

# REKAYASA PEMBUATAN MEMBRAN SELULOSA ASETAT UNTUK PEMISAHAN LARUTAN DETERJEN

## DEVELOPMENT OF ACETATE-CELLULOSE MEMBRANE FOR DETERGENT REMOVAL

Budi Prasetyo<sup>1)</sup>, Tokok Adiarto<sup>1)</sup> dan Eddy S. Soedjono<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Jurusan Kimia FMIPA Unair

<sup>2)</sup> Jurusan Teknik Lingkungan FTSP-ITS

### Abstrak

Membran selulosa asetat dibuat dengan mencampurkan selulosa asetat, formamida dan aseton pada berbagai komposisi dan kondisi. Membran tersebut diuji untuk pemisahan limbah deterjen dengan alat uji "dead-end". Harga fluks dan efisiensi rejeksi dipengaruhi oleh karakteristik membran meliputi komposisi dan ketebalan membran, tekanan dan waktu operasi. Dari hasil penelitian, semakin banyak komposisi selulosa asetat, fluks membran semakin menurun, sedang efisiensi rejeksi naik. Variasi ketebalan membran tidak mempengaruhi efisiensi rejeksi, tetapi fluksnya menurun sangat tajam. Tekanan optimum untuk mendapatkan fluks dan efisiensi rejeksi yang tinggi adalah 1,75 bar untuk membran dengan komposisi 14,8% (b/b) selulosa asetat dan ketebalan 0,083 mm serta waktu operasi 75 menit. Hasil optimum yang didapat adalah fluks permeat 432,92 L/m<sup>2</sup> hari dan nilai efisiensi rejeksi sebesar 93,09%.

Kata kunci : *dead end*, deterjen, membran, selulosa asetat

### Abstract

Acetic cellulose membrane is made from acetic cellulose, formamide and acetone using variations of composition and condition. Flux and rejection value was influenced by the characteristic of the composition and thickness membrane, pressure and time of operation. The result showed that flux would decrease and the rejection would increase if the composition of the acetic cellulose too much, while the thickness didn't influence rejection score, but decreased the flux. The optimum pressure of operation to obtain the high flux and rejection on their process was 1,75 bar for membrane composition 14,8% (w/w) of acetic cellulose and the thickness 0,083 mm for membrane with operation time 75 minute. The optimum result was flux permeate 432,92 L/m<sup>2</sup> days and 93,09% rejection score.

Keywords : dead end, detergent, membrane, acetic cellulose

## 1. PENDAHULUAN

Membran merupakan lapisan tipis yang bersifat semipermeabel, bekerja berdasarkan sifat-sifat fisik dalam proses pemisahan. Pemisahan dengan menggunakan membran pada dasarnya merupakan proses pemindahan materi secara selektif yang disebabkan oleh adanya gaya yang berhubungan dengan parameter tertentu antara dua media yang dipisahkan, karena adanya perbedaan potensial listrik-kimia, dan tekanan (Mulder, 1991).

Jiararatananon dan Chanacai (1996), menyebutkan pada umumnya teknik pembuatan membran terjadi melalui proses polimerisasi dari bahan dasar membran tersebut. Monomer-monomer dari bahan dasar membran membentuk senyawa dengan struktur ikatan tertentu dan pada umumnya senyawa itu mempunyai berat molekul yang besar.

Pada polimer yang terbentuk, biasanya mempunyai berat molekul yang besar, rongga antar rantai polimernya yang membentuk pori-pori yang memiliki diameter rata-rata tertentu tergantung dari bahan dasarnya. Membran yang dibentuk dengan proses polimerisasi biasa dapat digunakan dalam proses pemisahan berdasarkan sifat fisik zat-zat yang akan dipisahkan, terutama ukurannya (Wenten, 1999).

Membran yang baik haruslah mempunyai harga permeabilitas (fluks) dan permeaktivitas (efisiensi rejeksi) yang tinggi (Lygre dkk, 1991).

Kendala utama dalam penggunaan proses membran dengan tekanan sebagai daya kendalinya terutama pada aliran umpan yang mengandung banyak komponen adalah terjadinya *fouling* pada membran. *Fouling* adalah suatu fenomena yang disebabkan oleh deposisi dan akumulasi secara irrever-

sibel dari partikel-partikel submikron pada permukaan membran dan/atau kristalisasi serta presipitasi dari partikel-partikel yang berukuran lebih kecil pada permukaan atau di dalam membran itu sendiri (Jiararatananon dan Chanacai, 1996).

Proses terjadinya *fouling* pada membran terdiri dari tiga tahap. Tahap pertama adalah polarisasi konsentrasi, yaitu peningkatan lokal konsentrasi solut pada permukaan membran. Polarisasi konsentrasi merupakan peristiwa yang dapat dibalikkan (reversibel), karena efeknya dapat dikurangi atau dihilangkan dengan menurunkan tekanan operasi atau menurunkan konsentrasi umpan. Tahap kedua terjadinya *fouling* adalah perpindahan solut dari permukaan membran ke dalam material membran, dalam hal ini adalah pori-pori membran hingga antara solut yang satu dengan yang lain benar-benar teradsorpsi atau melewati serangkaian langkah desorpsi atau adsorpsi yang reversibel dalam pori-pori membran.

Tahap terakhir adalah proses adsorpsi solut pada pori membran sehingga terjadi pemblokiran ataupun penyempitan ukuran pori membran. Kedua tahap terakhir inilah yang disebut *fouling*, karena mengakibatkan penurunan fluks. Penurunan nilai fluks ini dapat terjadi dalam satu atau beberapa tahap, tergantung pada sistem, namun biasanya berlangsung cepat pada menit-menit awal operasi dan diikuti dengan penurunan fluks secara perlahan (Nilson, 1990).

Yang menjadi permasalahan adalah bagaimana mendapatkan harga efisiensi rejeksi yang optimal (100%) tetapi dengan harga fluks yang cukup tinggi dengan menggunakan membran asimetris yang tipis tetapi kuat.

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk menganalisa pengaruh komposisi bahan membran terhadap nilai fluks dan efisiensi rejeksi, menentukan pengaruh ketebalan untuk mendapatkan membran dengan dengan nilai fluks dan rejeksi yang tinggi. Serta menentukan efisiensi kinerja membran selulosa asetat untuk pemisahan limbah deterjen

## 2. METODOLOGI

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini berderajat kemurnian pro analisis (pa), kecuali selulosa asetat, aseton, formamida, metilen biru, NaLS, larutan buffer, kloroform, glasswool, dan

deterjen komersil. Alat-alat yang digunakan meliputi: alat cetak membran, stirer labnco L-34, alat uji membran sistem *dead-end*, mikrometer, spektrofotometer UV-VIS shimadzu, dan peralatan gelas pada umumnya

Penelitian ini terdiri dari tiga tahap pengujian, yaitu tahap persiapan sampel, tahap pembuatan membran, dan tahap aplikasi membran untuk pemisahan limbah deterjen.

Beberapa ml sampel dimasukkan ke dalam corong pisah 60 ml. Larutan ditambah 20 ml akuades, 2 ml larutan buffer, 1 ml larutan metilen biru, dan diekstraksi dengan 3 ml kloroform selama 1 menit. Fasa kloroform dipisahkan dari fasa airnya dan diambil bagian bawah ( $\text{CHCl}_3$ ), dimasukan ke dalam corong pisah kedua yang berisi 22 ml akuades dan 1 ml larutan metilen biru. Larutan diekstraksi selama 1 menit kemudian fasa kloroform disaring dengan glasswool, dan dikumpulkan secara kuantitatif ke dalam labu ukur 10 ml kemudian ditambah kloroform sampai tanda batas. Hasil ekstraksi diukur serapannya pada panjang gelombang 650 nm dengan spektrofotometer UV-VIS.

Dalam pembuatan membran ini yang akan divariasi adalah komposisi dari bahan polimer dan aditifnya sedangkan pelarutnya dibuat tetap sehingga perbandingan selulosa asetat, formamida, aseton, masing-masing dapat dilihat pada Tabel 1.

**Tabel 1.** Variasi Bahan Penyusun Membran

Membran ke-	Perbandingan bahan penyusun membran (% b/b)		
	Selulosa asetat	Formamida	Aseton
1	14,0	36,0	50,0
2	14,5	35,5	50,0
3	15,0	35,0	50,0
4	15,5	34,5	50,0
5	16,0	34,0	50,0

Misalnya untuk pembuatan membran 1, ditimbang aseton 50 gram dan dimasukan ke dalam labu Erlenmeyer bertutup yang dilengkapi dengan pengaduk magnetik, selanjutnya diletakkan di atas stirer. Ke dalam labu Erlenmeyer dimasukan berturut-turut formamida (36,0 gram) dan selulosa asetat (14,0 gram) secara perlahan-lahan sambil tetap diaduk selama 24 jam, sehingga diperoleh larutan dope. Untuk menghilangkan gelembung larutan diamankan selama 24 jam lagi.

Pencetakan membran dilakukan di atas kaca datar dan larutan dope diratakan dengan silinder stainless steel. Pengaturan ketebalan membran di tiap sisi kaca dilakukan dengan penempelan selotip setelah rata, setelah itu dimasukkan ke dalam bak koagulasi yang berisi air yang dijaga suhunya pada 28°C. Setelah larutan menjadi padat membran dibilas dengan air mengalir beberapa saat untuk menghilangkan sisa pelarut dan selanjutnya membran yang sudah jadi dapat disimpan di dalam akuades. Selanjutnya membran yang ke-2 dan seterusnya dibuat dengan perlakuan yang sama seperti membran pertama.

Tebal membran diukur beberapa kali menggunakan mikrometer, kemudian dihitung ketebalan rata-ratanya. Rata-rata ketebalan membran hasil pengukuran dapat dilihat pada Tabel 2.

**Tabel 2.** Variasi Pengukuran Tebal Membran

Sisi Membran	S1	S2	S3	S4	S5	Tebal Rata-rata (mm)
I	0,080	0,085	0,090	0,080	0,080	0,083
II	0,150	0,150	0,160	0,155	0,150	0,153
II	0,245	0,250	0,250	0,235	0,240	0,248

Keterangan :

- S1 = sisi kiri membran
- S2 = sisi kanan membran
- S3 = sisi tengah membran
- S4 = sisi atas membran
- S5 = sisi bawah membran

Larutan induk NaLS 21, 25 ppm dipipet 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; 1,4; 1,6 ml, kemudian masing-masing dimasukkan ke dalam corong pisah 60 ml. Larutan ditambah 20 ml akuades, 2 ml larutan buffer, 1 ml larutan metilen biru, dan diekstraksi dengan 3 ml kloroform selama 1 menit. Fasa kloroform dipisahkan dari fasa airnya dan diambil bagian bawah (CHCl<sub>3</sub>), dimasukkan ke dalam corong pisah kedua yang berisi 22 ml akuades dan 1 ml larutan metilen biru, larutan diekstraksi selama 1 menit, kemudian fasa kloroform disaring dengan glasswool, dikumpulkan secara kuantitatif ke dalam labu ukur 10 ml, dan ditambah kloroform sampai tanda batas.

Kemudian akan diperoleh larutan standart NaLS masing-masing dengan konsentrasi 0; 0,425; 0,850; 1,275; 1,700; 2,125; 2,975; 3,400 ppm. Diukur serapannya pada panjang gelombang 650 mm dengan spektrofotometer UV-VIS dan digunakan blanko kloroform. Data yang diperoleh digunakan untuk membuat kurva kalibrasi dengan plot absorbansi terhadap konsentrasi.

Membran yang akan diuji dipotong berbentuk lingkaran seukuran dengan diameter alat penguji (5 cm) dan membran diletakkan di bagian bawah alat penguji yang dilengkapi dengan penyaring dan dilapisi dengan kertas saring di bawah membran sebagai penahan membran. Sebelum limbah detergen dimasukkan dalam alat uji membran, terlebih dahulu membran dikompaksi selama 1 jam dengan air suling dengan tujuan pori-pori membran akan bekerja lebih efektif.

Setelah itu limbah deterjen dimasukkan ke dalam alat dan ditutup rapat. Tekanan 1 bar dialirkan ke dalam alat. Hasil saringan akan keluar melalui bagian samping alat dan dicatat volume yang dihasilkan tiap waktu tertentu misalkan tiap 15 menit. Hasil dari permeat dapat diukur konsentrasinya dengan spektrofotometer sehingga diketahui nilai fluks dan efisiensi rejeksinya.

### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Nilai fluks dan efisiensi rejeksi membran ditentukan untuk setiap run percobaan dengan alat uji membran *dead-end*. Hasil perhitungan nilai fluks dan rejeksi untuk variasi komposisi membran tertera pada Tabel 3.

**Tabel 3.** Nilai Fluks dan Rejeksi untuk Setiap Variasi Komposisi Membran.

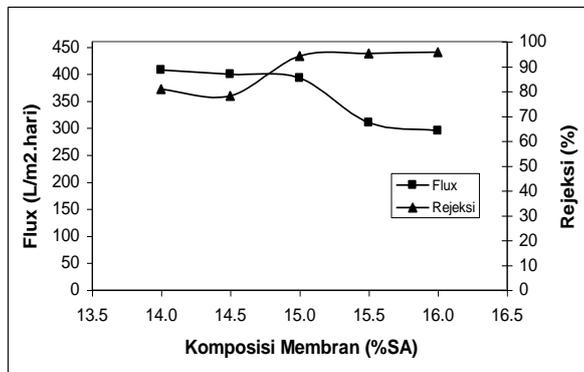
Komposisi Membran (% CA)	Volume (ml)	Volume Rata-rata (ml)	Flux (L/m <sup>2</sup> . hari)	A	A rata-rata	Cp (ppm)	R (%)
14,0	8,45	8,35	407,48	0,065	0,065	0,4417	80,85
	8,25			0,065			
	8,30			0,064			
14,5	8,15	8,17	399,65	0,071	0,070	0,5031	78,19
	8,20			0,070			
	8,15			0,070			
15,0	8,15	8,02	392,32	0,040	0,040	0,1350	94,15
	8,00			0,039			
	7,90			0,040			
15,5	6,35	6,33	309,65	0,038	0,038	0,1104	95,21
	6,45			0,038			
	6,20			0,038			
16,0	6,15	6,02	294,48	0,037	0,037	0,0982	95,74
	5,90			0,037			
	6,00			0,037			

Keterangan :

$$\text{Flux} = V/A.t$$

$$\begin{aligned}
 A &= 0,0019635 \text{ m}^2 \\
 C_f &= 2,3067 \text{ ppm} \\
 R &= (C_f - C_p) / C_f \\
 t &= 15 \text{ menit}
 \end{aligned}$$

Hubungan komposisi membran dengan fluks dan koefisien rejeksi seperti tertera pada Gambar 1.



**Gambar 1.** Hubungan Komposisi Membran Dengan Fluks Dan Koefisien Rejeksi

Gambar 1 terlihat membran selulosa asetat 14,5% nilai efisiensi rejeksi lebih rendah dibandingkan membran selulosa asetat 14%, hal ini dapat dilihat dari nilai fluksnya lebih besar daripada membran selulosa asetat 14,5% berarti porositas pada membran selulosa asetat 14% lebih besar tetapi mempunyai ukuran pori lebih kecil, sehingga banyak molekul deterjen yang tertahan pada membran yang mengakibatkan penurunan kadar deterjen lebih besar.

Pada membran selulosa asetat 15%, 15,5% dan 16% terjadi penurunan kadar deterjen cukup besar, karena semakin banyak komposisi polimer yang digunakan. Semakin rapat ikatan yang terjadi maka porositas yang terjadi lebih sedikit, dan ini dapat dikorelasikan dengan penurunan nilai fluks pada membran. Gambar 1 terlihat efisiensi rejeksi yang baik pada komposisi selulosa asetat 14,8 %.

Membran selulosa asetat dibuat melalui tahap inversi fasa yang dikenal dengan metoda rendam endap. Selulosa asetat dimasukkan ke dalam pelarut aseton sedikit demi sedikit dapat larut sempurna. Pengadukan dilakukan untuk memastikan selulosa asetat sudah larut sempurna sehingga didapatkan larutan dope yang homogen dan pengadukan dilakukan selama 24 jam. Untuk menghilangkan gelembung udara yang ada dalam dope, didiamkan selama 24 jam sebelum dilakukan proses pencekatan.

Larutan polimer dicetak di atas pelat kaca yang kemudian didorong dengan silinder stainless steel. Setelah lapisan tipis terbentuk diatas plat kaca, secepat mungkin dimasukkan ke dalam bak mungkin dimasukkan ke dalam bak koagulan yang berisi air, maka akan terjadi lapisan tipis putih dari membran. Hal ini terjadi karena pada saat lapisan tipis dimasukkan ke dalam air terjadi difusi pelarut ke dalam air yang merupakan non pelarut, sedangkan air segera berdifusi ke dalam membran sehingga terjadi koagulasi. Supaya pelarut aseton yang berdifusi dengan air dapat terbang dan untuk menghilangkan sisa-sisa pelarut yang masih ada di dalam membran maka proses perendaman air harus mengalir.

Pemilihan membran yang baik yaitu membran yang homogen perlu diperhatikan ada tidaknya *pinn hole*. Membran yang terbentuk memiliki perbedaan pada kedua permukaannya. Permukaan bagian atas kelihatan mengkilat dan halus dan permukaan bagian bawah agak buram dan berpori. Terjadinya polimer dikontrol dengan cara mengubahnya dari keadaan larutan menjadi keadaan padat.

Adanya pertukaran pelarut dan non-pelarut selama proses perendaman di bak koagulan membentuk padatan. Karena pada membran terdapat bagian atas yang kontak dengan udara dan bagian bawah yang menempel pada pelat kaca, maka kecepatan difusi pelarut dan non pelarut berbeda. Pada bagian atas pelarut lebih cepat berdifusi dengan non pelarut (air) sehingga struktur pori yang terbentuk lebih halus, sedangkan bagian bawah proses difusi pelarut lebih lambat karena air harus melalui *skin* yang sudah terbentuk untuk menuju daerah pengendapan dan secara otomatis bagian bawah memiliki struktur pori lebih besar.

Dari proses pembuatan diharap struktur pori yang terbentuk dengan teknik inversi fasa didapatkan pori bagian atas atau permukaan berukuran kecil dan makin ke bawah ukurannya makin besar, yang biasa disebut membran asimetris. Bentuk ini menguntungkan karena selain membran akan lebih kuat terhadap tekanan juga lebih lama terjadinya *fouling*.

Hasil pengukuran selengkapnya mengenai konsentrasi larutan standart deterjen NaLS dengan Spektrofotometer Shimidzu UV-VIS pada  $\lambda$  max = 650 nm dapat dilihat pada Tabel 4.

**Tabel 4.** Pengukuran Konsentrasi Larutan Standar Deterjen NaLS dengan Spektrofotometer Shimidzu UV-VIS pada  $\lambda$  max = 650 nm

Konsentrasi NaLS (ppm)	A	A rata-rata
0	0,031	0,031
	0,031	
	0,032	
0,425	0,064	0,064
	0,065	
	0,064	
0,85	0,098	0,097
	0,097	
	0,097	
1,275	0,13	0,131
	0,131	
	0,131	
1,7	0,165	0,167
	0,168	
	0,168	
2,975	0,271	0,272
	0,273	
	0,271	
3,4	0,307	0,307
	0,306	
	0,307	

Pengukuran nilai fluks bertujuan untuk melihat porositas membran, baik itu kekompakan porinya maupun ukuran porinya. Makin besar porositas maka nilai fluks dan laju alir dalam membran makin besar. Hasil yang diperoleh ditampilkan pada Gambar 2.

Nilai fluks terbesar terjadi pada membran dengan komposisi selulosa asetat 14% sebesar 407,48 L/m<sup>2</sup> hr. Hal ini dikarenakan komposisi polimer-nya yang lebih sedikit dibandingkan dengan membran lainnya sehingga derajat ikatan yang terjadi lebih sedikit dan porositasnya besar sehingga fluks yang didapat menjadi lebih besar dibandingkan dengan membran lainnya.

Nilai fluks dan efisiensi rejeksi untuk setiap variasi ketebalan pada membran selulosa asetat 14,8% terlihat pada Tabel 5.

Dalam pengukuran efisiensi rejeksi maka yang diukur adalah kadar deterjen sebelum dan sesudah dilewatkan membran. Dengan persamaan  $R = (1 - C_p/C_f) \times 100\%$ , maka membran dikatakan baik bila

efisiensi rejeksinya adalah 100%. Dalam pengukuran kadar deterjen digunakan Spektrofotometer UV-VIS dengan  $\lambda=650$  nm sehingga perlu adanya kurva standar. Hasil kurva standar yang diperoleh ditampilkan pada Gambar 2.

**Tabel 5.** Fluks dan Efisiensi Rejeksi Untuk Setiap Variasi Ketebalan Membran

Ketebalan (mm)	Vol		Flux rata-rata (L/m <sup>2</sup> .hari)	A	A rata-rata	Cp (ppm)	R (%)
	Vol (ml)	rata-rata (ml)					
I (0,083)	8,20	8,07	394,76	0,040	0,040	0,1350	94,15
	8,05						
	7,95						
II (0,153)	5,15	5,17	252,90	0,039	0,040	0,1350	94,15
	5,30						
	5,05						
III (0,248)	1,35	1,33	65,06	0,040	0,039	0,1227	94,68
	1,35						
	1,30						

Keterangan :

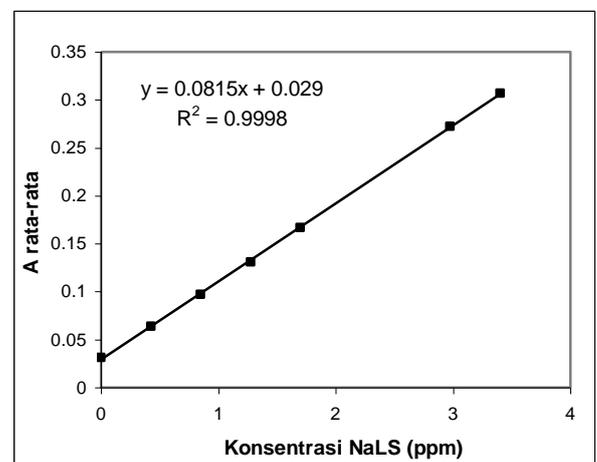
Fluks = V/A.t

A = 0,0019635 m<sup>2</sup>

R = (Cf-Cp)/Cf

t = 15 menit

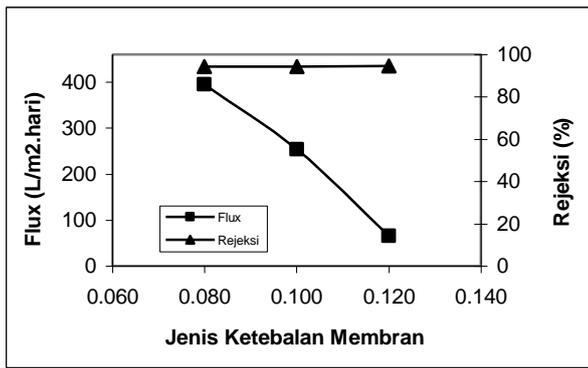
Cf = 2,3067 ppm



**Gambar 2.** Kurva NaLS Standar

Ketebalan membran berhubungan dengan ketahanan membran. Semakin tebal membran, ketahanan semakin besar, kekuatan membran meningkat, namun fluksnya semakin kecil.

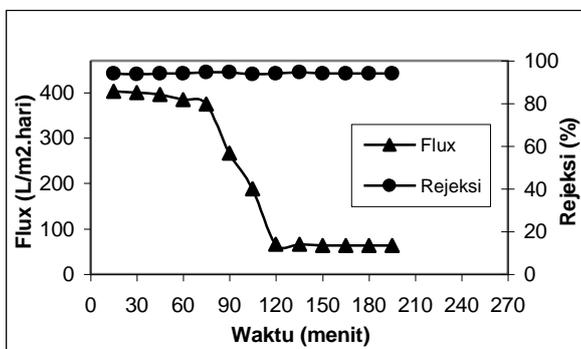
Gambar 3 menunjukkan bahwa tebal membran tidak berpengaruh terhadap nilai efisiensi rejeksi yang berarti ukuran pori membran relatif tetap.



Gambar 3. Hubungan Ketebalan Membran dengan Nilai Fluks dan Efisiensi Rejeksi.

Pengaluran fluks sebagai fungsi waktu dilakukan untuk mendapatkan gambaran tentang fenomena fouling yang terjadi pada membran. Pada menit-menit awal penurunan fluks cukup landai tetapi setelah menit ke 75 penurunan fluks permeat sangat tajam. Setelah itu jumlah fluks yang diperoleh stabil. Kelakuan ini erat kaitannya dengan polarisasi konsentrasi, adsorpsi, *pore blocking*, dan pembentukan gel yang menyebabkan peningkatan tekanan perpindahan.

Gambar 4 menunjukkan pengaruh waktu operasi terhadap nilai fluks dan efisiensi rejeksi.



Gambar 4. Hubungan Pengaruh Waktu Operasi Terhadap Nilai Fluks dan Efisiensi Rejeksi

Harga efisiensi rejeksi yang cukup besar dan relatif konstan sepanjang waktu operasi mengindikasikan bahwa proses pemisahan dengan membran selulosa asetat cukup prospektif dimanfaatkan sebagai alternatif pengganti metode klarifikasi konvensional.

#### 4. KESIMPULAN

Komposisi bahan berpengaruh terhadap nilai efisiensi rejeksi dan fluks. Makin tinggi selulosa asetat, efisiensi rejeksinya makin naik sedangkan fluksnya turun. Demikian pula sebaliknya selulosa asetat makin kecil efisiensi rejeksi makin rendah sedangkan fluks turun. Ketebalan membran relatif tidak berpengaruh terhadap efisiensi rejeksi akan tetapi berpengaruh sangat besar terhadap nilai fluksnya. Proses pemisahan yang baik diperoleh komposisi selulosa asetat 14,8% dan ketebalan 0,083 mm dengan tekanan operasi 1,75 bar.

#### DAFTAR PUSTAKA

Jiaratananon, R. dan Chanacai, A. (1996). **Study Offouling In The Ultrafiltration of Passion Fruit Juice**. J. Membran Science

Lygre, G. (1991). **Chemistry**. Third Edition. Wil-lard Grant Press. Boston.

Mulder, M. (1991). **Basic Principles Of Mem-bran Technology**. Khewer Academic Pu-blisher. Netherlands

Nilson, J.L. (1990). **Protein Fonling Ultrafiltra-tion Membran**. *Membran Science*. pp. 189-202

Wenten, I. G. (1999). **Teknologi Membran In-dustrial: Peristiwa Fouling**. ITB. Bandung.