天然バインダー系固体高分子電解質における充填剤の分 散性の調査

北見工業大学工学部機械電気系助教 パダリティ ジーワン クマール

1. はじめに

固体高分子電解質(SPE)は、全固体型リチウム電池や電気化学キャパシタなど、安全性・ 柔軟性・高エネルギー密度を備えた電気化学的エネルギー貯蔵デバイスの実現に不可欠であ る。中でも、ポリエチレンオキシド(PEO)とリチウム塩(例:LiTFSI、LiCF₃SO₃)を組み合 わせた系は、エーテル酸素を介したLi⁺イオンとの配位能により、モデルマトリクスとして広 く研究されてきた^{1,2)}。しかしながら、PEO系 SPEは常温で半結晶性構造を有するため、セグ メント運動が制限され、固体中でのイオン移動性が著しく低下するという本質的な課題を抱 えている。この問題を克服するために、分子量の調整、共重合、可塑剤の添加、セラミックナ ノフィラーの導入など、非晶性を高めイオン輸送を促進するさまざまな手法が提案されてき た³⁾。とはいえ、これらの手法はしばしばコストの増加や製造工程の複雑化、さらには環境負 荷の増大といった課題を伴う。

さらに、従来の合成高分子マトリクスは再生可能性が低く、生分解性にも乏しいため、持続可 能性や廃棄後の処理に関する懸念がある。こうした背景のもと、**天然由来の多糖類**は、環境適 合性、膜形成能、さらにはイオン伝導に適した官能基の豊富さといった利点を有する有望な代 替材料として注目されている。中でも、ガラクトキシログルカンを主成分とする多糖である タ マリンドガム(TG)は、水酸基の含有量が多く、親水性や機械的柔軟性に優れていることから、 高分子電解質マトリクスとしての応用が期待される。一方で、その固体電気化学用途における 可能性は、まだ十分に検討されていないのが現状である^{4,5)}。

本研究では、再生可能な生体高分子を基盤とする固体高分子複合電解質の構築を目的とし、高 分子マトリクスとして TG を用い、アニオンの解離性が高く導電性向上に寄与するリチウム三 フルオロメタンスルホン酸塩(LiCF₃SO₃)を導入した⁶⁾。本稿では、せん断混練および熱圧縮 といった加工条件が塩の分散状態や分子間相互作用、電気化学特性に与える影響を系統的に 評価した。さらに、構造-物性相関を明らかにすることで、環境調和型かつ高性能な SPE の合 理的設計指針の確立を目指した。

2. 天然高分子電解質における課題と塩分散性の評価

天然高分子 SPE の課題とイオン輸送の理解: 天然高分子は**持続可能性**の観点から優れた利点 を有しているが、SPE への実用的な適用には、塩の**不均一な分散**、界面接触不良、機械的強 度の不足など、いくつかの課題が存在する。ポリマー中でリチウム塩が不均一に分布する と、孤立したイオンドメインの形成や、連続的なイオン伝導経路の断絶、界面抵抗の増大が 生じ、デバイスの性能および長期的な安定性を著しく低下させることが知られている。この ような課題を克服するためには、均一な微細構造の形成と、連続的なイオン輸送を促進する 処理プロセスの導入が不可欠である⁴⁾。SPE におけるイオン輸送は、ポリマー鎖のセグメン ト運動、フィラー表面での拡散、リチウムイオンのホッピングの三つの主要なプロセスから 構成されている。SPE 中にはアモルファス相と結晶相が共存しているため、ポリマー中にお けるフィラーおよび塩の分散状態を把握することは依然として重要な課題である。従来は、 フィラーとポリマーの比率を調整することで導電性を最適化する手法が主流であったが、フ ィラーが凝集して三次元構造を形成することにより、むしろ電気化学特性を劣化させる場合 もある。

電気化学インピーダンス分光法による分散評価と応用:本研究では、スラリー中の粒子分散状



態を評価する新しい方法として、その場電気化学 インピーダンス分光法(EIS)を提案した。広い周 波数領域でのインピーダンス測定と、電気二重層 容量の変化に基づく解析により、スラリー内部構 造を定量的に評価することを目指した。

図A)~D)は、様々な個体高分子電解質(SPE)におけるリチウムイオン種の予想される輸 送メカニズムとともに、フィラー固形分含量の増加とポリマーマトリックス内の均一分 散をグラフ化したものである。 初期調査(フェーズ 1) として、TG を基材とす るスラリー中におけるカーボンブラック(CB)の せん断分散挙動を、その場 EIS によって解析した。

本事例研究は、本助成金の支援を受けて実施したものである。非ニュートン性 TG スラリーに おける CB の分散挙動を評価するため、カスタム設計された四端子導電度セル(SB1400、EC Frontiers 社より本助成金にて購入)を使用した。CB 濃度は 0.3~5.0 wt.%とし、0.5~3.0 mL/min の流量(約1~10 s⁻¹のせん断速度)で評価を行った。図1に、CB が孤立した凝集体 から連結されたパーコレーションネットワークへと変化する概念的メカニズムを示す。この 変化は、インピーダンススペクトル上に明確に現れる。CB の分散状態(良好分散、凝集、アグ ロメレート化、パーコレーション化)は、周波数依存的な電気二重層容量(C_{d1}-H, C_{d1}-M, C_{d1}-L)によって識別可能であると仮定した。これらは、それぞれ異なる界面構造を表し、等価回 路(抵抗と定数位相素子(CPEs))によってモデル化された。EIS データは BioLogic VSP-300 ポテンショスタット(7 MHz~10 mHz、振幅 10 mV)を用いて取得し、多階層分散モデルにフ ィッティングを行った(図2参照)。

図 3 に示すように、CBを 3.2 wt.%以上含むスラリーは静止状態において強い Cal-H 成分を示



し、十分に発達した三次元導電ネットワーク の形成を示唆している。流速を上げると C_{d1}-H 成分は減少し、剪断によるネットワークの 断片化が生じていることを示している。一方 で、**高濃度スラリー**では C_{d1}-M 成分が増加し、 CB ドメインの動的な再凝集が起こっている と考えられる。これに対し、C_{d1}-L 成分は全条 件下でほぼ一定であり、接続不良な凝集体が 持続的に存在していることを示している。これらの結果は、流動下におけるインサイチュ交流



インピーダンス測定法が、分散状態および導電ネットワ ークの遷移を鋭敏に検出できる有効な手法であること を確認している。各容量成分の変動は、加工条件と微細 構造の変化を定量的に関連付ける枠組みを提供し、合理 的なスラリー設計を可能にする。従来の静止系における 粒子分散評価と比較して、本研究では**剪断応答性を有す** る電気化学的診断技術を導入し、導電ネットワーク形成 のリアルタイム評価を実現した。また、本手法を産業用 電極コーティング速度(10 m/min)における CB スラリ ーの評価に適用し、実加工環境との整合性を確認した。 これらの知見は、剪断履歴や分散制御が重要となる電池 電極、導電性ペースト、プリンタブルエレクトロニクス 等の幅広い分野への応用が期待される。本研究成果は以

下の国際学会2件、国内学会2件で発表した。

- Jeevan Kumar, P. 他, "Better Knowing the Carbon Particle Network Structure in Electrode Slurry for Enhanced Lithium-Ion Battery Performance," ECS PRiME 2024, Honolulu, Hawaii, USA, 2024 年 10 月 6 日-11 日
- Fukamizu, K. 他, "Evaluation of Dispersion of Carbon Materials in Electrode Slurry," 日本セラミッ クス協会 東北・北海道支部合同学会, 2024 年 11 月 12 日, 札幌コンベンションセンター
- 3. Fukamizu, K. 他, "Evaluation of Conductive Additive Dispersion in Electrode Slurry by EIS," 粉体工 学会 2024 年度秋期大会, 2024 年 11 月 26 日, 東京ビッグサイト
- 4. Jeevan Kumar, P. 他, "Carbon-Based Slurry Analysis Using Impedance Spectroscopy," 第 38 回日韓 セラミックスセミナー, 2024 年 10 月 31 日-11 月 3 日, 日本

この初期研究に続き、現在は産業規模の電極製造に関連するさらに高い塗工速度にまで対象 を拡大して調査を進めている。本研究成果を詳述した論文は、The Electrochemical Society 誌への投稿に向けて現在準備中である。

リチウム塩分散挙動の追跡と固体電解質設計への展開: 機械的入力の影響を分離するために、 TG-LiCF₃SO₃系複合体をせん断混練の有無により調製した。せん断混練は、Thinky 社製プラネ タリーミキサー(ARE-310、日本)を用い、2000 rpm で 30 分間混練した後、500 rpm で 1 分間 の脱泡処理を行った。得られたスラリーは、溶液鋳造法により成膜し、Yamato Scientific 社 製真空乾燥炉(ADP201、日本)を用いて真空乾燥した。必要に応じて、Carver 社製油圧プレス (Carver Inc.、米国)により、80°C、10 MPa、10 分間で熱圧縮処理を行った。電解質性能に 対する塩濃度の影響を評価するために、TG と Li の重量比を 1:0.5、1:1、1:2、および 1:3 と した複合膜を作製した。

すべての原料は市販品を用いた。TG(分子量 ≈ 250,000、CAS RN: 39386-78-2)は東 京化成工業株式会社(TCI、日本)より入手した。トリフルオロメタンスルホン酸リチウム (LiCF₃SO₃、純度 99%)は岸田化学株式会社(日本)より、ビス(トリフルオロメタンスルホ ニル)イミドリチウム(LiTFSI、純度 99.95%)はシグマ・アルドリッチ(メルク、ドイツ)よ り購入した。全試料調製には、Milli-Q純水製造システムで得られた超純水 (18.2 MΩ·cm)を溶媒として使用した。塩とポリマー間の構造
的および分子的相互作用は、フーリエ変換赤外分光法(FTIR;
JASCO FT/IR-6100、株式会社 JASCO、日本)および X線回折法 (XRD; X'Pert PRO、Philips、オランダ)により評価し、両者
の適合性および結晶性に関する情報を得た。さらに、微細構造
の観察には電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM; Hitachi SU-8000、株式会社日立ハイテク、日本)を用い、熱的挙動の解析
には示差走査熱量測定(DSC; Q2000、TA Instruments、米国)
を行った。イオン伝導度は、BioLogic 社製ポテンショスタット (SP-300、BioLogic Science Instruments、フランス)を用い
た交流インピーダンス測定(EIS)により評価し、7 MHz~0.1 Hz
の周波数範囲、交流振幅 10 mV で測定を行った。



⊠4(c) Experimental flowchart

3. 結果

フェーズ 1-TG-LiCF₃SO₃ 複合膜の合成および物性評:

FTIR スペクトルによる構造変化の解析:本研究では、さまざまな塩分濃度(TG:Li = 1:0.5~ 1:3)における TG-LiCF₃SO₃複合膜の FTIR スペクトルを調査した。図 5 に示すように、調製直 後(左)およびホットプレス後(右)の状態で測定を実施し、膜の形態変化についても確認し た。CH₂/CH₃の曲げ振動、グルコピラノース環の振動、0-H/N-H に関連する吸収帯が主要な振 動モードとして同定された。スペクトルの変化は、塩の配位効果および熱処理による構造再編 成を反映している⁷⁰。調製直後の膜では、広がった 0-H 伸縮振動帯(約 3000~3700 cm⁻¹)、 CH₂/CH₃の対称および非対称伸縮振動(2926 および 2850 cm⁻¹)、およびグルコピラノース骨 格に由来する指紋領域の吸収帯(約 1040、943、896 cm⁻¹)が観察された⁸⁰。LiCF₃SO₃濃度の 増加に伴い、これらの吸収帯において強度変化およびわずかなピークシフトが確認され、初期 の塩-ポリマー配位が示唆された。ホットプレス処理後には、これらの変化がより顕著となっ た。特に 1300~900 cm⁻¹の指紋領域では、C-0 および C-C 伸縮に関連するピークが減衰および 広がりを示し、強化されたイオン配位およびポリマーチェーンの緩和が確認された。CH₂のロ ッキング(約 720 cm⁻¹)およびシザースモード(約 1455 cm⁻¹)の鋭化は、チェーンの秩序性



図5:(a) TG-LiCF₃SO₃復合膜のFTIRスペクトル(左:作製直後、右:ホットプレス処理後)。(b) ホットプレス処理前後の膜表面写真。(c)主な振動モードの分子構造およびグルコビラノース環の振動モードを示した模式図。

向上と振動自由度の低下を示しており、より緻密な膜構造の形成と整合する。さらに、1656 cm⁻¹(H-0-H曲げ/アミドI)および約1550 cm⁻¹(アミドII)領域における変化は、水-ポリ マー相互作用の変化およびアミド環境に対する塩の影響を示している。特筆すべきは、約1941 TGには見られず、CH2曲げと C-0 伸縮の複雑な振動結合による倍音または組み合わせ振動に起 因すると考えられる。Li⁺の導入により、局所振動環境が変化し、二次的な遷移が活性化され たことを示している。さらに、2451~2156 cm⁻¹の広帯域は、CF₃SO₃-陰イオン中の CF₃基の倍 音・組み合わせバンド、またはLi⁺配位殻の振動モードに対応すると考えられ、塩濃度の上昇 および1990 cm⁻¹の領域に新たに現れた、または強化された吸収バンドである。これらは元の および熱処理に伴ってその強度が増加した。



XRD による結晶性評価と塩分散性の確:
図 6 に示す LiCF₃SO₃含有量を変化させた
TG-LiCF₃SO₃複合膜の XRD パターン。(左)
調製直後、(右) 熱圧縮後の状態。回折強度
は 2 θ に対してプロットしている。
すべての試料において、2 θ ≈ 20° 付近に
幅広い回折ハローが確認されており、TGマ
トリックスが主にアモルファス構造を有
することを示している⁹⁰。LiCF₃SO₃の含有

量が増加するにつれて、このアモルファスピークは徐々に幅広くなり、強度もわずかに低下す る傾向がみられる。これは、塩による水素結合ネットワークの攪乱に起因し、分子間のパッキ ングが不規則化することを示唆している。なお、いずれの組成においても LiCF₃SO₃に由来す る結晶性ピークは現れず、塩が TG マトリックス内に均一に分散、あるいは完全に溶解してい ることが示される。熱圧縮後の試料では、アモルファスピークのわずかな鋭鋸化と高角側(2θ) へのシフトが観察され、これは水分除去や塩-ポリマー相互作用の増強、高分子鎖の再配向に よるパッキングの緻密化を示唆する。高塩濃度(TG:Li = 1:3)においても相分離や結晶性相 の生成が認められないことから、TG と LiCF₃SO₃の高い相溶性および固体高分子電解質マトリ



図**7**:異なる**TG**と**LiCF₃SO**₃の比率に おける膜の平均厚さとホットプレ ス処理の影響比較 ックスとしての適性が確認された。

膜厚測定による物理的特性の把握:図7に示す膜厚デー タは、LiCF₃SO₃塩濃度および熱圧縮処理が、TG ベース 固体高分子電解質膜の物理的寸法に及ぼす影響を明確 に示している。図から明らかなように、Li 塩の比率を 増加させることで、いずれの処理条件下においても膜 厚が系統的に増加する傾向が確認された。これは、 LiCF₃SO₃の添加により膜中の固形成分の総量が増加し、 特に高添加組成(1:2および1:3)において質量および 体積への寄与が顕著となるためである。熱圧縮処理後 は、すべての膜において調製直後の膜よりも膜厚が一 様に減少しており、これは密度の増加(緻密化)を反映 している。この効果は、塩濃度の低いサンプルで特に顕著であり、加熱・加圧によるポリマー -塩マトリックスの塑性流動および水分の蒸発に起因すると考えられる。この膜厚の減少は、 熱圧縮下における高分子鎖の可動性およびセグメント間パッキングの向上を示唆しており、 FTIR および XRD で観察された分子間相互作用や塩分散性の改善とも整合する。以上の結果か ら、膜厚測定は成膜プロセスの物理的指標として機能するだけでなく、組成的および熱的要因 により駆動される構造的緻密化挙動の理解における有効な指標であることが示された。



図8:TG-LiCF₃SO₃複合膜の交流(AC)イオン伝導 度(左:作製直後、右:ホットプレス処理後)。膜 試料はSUS電極を用いたEIS測定により評価。模式図 は電気化学インピーダンス測定時のセル構造を示す。

AC 導電率測定によるイオン伝導性評価: 図 8. 各塩濃度(TG:Li = 1:0.5、1:1、1:2、1:3)にお ける TG-LiCF₃SO₃複合電解質の周波数依存型 AC 導電率(σ_ac)の挙動を、調製直後および熱圧縮 後の状態で示す。導電率は、SUS 電極を遮断電極 と仮定し、Nyquist プロット高周波領域の Z_re か ら算出した。塩濃度の増加(1:0.5→1:2)に伴い、 導電率が大きく向上し、プラトー領域は高周波側 ヘシフトする傾向を示す。1:0.5 および 1:1 では、 移動可能な Li⁺が不足しており、導電率は低い。 一方、1:2 および 1:3 では導電率が増加し、これ は塩濃度上昇によるイオン解離促進と、移動キャ リアの増加に起因する。この傾向は FTIR スペク

トルの変化とも一致しており、1040 cm⁻¹(骨格振動)、~3300 cm⁻¹(0-H 伸縮)、~720 cm⁻¹(CH₂ 揺動)に顕著な変化が観察された。これにより、塩との配位が強化され、ポリマー鎖の可動性 が向上し、イオン移動度が高まったと考えられる。XRD 結果からも、塩添加によるアモルファ ス性の増加と結晶性障壁の低下が確認され、特に 1:2 および 1:3 においてセグメント運動性 が顕著に向上している。これが導電率の上昇に直接寄与している。

ホットプレス処理後のすべての試料において、さらなる伝導度の向上が見られた。これは膜の 孔隙率減少および密度の増加(膜厚測定によって確認)により、構造均質性およびイオン輸送 経路の連続性が改善されたためである。全試料において、単一のプラトー領域が観察され、こ れは均一に分散した Li*イオンによって支配される主たるイオン伝導機構の存在を示してい る。最も高い伝導度は TG:Li = 1:2の組成で得られた。これは、塩の供給量とポリマーの可動 性の最適なバランスが得られたことを意味している。一方、1:3の最高塩濃度では、構造の緻 密化および塩配位の強化が見られたにもかかわらず、わずかな伝導度の低下が観察された。こ れは、ポリマーの溶媒和能力を超える塩の過剰添加により、Li*の凝集やクラスタリングが生 じ、イオン輸送が阻害された可能性を示唆している。以上の結果より、FTIR、XRD、膜厚、お よび交流伝導度の各データは相互に整合しており、TG ベースの複合電解質におけるイオン伝 導性は、適切な塩含有量およびホットプレスによる熱的緻密化によって最適化されることが 明らかとなった。特に中間組成(TG:Li = 1:2)と熱処理の組み合わせが、高性能かつ持続可 能な固体ポリマー電解質の設計において最も有効であると結論づけられる。

5. フェーズ2およびフェーズ3における戦略的方向転換の理由

研究計画の概要とフェーズ1の完了:

当初の研究計画は 3 つのフェーズで構成されていましたが、本研究では助成期間の 1 年内に フェーズ 1 を予定通り完了しました。フェーズ 2 およびフェーズ 3 の完全実施に代えて、戦 略的に方向転換を行い、TG を基材としたスラリー中のカーボン粒子の分散挙動に着目した補 完的な検討を実施しました。この研究は粒子分散、イオン輸送経路、持続可能な電極設計とい った本研究の基本方針と高い整合性を保っています。

フェーズ2の予備検討で明らかになった技術的課題:

フェーズ2の予備検討において、**重要な技術課題**が判明しました。具体的には、セラミックフ ィラーとして用いた LLZO が水系バインダー懸濁液中で時間経過とともに表面に Li₂CO₃層を 形成し、これがイオン伝導性および界面安定性を著しく低下させることが確認されました。そ のため、代替となるセラミック材料の探索に研究方針を転換しました。

代替セラミック材料 LiTi₂(PO₄)₃(LTP)の合成と評価:

その結果、我々の研究グループは新たに LiTi₂(PO₄)₃(LTP) 粒子の合成に成功し、そのイオ ン伝導性および水系プロセス適合性を確認しました。これらの成果は以下の論文にて公開さ れています。

Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, 72 (2025) S125-S128 https://doi.org/10.2497/jjspm.14C-T1-04

また、本 TG ベース分散系の研究に貢献した牧本祐汰氏は、現在指導教員の大野智也教授の下、 修士課程(M1)に進学し、本研究テーマを修士論文の一環として継続しています。

戦略的方向転換の意義と研究目標との整合性:

この戦略的転換は、フェーズ 1 で得られた実験成果と技術的知見を最大限に活用するととも に、持続可能な高分子材料設計および水系プロセスにおける実務的課題に関する学術的訓練 の機会を提供しました。従来の合成高分子は非水系溶媒を必要とし、大規模加工時に炭素由来 の副生成物を排出しますが、TG ベースのシステムは環境負荷低減とプロセスの簡略化におい て優れた利点を持っています。したがって、本研究は次世代電池用持続可能材料の開発という 最終目標と高い整合性を持つ取り組みであると言えます。

6. まとめ

本研究では、TGとLiCF₃SO₃を用いた固体高分子複合電解質の設計・評価を行った。塩濃度 の増加によりLi⁺イオンの配位と輸送が促進され、TG:Li比1:2においてイオン伝導度が最適 となることを明らかにした。さらに、熱圧縮処理によって膜の密度とイオン伝導経路の連続性 が向上し、伝導度が大幅に増加した。構造解析の結果、均一に分散した塩が非晶質のTGマト リクス内に存在し、熱処理によりポリマーチェーンの緩和と緻密な充填が促進されることが 示された。最高塩濃度における伝導度のわずかな低下は、イオンの凝集による輸送障害の可能 性を示唆している。また、フェーズ2および3の戦略的方向転換により、TGベースの粒子分 散および代替セラミック材料の検討を進め、持続可能な材料設計の課題に対処した。この取り 組みは次世代エネルギー貯蔵デバイス向けの環境調和型高性能固体電解質開発に寄与するも のである。以上の成果は、再生可能なバイオ高分子を活用した固体ポリマー電解質の合理的設 計の基盤を築き、今後の高機能電池材料研究における有望な方向性を示している。

謝辞

本プロジェクトを支援してくださった天野研究助成に心より感謝いたします。助教としての初めての助 成金となりました。指導教官の大野 智也 教授には特に感謝申し上げます。また、本プロジェクトに貴 重な貢献をしてくれた牧本 祐汰さん、深水 海斗さんにも感謝いたします。

参考文献

1. Q. Yu, K. Jiang, C. Yu, X. Chen, C. Zhang, Y. Yao, B. Jiang, and H. Long, "Solid polymer electrolytes based on natural polysaccharides," *Chinese Chemical Letters*, vol. 32, no. 9, pp. 2659–2678, 2021.

2. Y. Chen, Y. Wang, Z. Li, D. Wang, H. Yuan, H. Zhang, and Y. Tan, "A flame retarded polymer-based composite solid electrolyte improved by natural polysaccharides," *Composites Communications*, vol. 26, 100774, 2021.

3. J. C. Barbosa, R. Goncalves, C. M. Costa, V. de Zea Bermudez, A. Fidalgo-Marijuan, Q. Zhang, and S. Lanceros-Mendez, "Solid polymer electrolytes based on natural and sustainable materials," *Materials Advances*, vol. 2, no. 12, pp. 3790–3805, 2021.

4. L. Sampath Kumar, P. Christopher Selvin, and S. Selvasekarapandian, "Ionic conductivity and dielectric study on natural polymer-based polymer electrolytes," *Polymer Bulletin (Heidelberg, Germany)*, vol. 78, no. 4, pp. 1797–1819, 2021.

5. C. S. Kumar and S. Bhattacharya, "Tamarind seed: properties, processing and utilization," *Critical Reviews* in Food Science and Nutrition, vol. 48, pp. 1–20, 2008.

6. M. Hema, P. Tamilselvi, and G. Hirankumar, "Influences of LiCF₃SO₃ and TiO₂ nanofiller on ionic conductivity and mechanical properties of PVA:PVdF blend polymer electrolyte," *Ionics*, vol. 23, no. 10, pp. 2707–2714, 2017.

7. S. Ramesh and L. J. Yi, "FTIR spectra of plasticized high molecular weight PVC-LiCF₃SO₃ electrolytes," *Ionics*, vol. 15, pp. 413–420, 2009.

8. K. Chawananorasest, P. Saengtongdee, and P. Kaemchantuek, "Extraction and characterization of tamarind (*Tamarindus indica* L.) seed polysaccharides (TSP) from three different sources," *Molecules*, vol. 21, no. 6, 775, pp. 1–9, 2016.

9. B. Aziz and Z. H. Z. Abidin, "Role of hard-acid/hard-base interaction on structural and dielectric behavior of solid polymer electrolytes based on chitosan-XCF₃SO₃ (X = Li⁺, Na⁺, Ag⁺)," *Journal of Polymers*, vol. 2014, Article ID 906780, pp. 1–9, 2014.