandungi gentian kapas, aluminium oksida, kalium karbonat dan pasir kuarza bagi menyingkirkan perencat sebelum proses pempolimeran.

PENYEDIAAN ELEKTROD KATOD

ENR-25 tulen direndam dalam toluena semalaman. Kemudian, campuran dikacau selama 24 jam, diikuti dengan penambahan 1.5 mol% DMPA sebagai fotopemula dan dikacau selama 6 jam. Seterusnya, EGMEA yang telah dituliskan dimasukkan ke dalam larutan pada nisbah mol ENR-25: EGMEA = 1:3 dan dikacau selama 6 jam lagi. Seterusnya, bahan aktif LFP dan Super P ditambahkan ke dalam larutan dan dikacau selama 24 jam dengan nisbah LFP:Super P:Binder dikekalkan pada 80:10:10. Toluena ditambahkan secara berperingkat untuk memastikan buburan homogen. Buburan itu disalut pada kerajang aluminium menggunakan teknik *doctor blade* dengan ketebalan 200 μm . Seterusnya, sampel didedahkan kepada sinaran UV dalam kotak cahaya UV (model RS component (196-5251)) dengan pancaran pada 383 nm (λ), keamatan 236 mW/cm^2 dan tenaga $E = 3.237 \text{ eV}$, mengandungi empat lampu 60 W di bawah aliran berterusan gas N_2 selama 30 minit. Elektrod tersebut dikeringkan pada 80 °C selama 12 jam dalam ketuhar. Kemudian, elektrod bulatan berdiameter 14 mm ditebuk dan dikeringkan selanjutnya dalam ketuhar vakum pada 120 °C di bawah tekanan 0.1 bar 24 jam. Bagi elektrod kawalan, ENR-25 tulen dan PVDF masing-masing dilarutkan dalam toluena dan NMP, kemudian dicampurkan dengan serbuk LFP serta Super P dan dikacau semalaman. Buburan elektrod ketebalan 200 μm disalut pada kerajang aluminium menggunakan teknik *doctor blade*. Salutan tersebut kemudian dikeringkan pada 80 °C selama 12 jam dalam ketuhar diikuti oleh proses pengeringan lanjut dalam ketuhar vakum pada 120 °C di bawah tekanan 0.1 bar. Rajah 1 menunjukkan proses penyediaan elektrod katod.

FABRIKASI SEL KOIN

Elektrod yang telah ditebuk dipasang ke dalam sel koin (CR2032) dalam kotak sarung tangan yang diisi dengan argon (kandungan kelembapan dan $\text{O}_2 < 0.1 \text{ ppm}$) sebagai elektrod kerja. Logam litium (diameter 15.6 mm) digunakan sebagai elektrod lawan dan rujukan dengan membran Celgard 2400 sebagai pemisah serta 1.0 M LiPF_6



RAJAH 1. Proses penyediaan elektrod katod

dalam etilena karbonat/dietil karbonat (EC/DEC) sebagai elektrolit. Semua sel yang telah dipasang direhatkan selama 12 jam bagi kestabilan sebelum ujian pencirian elektrokimia dijalankan.

KAEDAH PENCIRIAN

Analisis Inframerah Transformasi Fourier (FTIR) telah dijalankan untuk mengenal pasti kumpulan berfungsi dalam sampel elektrod. Spektrometer FTIR Perkin Elmer Frontier 2000 (Waltham, MA, USA) digunakan untuk pengukuran. Spektrum FTIR diperoleh dengan resolusi imbasan 2 cm^{-1} dalam julat nombor gelombang $650 - 4000\text{ cm}^{-1}$. Morfologi permukaan elektrod ditentukan menggunakan Mikroskop Elektron Pengimbas (SEM) pada pembesaran $10,000\times$, $30,000\times$ dan $50,000\times$ dengan alur elektron 25 kV . Pemerhatian dilakukan pada tiga kawasan berbeza. Spektroskopi impedans elektrokimia (EIS) dan voltammetri berkitar (CV) telah dijalankan menggunakan VersaStat 4, Princeton, USA. Spektrum EIS diperoleh dalam julat frekuensi 1 MHz hingga 0.1 Hz dengan amplitud 10 mV . Voltammetri berkitar dilakukan dalam julat $2.5 - 4.0\text{ V}$ pada kadar imbasan 0.2 mV s^{-1} untuk setiap elektrod selama 5 kitaran. Ujian pengecasan-penyahcasan telah dijalankan untuk menilai prestasi elektrod yang dihasilkan. Pengukuran cas-nyahcas dilakukan secara galvanostatik dalam julat voltan $2.6 - 4.0\text{ V}$ selama 10 kitaran pada kadar 0.1 C pada suhu bilik menggunakan alat penguji bateri Neware. Kapasiti nyahcas, kecekapan Coulombik dan kestabilan kitaran dinilai berdasarkan profil voltan dan prestasi cas-nyahcas.

KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

ANALISIS TRANSFORMASI FOURIER INFRAMERAH (FTIR) ENR-25 telah menjalani proses penulenan sebelum digunakan. Hasil daripada penulenan ini, didapati puncak kumpulan hidroksil telah hilang. Kumpulan hidroksil ini dipercayai berasal daripada sisa asid formik (HCOOH) dan hidrogen peroksida (H_2O_2) yang terhasil semasa proses epoksidasi dalam penghasilan ENR-25 (Afzali & Toiserkani 2022; Boonmahithisud 2015; Tanjung,

Hassan & Hasan 2015). Dalam Rajah 2, turut diperhatikan adalah penurunan ketara pada ikatan C-O-C dan C=C . Pemerhatian ini disokong oleh kajian terdahulu (Chai et al. 2025a; Hamzah et al. 2012). Tambahan pula, satu jalur serapan yang ketara pada 872 cm^{-1} dalam spektrum ENR-25 dikaitkan dengan kumpulan epoksida. Selepas proses pencantuman dengan EGMEA, jalur ini mengalami peralihan kedudukan ke 863 cm^{-1} yang menunjukkan perubahan dalam persekitaran kimia epoksida akibat pencantuman dan pembentukan rangkaian silang (Chai et al. 2025a; Whba et al. 2021a). Bukti kolektif yang dibentangkan, termasuk ketiadaan peralihan puncak C=O dalam ENR-25 serta perubahan keamatan dan kedudukan jalur epoksi, dengan jelas mengesahkan kejayaan proses pemurnian ENR-25 dan menekankan kepentingan proses penulenan sebelum sebarang sintesis dilakukan (Jadual 1).

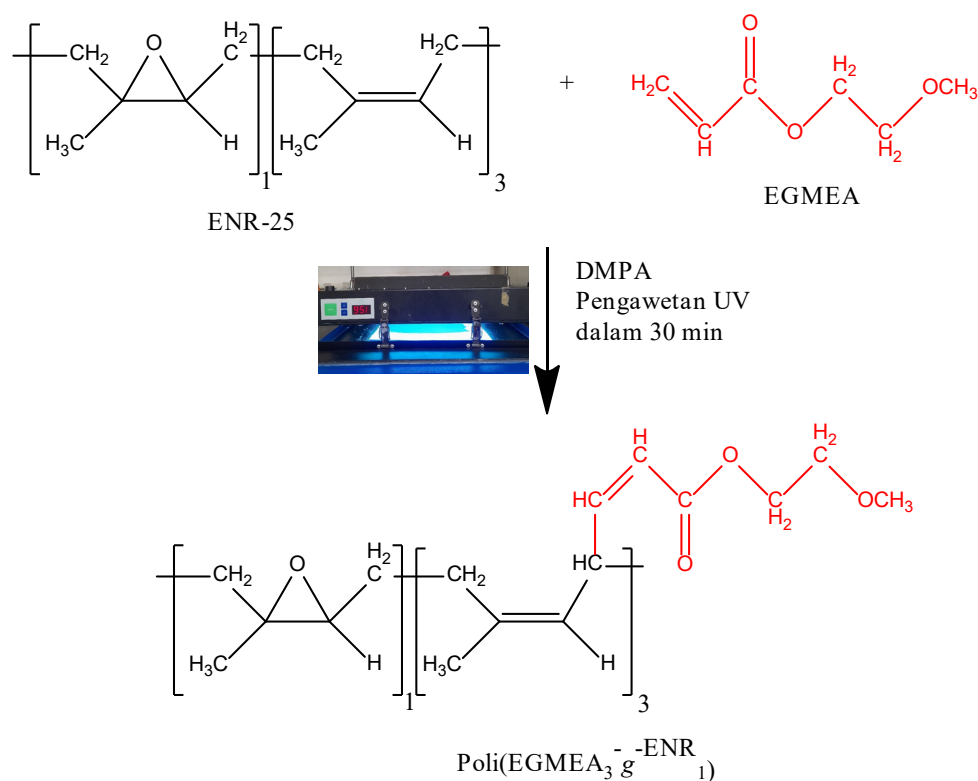
Proses sintesis Poli(EGMEA₃-g-ENR₁) melalui fotopolimerisasi UV digambarkan dalam Skema 1. Seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 2(a), jalur tajam pada 1732 cm^{-1} dikesan dalam spektrum FTIR bagi Poli(EGMEA-g-ENR) dan dikaitkan dengan getaran regangan C=O daripada kumpulan ester. Ini mengesahkan kejayaan pencantuman monomer EGMEA ke dalam ENR-25 (Chai et al. 2025a). Dalam spektrum FTIR bagi ENR-25 (Rajah 2(a)), tiada jalur C=O diperhatikan, manakala spektrum EGMEA menunjukkan jalur C=O yang jelas. Selepas proses pencantuman, kehadiran jalur C=O dalam Poli(EGMEA-g-ENR) membuktikan kejayaan tindak balas pencantuman antara EGMEA dan ENR-25. Rajah 2(b) pula menunjukkan ciri C-O , C-O-C , epoksi dan lenturan C-H yang membezakannya daripada ENR-25 dan EGMEA tulen. Kedua-dua Rajah 2(a) dan 2(b) dipaparkan secara berasingan untuk memudahkan pengenalan jalur fungsi tertentu.

Pemerhatian serupa juga telah dilaporkan oleh Han et al. (2011) yang mana jalur regangan asimetri dan simetri C=O hadir pada 1720 cm^{-1} untuk metoksi polietilena glikol monoakrilat (MeO-PEG-akrilat). Setelah MeO-PEG-akrilat dicantumkan ke atas kitosan, jalur C=O diperhatikan pada 1730 cm^{-1} , menunjukkan kewujudan pautan silang antara molekul. Tambahan pula, Ahmad dan Gramlich (2024) melaporkan bahawa kemunculan satu jalur serapan baharu pada sekitar 1720 cm^{-1} yang dikaitkan dengan regangan

ester C=O, mengesahkan kehadiran kumpulan metakrilat pada permukaan pulpa kraft kayu lembut pelunturan yang telah diubah suai dengan metakrilat (Met-BSKP) dalam sintesis skala bangku dan skala perintis. Selain itu, satu jalur baharu pada 1660 cm^{-1} yang mewakili regangan amida C=O telah terbentuk akibat pencantuman akrilamida pada sampel BSKP-AM.

UJIAN RENDAMAN DAN PENYERAPAN ELEKTROLIT LiPF_6
Keadaan fizikal bagi ketiga-tiga jenis elektrod berasaskan pengikat ENR-25, Poli(EGMEA-g-ENR) dan PVDF telah dinilai pada tiga peringkat masa iaitu pada 0 jam, selepas 24 jam perendaman dan diikuti dengan proses sonikasi. Setiap elektrod direndam dalam 2 mL LiPF_6 , kemudian dibilas dengan dietilena karbonat (DEC) dan dikeringkan pada suhu bilik di dalam sarung kotak untuk menilai kestabilan struktur dan tahap penyerapan pelarut LiPF_6 . Seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 3, elektrod PVDF dan ENR-25 menunjukkan degradasi struktur yang ketara selepas perendaman dan sonikasi dengan sebahagian bahan aktif telah mengalami delaminasi daripada kerajang aluminium. Sebaliknya, Poli(EGMEA-g-ENR) mengekalkan integriti fizikalnya tanpa tanda delaminasi atau degradasi struktur yang ketara. Data kuantitatif

penyerapan elektrolit turut mengesahkan pemerhatian visual tersebut. Dalam Jadual 2, peratusan pembengkakan bagi PVDF telah mencatat nilai tertinggi (246.24%), mencerminkan penyerapan pelarut yang berlebihan menyebabkan struktur jaringan polimer menjadi longgar. Sampel elektrod berasaskan Poli(EGMEA-g-ENR) pula menunjukkan pembengkakan sederhana (71.43%), manakala ENR-25 mencatat nilai paling rendah (51.65%). Keputusan ini menunjukkan bahawa Poli(EGMEA-g-ENR) mempunyai serapan yang baik serta kestabilan dimensi dan lekatan terhadap substrat aluminium yang lebih baik berbanding PVDF dan ENR-25. Ketiadaan delaminasi dan pembengkakan yang lebih rendah menandakan struktur polimer hasil pencantuman Poli(EGMEA-g-ENR) lebih stabil terhadap pelarut elektrolit LiPF_6 dan mampu mengekalkan daya ikatan dengan kerajang aluminium semasa pengendalian dan operasi bateri. Pemerhatian ini sejajar dengan laporan oleh Zhang et al. (2023a) yang menekankan bahawa pengikat dalam bateri litium bukan hanya bertindak sebagai bahan pelekat, malah memainkan peranan penting dalam kestabilan antara muka elektrod/elektrolit serta pengangkutan ion dan elektron dalam sistem berprestasi tinggi. Penyerapan elektrolit yang sederhana atau optimum adalah sangat penting kerana ia membantu pengangkutan ion litium dalam struktur elektrod seterusnya



*n (ENR-25) = 1 merujuk kepada bilangan unit ulangan bagi satu unit isoprena dengan satu kumpulan epoksi terikat

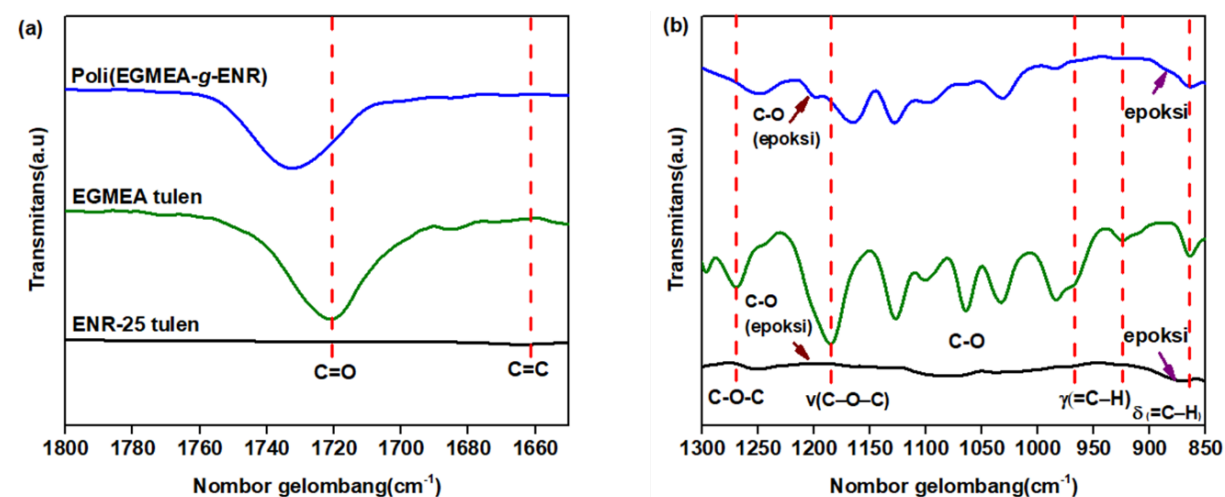
*n (ENR-25) = 3 merujuk kepada bilangan unit ulangan isoprena

SKEMA 1. Sintesis Poli(EGMEA₃-g-ENR₁) melalui fotopolimerisasi UV. Mekanisme sintesis terperinci bagi Poli(EGMEA₃-g-ENR₁) boleh dirujuk dalam kajian oleh Chai et al. (2025b)

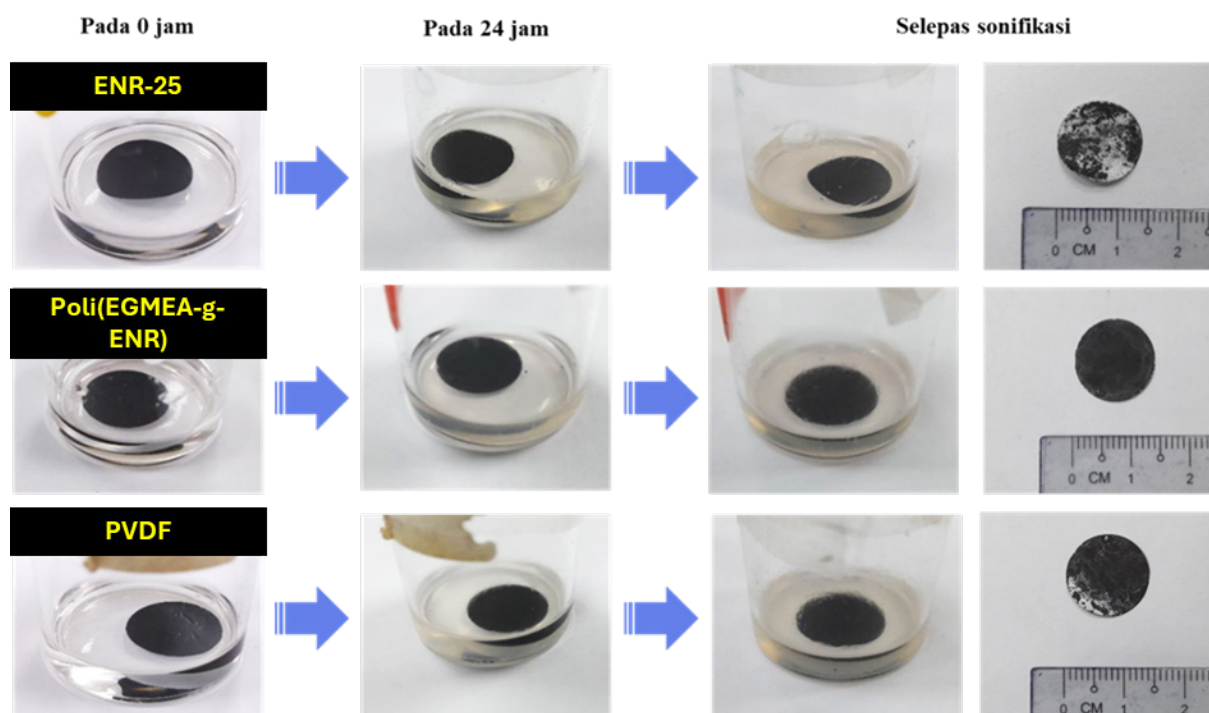
JADUAL 1. Kumpulan fungsi dengan nombor gelombang yang sepadan bagi ENR-25 dituliskan, EGMEA dituliskan dan Poli(EGMEA-g-ENR)

Jenis getaran	Nombor gelombang (cm ⁻¹)		
	ENR-25 tulen	EGMEA tulen	Poli(EGMEA-g-ENR)
Regangan antisimetri -CH ₃ (v _a)	2963	2931	2959
Regangan antisimetri -CH ₂ (v _a)	2920	2888	2924
Regangan simetri -CH ₂ (v _s)	2857	2821	2855
Regangan C=O	-	1721	1732
Regangan C=C	1664	1685	1683
Guntingan simetri -CH ₂ (δ _s)	1449	-	1449
Hayunan -CH ₂ (ω)	1377, 1322	-	1401, 1378
Metil (CH ₃)	-	1365	-
Regangan C-O-C	1250	1270	1249
Regangan C-O (epoksi)	1199	-	1197
Regangan C-O-C	-	1184, 1127	1162, 1127
Regangan C-O (eter)	-	1099, 1063, 1032	1099, 1063, 1032
Lenturan luar satah =C-H	-	982, 966, 922	982, 966, 922
Regangan epoksi	872	-	863
Lenturan luar satah =C-H	-	862	862

v = regangan (v_s = simetri; v_a = antisimetri), δ = lenturan, δ_s = guntingan, ω = hayunan



RAJAH 2. Spektrum FTIR bagi ENR-25 tulen, EGMEA tulen dan Poli(EGMEA-g-ENR) pada nombor gelombang terpilih: (a) 1800-1650 cm⁻¹ dan (b) 1300-850 cm⁻¹



RAJAH 3. Keadaan sampel ENR-25, Poli(EGMEA-g-ENR) dan PVDF selepas perendaman pada 0 jam, 24 jam dan selepas proses sonifikasi, diikuti dengan pembilasan menggunakan DEC dan pengeringan pada suhu bilik

JADUAL 2. Perbandingan jisim sebelum dan selepas perendaman serta peratusan pembengkakan bagi elektrod ENR-25, Poli(EGMEA-g-ENR) dan PVDF

Elektrod	Poli(EGMEA-g-ENR)	ENR	PVDF
Jisim sebelum perendaman, m_1 (g)	0.0091	0.0091	0.0093
Jisim selepas perendaman, m_2 (g)	0.0156	0.0138	0.0322
Peratusan penyerapan $[(m_2 - m_1)/m_1] \times 100\%$ (%)	71.43	51.65	246.24

mengurangkan rintangan dalam. Selain itu, menjamin pengedaran elektrolit yang sekata dalam elektrod dan menembusi keseluruhan elektrod serta melitupi bahan aktif secara menyeluruh. Kajian oleh Del Olmo et al. (2023) menunjukkan bahwa pengikat poli(ionik cecair) dengan mobiliti ion Li^+ terlaras mampu meningkatkan prestasi kadar tinggi serta jangka hayat sel melalui kawalan morfologi pemendapan litium. Walaupun penyerapan elektrolit yang tinggi adalah sangat diinginkan, penyerapan berlebihan boleh menyebabkan pengembangan melampau melebihi keupayaan PVDF untuk menampungnya, sekali gus membawa kepada kelonggaran struktur, delaminasi atau berisiko menyebabkan litar pintas. Sebaliknya, penyerapan elektrolit yang rendah boleh mengehadkan pergerakan ion, meningkatkan rintangan dalaman serta menurunkan prestasi bateri. Oleh itu, keseimbangan antara sifat kebasahan dan keutuhan mekanik dalam Poli(EGMEA-g-ENR) memainkan peranan penting dalam membentuk

rangkaian pengaliran hibrid ion-elektron yang lebih cekap. Hal ini disokong oleh analisis Entwistle et al. (2022) tentang kepentingan domain pengikat karbon (CBD) dalam membentuk laluan konduktiviti elektronik jangka panjang dan mikro dan akhirnya menjejaskan prestasi kadar tinggi. Secara keseluruhan, Poli(EGMEA-g-ENR) menunjukkan lekatan yang baik serta kadar penyerapan elektrolit LiPF_6 yang optimum, seperti yang dibuktikan melalui ujian rendaman. Pemerhatian ini menunjukkan kestabilan kimia yang lebih tinggi terhadap pelarut dan garam litium yang seterusnya menyumbang kepada pembentukan rangkaian konduktiviti ion yang lebih stabil di dalam matriks polimer.

ANALISIS MIKROSKOP ELEKTRON PENGIMBAS (SEM)

Rajah 4 menunjukkan morfologi permukaan elektrod yang dikaji menggunakan SEM. Bahan LFP diperhatikan dalam bentuk zarah berbentuk poligonal atau hampir sfera dengan

saiz purata sekitar 300 - 500 nm seperti yang dilaporkan dalam kepustakaan (Chen et al. 2018; Wijareni et al. 2025). Sementara itu, serbuk Super P berbentuk sfera kecil dengan saiz 30 - 50 nm (Azaki et al. 2023; Smoliński et al. 2025; Yan et al. 2024). Daripada mikroskop SEM, sampel bagi Poli(EGMEA-g-ENR) menunjukkan pengagihan Super P yang lebih seragam serta sentuhan rapat dengan zarah LFP berbanding dengan elektrod berasaskan ENR dan PVDF. Pemerhatian ini mencadangkan bahawa matriks polimer berjaya menyelaputi dan berinteraksi dengan zarah LFP lebih cekap yang berpotensi meningkatkan kestabilan struktur serta prestasi elektrod (Chen et al. 2024; Han et al. 2025). Dapat dilihat dengan jelas bahawa terdapat banyak pembentukan ruang kosong (bulatan kuning) yang tidak disaluti dengan Super P. Tambahan, sampel ENR-25 menunjukkan kehadiran aglomerasi (anak panah kuning). Kewujudan ruang tanpa Super P ini boleh mengurangkan sentuhan antara zarah, sekali gus menjejaskan kekonduksian elektrik dan pergerakan ion dalam elektrod. Keadaan ini berpotensi menurunkan prestasi keseluruhan bateri litium-ion kerana penyebaran bahan aktif yang tidak sekata boleh menghalang laluan penghantaran cas yang cekap. Zhao et al. (2018) turut melaporkan bahawa pengaglomeratan zarah antara grafit dan karbon hitam menyumbang kepada kehilangan kekonduksian dan memperlambatkan aktiviti elektrokimia yang akhirnya menyebabkan kehilangan kapasiti bahan aktif.

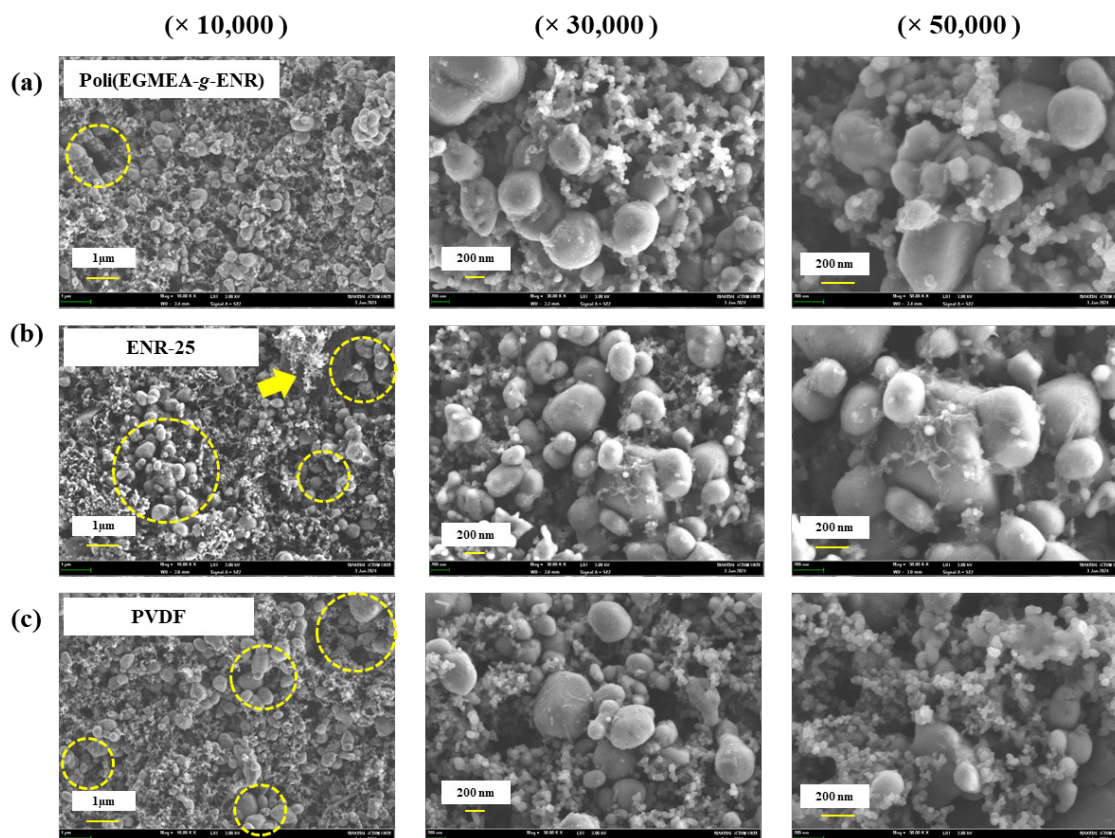
ANALISIS ELEKTROKIMIA

Rajah 5(a) memperlihatkan plot Nyquist bagi semua sampel elektrod dengan litar setara (Zview 2) digunakan untuk pepadanan data EIS. R_s mewakili rintangan ohmik, manakala R_{ct} mencerminkan rintangan pemindahan cas pada elektrod. CPE ialah unsur fasa malar dan W mewakili impedans Warburg. Semi bulatan pada frekuensi tinggi menunjukkan penghijrahan ion Li^+ pada antara muka elektrod-elektrolit, manakala garis condong pada frekuensi rendah menggambarkan impedans Warburg yang berkaitan dengan proses resapan ion Li^+ . Daripada Rajah 5, elektrod PVDF mempunyai rintangan paling rendah (5.4 Ω), diikuti oleh Poli(EGMEA-g-ENR) (19.6 Ω) dan ENR-25 (21.0 Ω). Nilai R_s yang rendah bagi PVDF menunjukkan keupayaan elektrolit untuk mengalirkan ion dengan lebih cekap, disebabkan oleh struktur berliang atau sifat hidrofilik yang meningkatkan kebasahan elektrolit (Liu et al. 2019; Serra et al. 2022; Zhao et al. 2023). Ia juga mempunyai penyerapan elektrolit yang tinggi berbanding dengan sampel lain. Sebaliknya, nilai R_s yang lebih tinggi bagi elektrod Poli(EGMEA-g-ENR) dan ENR-25 mencadangkan kemungkinan berlakunya tindak balas antara kumpulan epoksida dan elektrolit yang berpotensi menyebabkan kemerosotan $LiPF_6$ (Chai et al. 2025a). Nilai R_s bagi Poli(EGMEA-g-ENR) dan ENR-25 yang hampir sama turut menunjukkan bahawa kandungan kumpulan epoksida dalam struktur polimer tidak mengalami perubahan

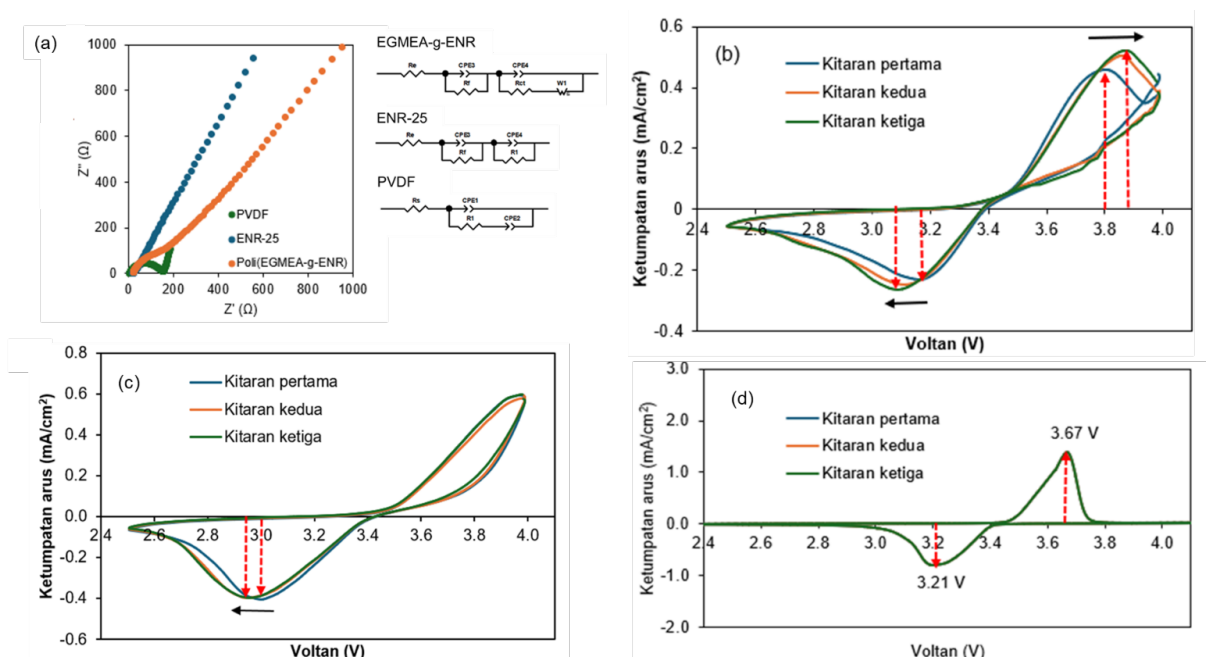
ketara selepas proses pencantuman dengan EGMEA. Ini mencadangkan bahawa peratusan kumpulan epoksida kekal pada paras asal, iaitu sekitar 25%, walaupun selepas proses pengubahsuaian dilakukan.

Lengkungan separuh bulatan yang lebih kecil dalam plot Nyquist bagi PVDF menunjukkan bahawa bahan ini mempunyai rintangan pemindahan cas (R_{ct}) yang paling rendah iaitu 144.4 Ω . Nilai ini menandakan bahawa kinetik pemindahan cas berlaku dengan lebih pantas dalam elektrod berasaskan PVDF berbanding Poli(EGMEA-g-ENR) (171.3 Ω) dan ENR-25 (16,319.0 Ω). Namun, terdapat pengurangan rintangan yang ketara bagi Poli(EGMEA-g-ENR) berbanding dengan ENR-25. Hal ini menunjukkan bahawa EGMEA membantu dalam pengangkutan ion dalam elektrod melalui peningkatan interaksi dengan elektrolit, serta membantu pembentukan lapisan antara muka elektrolit pepejal (SEI) yang lebih baik. Jadual 3 juga menunjukkan kekonduksian ion (σ) tertinggi adalah PVDF, diikuti oleh Poli(EGMEA-g-ENR) dan ENR-25. Secara khususnya, kekonduksian ionik Poli(EGMEA-g-ENR) telah meningkat berbanding ENR-25 dan ini mengukuhkan kesan positif pencantuman EGMEA dalam memudahkan pengangkutan ion. Dalam Rajah 5(b), dapat dilihat bahawa puncak pengoksidaan meningkat daripada 3.80 V pada kitaran pertama ke 3.90 V pada kitaran ketiga, manakala puncak penurunan beralih daripada 3.18 V kepada 3.10 V. Perubahan ini menunjukkan penyesuaian struktur serta pembentukan dan penstabilan lapisan antara muka elektrolit pepejal (SEI). Selain itu, elektrod ENR-25 (Rajah 5(c)) menunjukkan satu puncak redoks yang stabil wujud sekitar 3.0 V dalam kitaran pertama lalu beralih sedikit ke 2.95 V dalam kitaran berikutnya. Peralihan kecil ini mencerminkan proses penstabilan SEI yang masih berlaku. Sebaliknya, elektrod berasaskan PVDF (Rajah 5(d)) menunjukkan arus puncak yang paling tinggi serta jarak pemisahan puncak yang kecil mencerminkan polarisasi rendah, sekali gus menunjukkan tahap tindak balas berbalik elektrokimia yang tinggi. Sebaliknya, elektrod Poli(EGMEA-g-ENR) menunjukkan arus puncak yang sederhana dengan keluk yang lebih lebar berbanding PVDF tetapi lebih baik daripada ENR-25. Pemisahan puncak yang sederhana menandakan wujudnya keupayaan lampau sederhana serta tindak balas berbalik yang masih baik. Bagi ENR-25, arus puncak yang dicatatkan adalah yang paling rendah dalam kalangan semua bahan pengikat, menunjukkan pengangkutan ion litium yang lemah serta tindak balas berbalik elektrokimia yang lebih rendah. Di samping itu, puncak redoks bagi ENR-25 adalah lebar dengan pemisahan puncak yang lebih luas, menandakan berlakunya kinetik redoks yang perlahan dan rintangan dalaman yang tinggi dalam sistem tersebut.

Rajah 6 menunjukkan prestasi galvanostatik dalam ujian bateri. Sampel bagi Poli(EGMEA-g-ENR) dapat mencapai kecekapan Coulombik sebanyak 96.75% selepas 10 kitaran dan mempunyai kapasiti cas (149.28 mAh/g) dan nyahcas (144.43 mAh/g) yang tertinggi. Sebagai



RAJAH 4. Imej SEM bagi elektrod (a) Poli(EGMEA-g-ENR), (b) ENR-25 dan (c) PVDF pada pelbagai pembesaran imej. Bulatan kuning menunjukkan bahagian tiada salutan Super P dan anak panah kuning menunjukkan aglomerasi Super P



RAJAH 5. (a) Plot Nyquist bersama litar setara dan tiga kitaran voltamogram kitaran untuk (b) Poli(EGMEA-g-ENR), (c) ENR-25 dan (d) PVDF

JADUAL 3. Parameter impedans bagi semua sampel elektrod

Sampel	Model litar	$R_s (\Omega)$	$R_{ct} (\Omega)$	Ketebalan (cm)	Kekonduksian ion (Scm^{-1})
Poli(EGMEA-g-ENR)	R(RQ)(RQW)	19.6	171.3	0.0035	1.31×10^{-5}
ENR-25	R(Q(RQ))	21.0	16319.0	0.0042	1.67×10^{-7}
PVDF	R(RQ)(RQ)	5.4	144.4	0.0030	2.17×10^{-3}

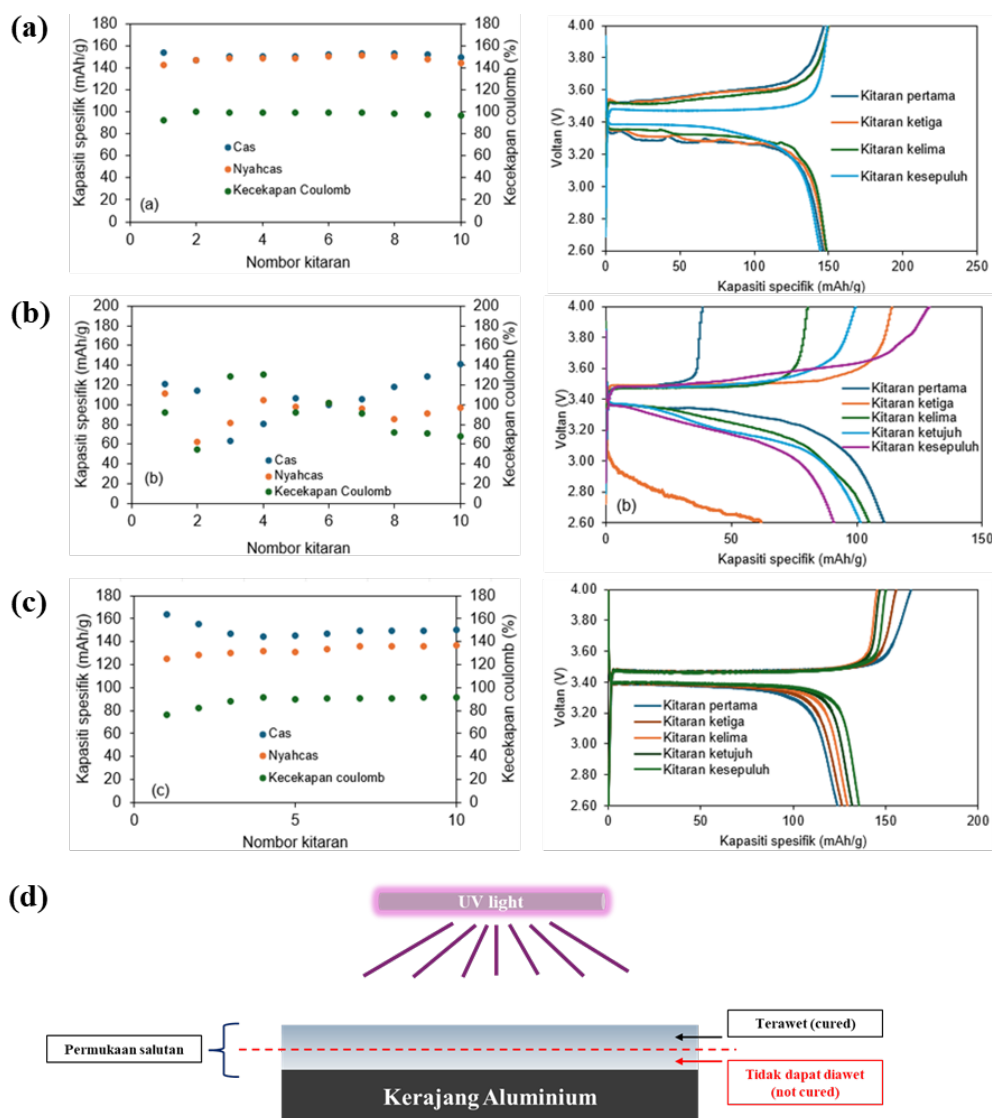
perbandingan, pengikat PVDF mencatatkan kapasiti cas 150.19 mAh/g, kapasiti nyahcas 136.88 mAh/g dan kecekapan Coulombik 91.14%. Sementara itu, elektrod ENR-25 menunjukkan prestasi yang jauh lebih rendah, iaitu kapasiti cas 141.43 mAh/g dan 96.78 mAh/g bagi nyahcas dengan kecekapan Coulombik sebanyak 68.43%. Peningkatan prestasi elektrod Poli(EGMEA-g-ENR) telah menunjukkan pengenalan EGMEA kepada ENR adalah sangat berkesan. Pemerhatian ini sejajar dengan keputusan Albehajian et al. (2020) yang melaporkan bahawa penambahan cabang rantai sisi PEGMEA pada rangkaian PEGDA bukan sahaja merendahkan suhu peralihan kaca, malah meningkatkan kekonduksian ion akibat kesan pemplastikan oleh rantai tergantung tersebut. Selari dengan mekanisme yang sama, bahan hibrid Poli(EGMEA-g-ENR) yang dihasilkan dalam kajian ini menunjukkan prestasi elektrokimia yang lebih baik berbanding ENR-25 (Azaki et al. 2023; Ren et al. 2025; Zhao et al. 2020).

Bagi sampel ENR-25, ketidakstabilan dan kecekapan Coulombik yang tidak tekal yang diperhatikan pada Rajah 6(b) mungkin disebabkan oleh pengagihan Super P yang tidak seragam dan pembentukan aglomerasi dalam matriks polimer seperti ditunjukkan dalam Rajah 4(b). Fenomena ini menyebabkan pengasingan zarah LFP dan pengurangan sentuhan elektrik yang berkesan, sekali gus menjejaskan prestasi keseluruhan (Abdah et al. 2021; Cheng et al. 2020). Selain itu, Poli(EGMEA-g-ENR) dan PVDF mencerminkan pengagihan zarah yang lebih seragam serta sentuhan yang lebih erat antara komponen LFP (Rajah 4(a) dan 4(c)). Hasil pemerhatian SEM ini sejajar dengan keputusan ujian bateri dengan elektrod Poli(EGMEA-g-ENR) menunjukkan kapasiti cas–nyahcas serta kekonduksian ion yang lebih baik berbanding ENR-25 dan setanding dengan elektrod kawalan PVDF.

Hasil ujian CV menunjukkan bahawa walaupun Poli(EGMEA-g-ENR) memberikan kapasiti yang lebih tinggi berbanding PVDF, bahan ini mengalami polarisasi yang lebih besar, menandakan terdapat rintangan pemindahan cas yang lebih tinggi semasa proses elektrokimia. Selain itu, pada permulaan lengkung cas–nyahcas bagi sampel elektrod Poli(EGMEA-g-ENR) adalah kurang baik. Pada kitaran yang seterusnya, lengkung cas–nyahcas telah bertambah baik. Hal ini kerana pembentukan SEI yang semakin stabil. Masalah lain yang dihadapi adalah Poli(EGMEA-g-ENR) mempunyai kumpulan epoksida yang

berpotensi berinteraksi dengan ion litium atau komponen elektrolit yang boleh mengganggu kestabilan antara muka elektrod dan mengurangkan kecekapan pemindahan cas, seterusnya menjejaskan prestasi keseluruhan bateri.

Dari segi penyediaan elektrod secara sinaran UV juga merupakan salah satu faktor yang boleh menyumbang kepada kekurangan kestabilan jangka panjang bagi Poli(EGMEA-g-ENR) dan ENR-25. Bahan aktif katod seperti karbon mempunyai sifat penyerapan UV yang tinggi (Borinelli et al. 2024; Guo, Liang & Du 2023), sekali gus menghalang penembusan cahaya UV secara menyeluruh ke permukaan elektrod yang lebih dalam (Guo, Liang & Du 2023; Rau et al. 2023). Keadaan ini kemungkinan menyebabkan bahagian permukaan yang lebih mendalam tidak dapat diawet sepenuhnya, lalu menghasilkan pembentukan rangkaian polimer yang tidak seragam dan lemah dari segi kestabilan mekanikal dan elektrokimia, terutamanya semasa kitaran jangka panjang (Al-Sulaimi et al. 2024; Mohsenpour et al. 2025) seperti diilustrasi dalam Rajah 6(d). Selain itu, kawasan yang tidak diawet dengan sempurna juga boleh menyebabkan lekatan yang lemah antara pengikat dan zarah aktif yang akhirnya menjejaskan prestasi keseluruhan bateri. Ini menunjukkan bahawa kaedah pengawetan UV yang bergantung kepada penembusan cahaya mungkin kurang sesuai untuk sistem elektrod berasaskan karbon. Untuk mengatasi masalah ini, beberapa pendekatan boleh dipertimbangkan, termasuk mengoptimalkan panjang gelombang dan keamatan UV, menggunakan fotoinitiator dengan spektrum penyerapan yang berbeza atau mempertimbangkan kaedah pengawetan alternatif seperti pengawetan terma. Kajian oleh Chai et al. (2025b) turut melaporkan bahawa interaksi kuat antara oksigen daripada kumpulan epoksida (O1) dengan ion litium boleh menghadkan prestasi. Hal ini kerana atom O1 yang bersifat elektronegatif boleh membentuk ikatan yang terlalu kuat dengan ion Li^+ , menyebabkan ion tersebut terperangkap dalam matriks polimer dan tidak tersedia untuk bergerak bebas. Keadaan yang sama juga telah diperhatikan dalam kajian lain (Chang et al. 2025; Zhang et al. 2023b). Keadaan ini mengurangkan bilangan ion litium bebas yang boleh menyumbang kepada pengaliran cas, seterusnya menurunkan kekonduksian ion dan prestasi elektrokimia keseluruhan. Tambahan pula, interaksi ini berpotensi mencetuskan tindak balas sampingan yang boleh menjejaskan kestabilan SEI dan struktur dalaman bahan.



RAJAH 6. Cas/nyahcas galvanostatik bagi (a) Poli(EGMEA-g-ENR), (b) ENR-25 dan (c) PVDF

KESIMPULAN

Bahan pengikat Poli(EGMEA-g-ENR) bagi aplikasi bateri litium-ion telah berjaya disintesis melalui kaedah fotopolimeran UV. Teknik ini berjaya membentuk elektrod dengan taburan bahan aktif yang seragam, rintangan pemindahan cas (R_{ct}) serendah 171.3Ω (jauh lebih baik berbanding ENR-25 pada $16,319.0 \Omega$) serta kapasiti nyahcas tinggi mencecah $144.43 \text{ mAh g}^{-1}$ dengan kecekapan Coulombik 96.75%. Pencapaian ini membuktikan potensi getah terubah suai yang bersesuaian mampu digunakan dalam aplikasi bateri. Kelebihan utama fotopolimeran UV terletak pada proses sintesisnya yang singkat, cekap tenaga dan mesra alam, sekali gus menawarkan penyelesaian lebih mampan untuk industri bateri. Walau bagaimanapun, penyalutan dilakukan melalui sinaran UV adalah tidak praktikal memandangkan pengawetan penuh mungkin tidak dapat dilakukan terutamanya pada bahagian

yang lebih mendalam dalam elektrod khususnya salutan tebal. Selain itu, pengubahsuaian gelang epoksida pada ENR juga harus dilakukan. Namun, pendekatan ini telah membuka dimensi baharu dalam pembangunan bahan pengikat berasaskan getah yang lebih mesra alam dan berprestasi tinggi bagi aplikasi penyimpanan tenaga masa depan, khususnya untuk memenuhi keperluan bateri yang menuntut keseimbangan antara prestasi elektrokimia dan fleksibiliti mekanikal.

PENGHARGAAN

Kami ingin merakamkan setinggi-tinggi penghargaan kepada Universiti Kebangsaan Malaysia (UKM) atas pembiayaan dan sokongan di bawah geran GUP-2023-083. Penghargaan turut diberikan kepada International Battery Centre Sdn. Bhd. atas nasihat dan sokongan perundingan yang amat bernilai, yang memainkan peranan penting

dalam pelaksanaan serta kejayaan kajian ini. Selain itu, kami juga ingin mengucapkan terima kasih kepada Institut Penyelidikan Tenaga Suria (SERI), Universiti Kebangsaan Malaysia atas penyediaan kemudahan penyelidikan yang diperlukan.

RUJUKAN

- Abdah, M.A.A.M., Mokhtar, M., Khoon, L.T., Sopian, K., Dzulkurnain, N.A., Ahmad, A., Sulaiman, Y., Bella, F. & Su'ait, M.S. 2021. Synthesis and electrochemical characterizations of poly(3,4-ethylenedioxythiophene)/manganese oxide coated on porous carbon nanofibers as a potential anode for lithium-ion batteries. *Energy Reports* 7: 8677-8687. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.egy.2021.10.110>
- Afzali, A. & Toiserkani, H. 2022. Fabrication and evaluation of properties of modified epoxidized natural rubber hybrid films by the incorporation of amine-functionalized nanosilica. *Polymer-Plastics Technology and Materials* 61(16): 1729-1739. <https://doi.org/10.1080/25740881.2022.2078729>
- Ahmad, A.A.L. & Gramlich, W.M. 2024. Methacrylate and polymer grafting pulp pretreatments reduce refining energy to produce modified cellulose nanofibrils. *Cellulose* 31(5): 2865-2880. <https://doi.org/10.1007/s10570-024-05796-x>
- Al-Sulaimi, S., Jahan, M.Q., Ahmad, M., Batool, Z., Hamza, M., ur Rehman, A., Ashraf, G.A., Yang, J., Al-Ammar, E.A. & Wabaidur, S.M. 2024. Impact of carbon dots on the structural, morphological, magnetic, and electrochemical performance of Zn ferrite for energy storage applications. *Materials Chemistry and Physics* 326: 129721. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2024.129721>
- Albehaijan, H.A., Piedrahita, C.R., Cao, J., Soliman, M., Mitra, S. & Kyu, T. 2020. Mechanoelectrical transduction of polymer electrolyte membranes: Effect of branched networks. *ACS Applied Materials & Interfaces* 12(6): 7518-7528. <https://doi.org/10.1021/acsami.9b15599>
- Azaki, N.J., Ahmad, A., Hassan, N.H. & Lee, T.K. 2025. The correlation between carbon additives and the binder: The case of poly(methyl methacrylate)-grafted natural rubber binder. *ACS Applied Polymer Materials* 7(7): 4348-4359. <https://doi.org/10.1021/acsapm.4c04230>
- Azaki, N.J., Ahmad, A., Hassan, N.H., Mohd Abdah, M.A.A., Su'ait, M.S., Ataollahi, N. & Lee, T.K. 2023. Poly(methyl methacrylate) grafted natural rubber binder for anodes in lithium-ion battery applications. *ACS Applied Polymer Materials* 5(7): 4953-4965. <https://doi.org/10.1021/acsapm.3c00532>
- BloombergNEF. 2024. *Electric Vehicle Outlook 2024*. <https://about.bnef.com/insights/clean-transport/electric-vehicle-outlook/#download-report-summary>
- Boonmahitthisud, A. 2015. Preparation and characterization of epoxidized natural rubber and epoxidized natural rubber/Carboxylated styrene butadiene rubber blends. *Journal of Metals, Materials and Minerals* 25(1): 27-36. <https://doi.org/10.14456/jmmm.2015.4>
- Borinelli, J.B., Enfrin, M., Blom, J., Giustozzi, F., Vuye, C. & Hernando, D. 2024. Investigating thermal and UV ageing effects on crumb rubber modified bitumen enhanced with emission reduction agents and carbon black. *Construction and Building Materials* 449: 138452. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2024.138452>
- Chai, K., Dzulkurnain, D.D.B., Su'ait, M.S., Ahmad, A., Ataollahi, N. & Lee, T.K. 2025a. Real-time Raman spectroscopy of photopolymerization dynamics in ethylene glycol methyl ether acrylate-g-epoxidized natural rubber. *ACS Applied Polymer Materials* 7(3): 1771-1783. <https://doi.org/10.1021/acsapm.4c03593>
- Chai, K.L., Sukor Su'ait, M., Shukri, G. & Lee, T.K. 2025b. Dynamics interaction in highly stretchable EGMEA-g-ENR-LiTFSI systems: Insights from molecular interactions via real time Raman and DFT analysis. *Electrochimica Acta* 527: 146114. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.electacta.2025.146114>
- Chang, R., Liu, Y., Zhang, Y., Shi, Y., Tang, J., Xu, Z.L., Zhou, X. & Yang, J. 2025. Weakening lithium-ion coordination in poly(ethylene oxide)-based solid polymer electrolytes for high performance solid-state batteries. *Advanced Energy Materials* 15(26): 2405906. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/aenm.202405906>
- Chen, B., Zhang, Z., Xiao, M., Wang, S., Huang, S., Han, D. & Meng, Y. 2024. Polymeric binders used in lithium ion batteries: Actualities, strategies and trends. *ChemElectroChem* 11(14): e202300651. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/celec.202300651>
- Chen, L., Chen, Z., Liu, S., Gao, B. & Wang, J. 2018. Effects of particle size distribution on compacted density of lithium iron phosphate 18650 battery. *Journal of Electrochemical Energy Conversion and Storage* 15(4): 041011. <https://doi.org/10.1115/1.4040825>
- Cheng, Z., Hu, Y., Wu, K., Xing, Y., Pan, P., Jiang, L., Mao, J., Ni, C., Wang, Z., Zhang, M., Zhang, Y., Gu, X. & Zhang, X. 2020. Si/TiO₂/Ti₂O₃ composite carbon nanofiber by one-step heat treatment with highly enhanced ion/electron diffusion rates for next-generation lithium-ion batteries. *Electrochimica Acta* 337: 135789. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.electacta.2020.135789>
- Del Olmo, R., Guzmán, G., Santos Mendoza, I., Mecerreyes, D., Forsyth, M. & Casado, N. 2023. Unraveling the influence of Li⁺-cation and TFSI⁻ anion in poly(ionic liquid) binders for lithium-metal batteries. *Batteries & Supercaps* 6(3): e202200519. <https://doi.org/10.1002/batt.202200519>

- Dong, S., Wang, L., Huang, X., Liang, J. & He, X. 2024. Functionalized binders boost high-capacity anode materials. *Advanced Functional Materials* 34(41): 2404192. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/adfm.202404192>
- El Kassar, R., Al Takash, A., Faraj, J., Hammoud, M., Khaled, M. & Ramadan, H.S. 2024. Recent advances in lithium-ion battery integration with thermal management systems for electric vehicles: A summary review. *Journal of Energy Storage* 91: 112061. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.est.2024.112061>
- Entwistle, J., Ge, R., Pardikar, K., Smith, R. & Cumming, D. 2022. Carbon binder domain networks and electrical conductivity in lithium-ion battery electrodes: A critical review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 166: 112624. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.rser.2022.112624>
- Gordon, D. 2022. *Battery Market Forecast to 2030: Pricing, Capacity, and Supply and Demand*. <https://www.esource.com/report/130221hvfd/battery-market-forecast-2030-pricing-capacity-and-supply-and-demand>
- Guo, M., Liang, M. & Du, X. 2023. Evaluation on feasibility of carbon black and hindered amine light stabilizer as UV-resistant additives of asphalt binder. *Journal of Testing and Evaluation* 51(6): 3987-4003. <https://doi.org/10.1520/JTE20220611>
- Hamzah, R., Bakar, M.A., Khairuddean, M., Mohammed, I.A. & Adnan, R. 2012. A structural study of epoxidized natural rubber (ENR-50) and its cyclic dithiocarbonate derivative using NMR spectroscopy techniques. *Molecules* 17(9): 10974-10993. <https://doi.org/10.3390/molecules170910974>
- Han, J., Zhang, J., Yin, R., Ma, G., Yang, D. & Nie, J. 2011. Electrospinning of methoxy poly(ethylene glycol)-grafted chitosan and poly(ethylene oxide) blend aqueous solution. *Carbohydrate Polymers* 83(1): 270-276. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2010.07.057>
- Han, S., Lee, H., Yang, S., Kim, J., Jeong, J., Lee, Y., Chun, J., Roh, K.C., Kim, P.J., Lee, D., Sun, S., Jeong, W., Choi, B., Paik, U., Song, T. & Choi, J. 2025. High-energy-density li-ion batteries employing gradient porosity LiFePO₄ electrode for enhancing Li-ion kinetics and electron transfer. *Small Structures* 6: 2500093. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/sstr.202500093>
- Hasan, M.M., Haque, R., Jahirul, M.I., Rasul, M.G., Fattah, I.M.R., Hassan, N.M.S. & Mofijur, M. 2025. Advancing energy storage: The future trajectory of lithium-ion battery technologies. *Journal of Energy Storage* 120: 116511. <https://doi.org/10.1016/j.EST.2025.116511>
- He, Q., Ning, J., Chen, H., Jiang, Z., Wang, J., Chen, D., Zhao, C., Liu, Z., Perepichka, I.F., Meng, H. & Huang, W. 2024. Achievements, challenges, and perspectives in the design of polymer binders for advanced lithium-ion batteries. *Chem. Soc. Rev.* 53(13): 7091-7157. <https://doi.org/10.1039/D4CS00366G>
- Khan, F.M.N.U., Rasul, M.G., Sayem, A.S.M. & Mandal, N. 2023. Maximizing energy density of lithium-ion batteries for electric vehicles: A critical review. *Energy Reports* 9: 11-21. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.egyr.2023.08.069>
- Kumano, N., Yamaguchi, Y., Akimoto, Y., Ohshima, A., Nakamura, H. & Yamamura, M. 2024. Migration of binder and conductive agent during drying process of Li-ion battery cathodes. *Journal of Power Sources* 591: 233883. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233883>
- Lee, T.K., Zaini, N.F.M., Mobarak, N.N., Hassan, N.H., Noor, S.A.M., Mamat, S., Loh, K.S., KuBulat, K.H., Su'ait, M.S. & Ahmad, A. 2019. PEO based polymer electrolyte comprised of epoxidized natural rubber material (ENR50) for Li-ion polymer battery application. *Electrochimica Acta* 316: 283-291. <https://doi.org/10.1016/j.ELECTACTA.2019.05.143>
- Li, D., Shen, C., Zheng, Y. & Xu, J. 2025. Electrochemo-mechanical degradation and failure of active particles in high energy density batteries: A review. *Small* 21(8): 2407740. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/sml.202407740>
- Liao, H., Huang, B., Cui, Y., Qin, H., Liu, X. & Xu, H. 2022. Research on a fast detection method of self-discharge of lithium battery. *Journal of Energy Storage* 55: 105431. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.est.2022.105431>
- Liu, J., Wang, C., Wu, X., Zhu, F., Liu, M. & Xi, Y. 2019. An enhanced poly(vinylidene fluoride) matrix separator with TEOS for good performance lithium-ion batteries. *Journal of Solid State Electrochemistry* 23: 277-284. <https://doi.org/10.1007/s10008-018-4126-5>
- Menye, J.S., Camara, M.B. & Dakyo, B. 2025. Lithium battery degradation and failure mechanisms: A state-of-the-art review. *Energies* 18(2): 342. <https://doi.org/10.3390/en18020342>
- Mohsenpour, S., Ge, L., Chung, H.J., Michaud, X., Ette, P.M., Sandwell, A., Park, S. & Park, C. 2025. Impact of morphology and carbon coating techniques on the electrochemical performance of silicon-based anodes for Li-ion batteries. *Materials Chemistry and Physics* 346: 131345. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2025.131345>

- Piğłowska, M., Kurc, B., Fuć, P. & Szymlet, N. 2024. Novel recycling technologies and safety aspects of lithium ion batteries for electric vehicles. *Journal of Material Cycles and Waste Management* 26(5): 2656-2669. <https://doi.org/10.1007/s10163-024-02028-z>
- Rau, D.A., Bryant, J.S., Reynolds, J.P., Bortner, M.J. & Williams, C.B. 2023. A dual-cure approach for the ultraviolet-assisted material extrusion of highly loaded opaque suspensions. *Additive Manufacturing* 72: 103616. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.addma.2023.103616>
- Ren, Y., Yang, Y., Zhang, J., Ma, Y. & Chen, C. 2025. PVDF/PVB composite polymer electrolyte membranes with high conductivity and excellent cycling performance for lithium-ion batteries. *Journal of Applied Polymer Science* 142(6): e56459. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/app.56459>
- Royal Swedish Academy of Sciences. 2020. *The Nobel Prize in Chemistry 2019*. NobelPrize. org.
- Serra, J.P., Fidalgo-Marijuan, A., Barbosa, J.C., Correia, D.M., Gonçalves, R., Porro, J.M., Lanceros-Mendez, S. & Costa, C.M. 2022. Lithium-ion battery solid electrolytes based on poly(vinylidene fluoride)-Metal thiocyanate ionic liquid blends. *ACS Applied Polymer Materials* 4(8): 5909-5919. <https://doi.org/10.1021/acsapm.2c00789>
- Smoliński, M., Szcześna-Chrzan, A., Trzeciak, T., Ossowska, A., del Campo, E., Żukowska, G.Z., Żero, E., Zybert, M., Ronduda, H., Ostrowski, A., Marczewski, M. & Marcinek, M. 2025. From by-product of the petrol gasification to carbon black in lithium-ion batteries - Novel electron-conductive agents. *Applied Physics A* 131(4): 233. <https://doi.org/10.1007/s00339-025-08266-8>
- Soontornnon, N., Kimura, K. & Tominaga, Y. 2024. Cross-linked ethylene carbonate-based copolymer composite electrolytes filled with TiO₂ for lithium metal batteries. *ACS Applied Energy Materials* 7(9): 4190-4199. <https://doi.org/10.1021/acsaem.4c00530>
- Tang, Y., Chen, J., Mao, Z., Roth, C. & Wang, D. 2022. Highly N-doped carbon with low graphitic-N content as anode material for enhanced initial Coulombic efficiency of lithium-ion batteries. *Carbon Energy* 5(2): e257. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/cey2.257>
- Tanjung, F., Hassan, A. & Hasan, M. 2015. Use of epoxidized natural rubber as a toughening agent in plastics. *Journal of Applied Polymer Science* 132(29): 42270. <https://doi.org/10.1002/app.42270>
- Wang, R., Mei, H., Ren, W. & Zhang, Y. 2016. Grafting modification of epoxidized natural rubber with poly(ethylene glycol) monomethylether carboxylic acid and ionic conductivity of graft polymer composite electrolytes. *RSC Adv.* 6(108): 107021-107028. <https://doi.org/10.1039/C6RA17129J>
- Whba, R., Su'ait, M.S., Tian Khoon, L., Ibrahim, S., Mohamed, N.S. & Ahmad, A. 2021a. Free-radical photopolymerization of acrylonitrile grafted onto epoxidized natural rubber. *Polymers* 13(4): 660. <https://doi.org/10.3390/polym13040660>
- Whba, R., Su'ait, M.S., TianKhoon, L., Ibrahim, S., Mohamed, N.S. & Ahmad, A. 2021b. *In-situ* UV cured acrylonitrile grafted epoxidized natural rubber (ACN-g-ENR) - LiTFSI solid polymer electrolytes for lithium-ion rechargeable batteries. *Reactive and Functional Polymers* 164: 104938. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.reactfunctpolym.2021.104938>
- Wijareni, A.S., Karunawan, J., Ichlas, Z.T., Sumboja, A. & Mubarak, M.Z. 2025. Recent advances in synthesis and fabrication of LiFePO₄ cathode materials: A comprehensive review. *Ionics* 31: 7565-7593. <https://doi.org/10.1007/s11581-025-06460-5>
- Wu, C.C., Ho, Y.C. & Chung, S.H. 2023. A low-self-discharge high-loading polysulfide cathode design for lithium-sulfur cells. *J. Mater. Chem. A* 11(45): 24651-24660. <https://doi.org/10.1039/D3TA05632E>
- Wu, Y., Xie, L., Ming, H., Guo, Y., Hwang, J.Y., Wang, W., He, X., Wang, L., Alshareef, H. N., Sun, Y.K. & Ming, J. 2020. An empirical model for the design of batteries with high energy density. *ACS Energy Letters* 5(3): 807-816. <https://doi.org/10.1021/acsenerylett.0c00211>
- Xiao, S., Huang, L., Lv, W. & He, Y.B. 2022. A highly efficient ion and electron conductive interlayer to achieve low self-discharge of lithium-sulfur batteries. *ACS Applied Materials & Interfaces* 14(1): 1783-1790. <https://doi.org/10.1021/acsami.1c21398>
- Yan, J., Yu, S., Wang, F., Zhang, X., Yang, J., Guo, Q., Huang, L., Liu, J., Zhang, Q. & Lee, P.S. 2024. Long cycle life achieved in polyaniline/SP based self-healing supercapacitor. *Electrochimica Acta* 493: 144394. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.electacta.2024.144394>
- Yoon, H., Behera, P., Lim, S., Yun, T.G., Hwang, B. & Cheong, J.Y. 2024. Review of the mechanistic and structural assessment of binders in electrodes for lithium-ion batteries. *International Journal of Energy Research* 2024(1): 8893580. <https://doi.org/https://doi.org/10.1155/2024/8893580>
- Zhang, L., Wu, X., Qian, W., Pan, K., Zhang, X., Li, L., Jia, M. & Zhang, S. 2023a. Exploring more functions in binders for lithium batteries. *Electrochemical Energy Reviews* 6(1): 36. <https://doi.org/10.1007/s41918-023-00198-2>
- Zhang, Y., Qi, B., Yang, X., Yan, J., Luo, Y., Yang, Z., Lu, L. & Li, C. 2023b. Influence mechanisms of epoxy degradation on surface traps and charge accumulation under DC electrical-thermal stress. *Journal of Physics D: Applied Physics* 56(32): 324001. <https://doi.org/10.1088/1361-6463/accc40>

- Zhao, L., Li, Y., Yu, M., Peng, Y. & Ran, F. 2023. Electrolyte-wettability issues and challenges of electrode materials in electrochemical energy storage, energy conversion, and beyond. *Advanced Science* 10(17): 2300283. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/advs.202300283>
- Zhao, L., Sun, Z., Zhang, H., Li, Y., Mo, Y., Yu, F. & Chen, Y. 2020. An environment-friendly crosslinked binder endowing LiFePO_4 electrode with structural integrity and long cycle life performance. *RSC Adv.* 10(49): 29362-29372. <https://doi.org/10.1039/D0RA05095D>
- Zhao, X., Niketic, S., Yim, C.H., Zhou, J., Wang, J. & Abu-Lebdeh, Y. 2018. Revealing the role of poly(vinylidene fluoride) binder in Si/graphite composite anode for Li-ion batteries. *ACS Omega* 3(9): 11684-11690. <https://doi.org/10.1021/acsomega.8b01388>

*Pengarang untuk surat-menyurat; email: tiankhoon@ukm.edu.my