



Pengaruh Rasio Aditif Polietilen Glikol Terhadap Selulosa Asetat pada Pembuatan Membran Selulosa Asetat Secara Inversi Fasa

Cut Meurah Rosnelly

Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Syiah Kuala, Banda Aceh 23111, Indonesia.
E-mail: cutnelly@ymail.com

Abstract

Preparation of cellulose acetate (CA) membranes with ultrafiltration process had be done by phase inversion using dimethylformamide (DMF) as solvent. Polyethylene glycol (PEG) 1450 Da, as additive, was added with 10, 20, and 30% rasio of cellulose acetate. The thin film of polymer solution was immersed on water bath coagulation at room temperature. The analysis of membrane morphology structure by *Scanning Electron Microscope* (SEM) JSM - 5310 LV, Jeol-Japan showed the asymetric of membrane. The addition of PEG can improve the performance of the membrane. In resulting flux is higher than membranes without PEG. Increasing of PEG/CA ratio resulted in the higher flux with lower of rejection. The higher fluxes of water, dextran, and BSA are 146, 114, and 96 L/m²hr with 52,938 and 75,716% rejection for dextran and BSA.

Keywords: cellulose acetate membranes, polyethylene glycol, ultrafiltration

1. Pendahuluan

Teknologi pemisahan menggunakan membran merupakan salah satu teknik pemisahan yang banyak digunakan hampir di setiap operasi hilir di industri kimia. Tujuan pemisahan adalah untuk memperoleh produk dengan tingkat kemurnian yang tinggi. Ultrafiltrasi merupakan salah satu jenis proses membran yang banyak digunakan di dunia industri (Shibata, 2004). Pengembangan teknologi pemisahan dengan membran masih terus berlangsung dengan tujuan untuk mendapatkan kinerja membran yang diinginkan. Inversi fasa merupakan salah satu metode pembuatan membran yang umum digunakan dengan melibatkan tiga komponen utama, yaitu: polimer, pelarut, dan non-pelarut.

Penambahan aditif dapat dilakukan dengan tujuan untuk meningkatkan sifat permukaan membran. Terdapatnya aditif dapat mempengaruhi struktur morfologi dan kinerja membran. Zat aditif yang sering ditambahkan seperti Polivinil Prolidon (PVP), Polietilen Glikol (PEG), dan alkohol (Chou dkk., 2007; Javiya dkk., 2008; Saleh dkk., 2008; Aroon dkk., 2010). Kinerja membran yang baik sangat ditentukan dari porositas permukaan dan distribusi pori dari membran yang digunakan (Mulder, 1996). Banyak

parameter yang mempengaruhi karakteristik membran, sehingga kondisi pembuatan membran masih sangat menarik untuk diteliti. Penambahan aditif PEG pada penelitian yang telah dilakukan ini merupakan salah satu usaha dalam rangka memperbaiki kinerja membran.

2. Metodologi

2.1 Bahan

Bahan yang digunakan terdiri dari: (1) bahan untuk pembuatan membran selulosa diasetat, yaitu: dimetilformamida (DMF) LAB (Merck); selulosa diasetat (SDA) 39, 66% hasil asetilasi selulosa sengan (Rosnelly dkk., 2009); aquadest; polietilen glikol (PEG) dengan berat molekul 1450 Da (Sigma), 4000 Da (Merck), dan 6000 Da (Merck) dan (2) bahan untuk pengujian karakteristik membran, yaitu: aquadest; standar dekstran (Sigma) dengan berat molekul 12 kDa, dan bovin serum albumin (Sigam) dengan berat molekul 67 kDa.

2.2 Alat

Alat yang digunakan terdiri dari: (1) peralatan untuk pembuatan membran, yaitu: gelas kaca, pengaduk bermagnet, lembaran kaca, batang silinder berfungsi sebagai aplikator (*casting knife*), dan bak koagulasi, (2) seperangkat penyaringan

aliran silang (*crossflow filtration*) untuk karakterisasi ukuran pori membran, (3) spektrofotometer untuk menganalisis konsentrasi larutan dan *Scanning Electron Microscope* (SEM) JSM-5310 LV, Jeol-Japan untuk analisis struktur morfologi membran. Viskometer *Ubbelohde* digunakan untuk pengukuran berat molekul selulosa diasetat.

2.3 Pembuatan Membran Selulosa Diasetat.

Membran dibuat secara inverse fasa merujuk pada metode yang digunakan oleh beberapa penulis (Chou dkk., 2007, Mahendran dkk., 2004). Larutan polimer atau larutan *dope* dibuat dengan melarutkan selulosa asetat ke dalam pelarut DMF dengan perbandingan 1:3; 1:4; 1:5; dan 1:6. Aditif PEG 1450 Da ditambahkan ke dalam campuran tersebut dengan rasio PEG/SDA 10%, 20%, dan 30%. Pencampuran dilakukan dengan menggunakan pengaduk bermagnet. Sebelum dicetak, larutan *dope* dibiarkan dalam kondisi kedap udara untuk menghilangkan gelembung udara.

Pencetakan membran dilakukan dengan cara menuangkan larutan *dope* ke atas plat kaca. Terlebih dahulu ketebalan lapisan membran dari atas plat kaca ditetapkan pada $0,2 \text{ mm} \pm 0,02 \text{ mm}$ menggunakan alat aplikator. Larutan tipis yang terbentuk pada plat kaca dibiarkan selama 30 detik dan selanjutnya dimasukkan ke dalam bak koagulasi yang berisi air. Perendaman berlangsung pada suhu kamar sampai terbentuknya lapisan tipis putih membran.

2.4 Karakterisasi

Karakterisasi berupa morfologi, fluks, rejeksi dan *Molecular Weight Cut-Off* (MWCO) dilakukan terhadap membran yang dihasilkan. Morfologi membran diperoleh dengan menggunakan SEM JSM-5310 LV, Jeol-Japan pada batas resolusi 5-10 nm. Melalui SEM, diambil pada beberapa variasi magnifikasi untuk beberapa bagian dari membran.

Penentuan fluks dan rejeksi dilakukan dengan menyaring masing-masing larutan standar desktran (12 kDa) dan BSA (67 kDa) melalui membran yang terdapat di dalam serangkaian peralatan penyaringan silang. Membran berbentuk *flat* (datar)

dimasukkan ke dalam modul dengan luas efektif membran $12,56 \text{ cm}^2$ dan bekerja pada tekanan trans membran (TMP) 1,2 bar dengan laju alir $7,4 \times 10^{-3} \text{ m/det}$. Volume aliran yang melewati pori membran (permeat) persatuan luas membran persatuan waktu dinyatakan sebagai fluks. Fluks dapat ditulis sebagai suatu persamaan, yaitu (Mulder, 1996):

$$J_v = V / (At) \quad (1)$$

Dimana:

J_v = fluks ($\text{L/m}^2\text{jam}$)
 t = waktu filtrasi (jam)
 A = luas permukaan membran (m^2)
 V = volume permeat (L)

Konsentrasi permeat dianalisis menggunakan UV-vis spektrofotometer. Persentase rejeksi (R) dihitung dari persamaan (Mulder, 1996):

$$R (\%) = \left(1 - \frac{C_{\text{permeat}}}{C_{\text{umpan}}}\right) \times 100\% \quad (2)$$

Dimana:

R = persentase tahanan
 C_{permeat} = konsentrasi partikel dalam permeat
 C_{umpan} = konsentrasi partikel dalam umpan

Ukuran pori membran dapat ditentukan berdasarkan MWCO setelah diperoleh nilai rejeksi. MWCO membran didapat dengan mengidentifikasi dari zat terlarut yang memiliki berat molekul paling rendah dan mempunyai rejeksi 80-90% (Mahendran dkk., 2004).

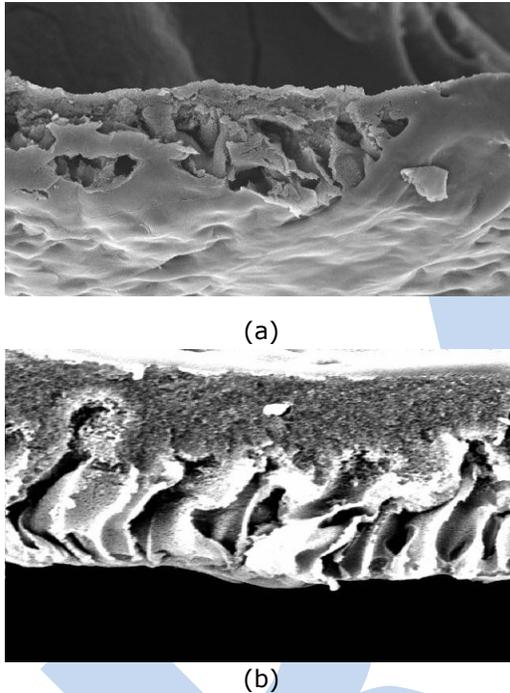
3. Hasil dan Pembahasan

Perbandingan selulosa diasetat (SDA) terhadap pelarut DMF yang digunakan untuk mendapatkan larutan *dope* homogen adalah 1:6. Hal ini dikarenakan berat molekul SDA diperoleh sebesar 130.221 Da dari hasil pengukuran dengan menggunakan alat viskometer *ubbelohde* sehingga memerlukan jumlah pelarut yang lebih banyak.

3.1 Morfologi Membran

Membran yang terjadi mengikuti mekanisme *instantaneous demixing* dan menghasilkan membran berpori (*porous*)

membrane) karena afinitas antara DMF dan air sangat kuat. Hasil pengamatan terhadap morfologi dari membran yang dihasilkan menggunakan SEM JSM-5310 LV, Jeol-Japan menunjukkan bahwa membran tersebut merupakan membran asimetrik karena struktur pori bagian atas lebih rapat dibandingkan struktur pori bagian bawah. Hasil SEM dapat dilihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Bagian melintang membran asimetrik selulosa asetat : a. tanpa PEG (500x), b. penambahan PEG 1450 Da (1000x)

3.2 Pengaruh Penambahan PEG

Penambahan PEG sebagai aditif pada membran dimaksudkan untuk memperbesar pori membran dengan tetap menjaga ketahanan membran terhadap faktor eksternal. Dapat dijelaskan bahwa aditif PEG pada awalnya mengisi matriks dari membran selulosa asetat yang terbentuk. Selanjutnya dalam proses diffusi antara pelarutan dengan non pelarut, aditif bersama dengan pelarut akan larut ke dalam non-pelarut sehingga meninggalkan rongga atau pori pada membran sehingga fluks yang dihasilkan lebih tinggi (Akhlus dan Widiastuti, 2005; Chou dkk., 2007).

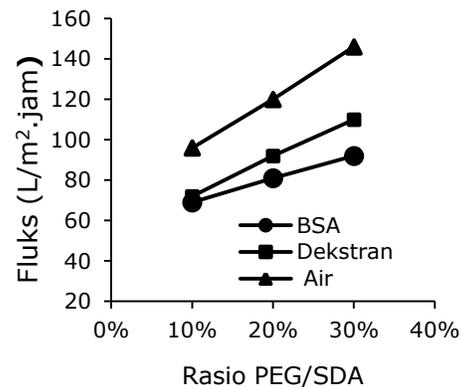
Pernyataan tersebut sangat sesuai dengan hasil yang diperoleh, yaitu untuk membran tanpa PEG menghasilkan fluks yang lebih rendah dibandingkan membran dengan penambahan PEG. Fluks air, larutan dekstran, dan larutan BSA yang dihasilkan dari untuk membran tersebut dapat dilihat pada Tabel 1.

Tabel 1 Fluks dari membran tanpa PEG dan penambahan PEG

Membran/Fluks (L/m ² .jam)	Air	Larutan dekstran	Larutan BSA
Tanpa PEG	74±6	69 ± 4	62 ± 4
Penambahan PEG 1450 Da (PEG/SDA 10%)	96±7	76 ± 6	72 ± 5

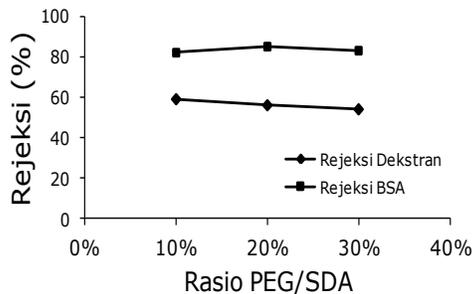
3.3 Fluks Membran pada Berbagai Rasio PEG/SDA

Semakin meningkat rasio PEG/SDA berarti semakin banyak molekul PEG mengisi matriks selulosa asetat. Porogen PEG bersifat larut dalam air sehingga molekul PEG tersebut berdiffusi ke dalam bak koagulasi yang berisi air dan meninggalkan pori pada matriks selulosa asetat (Chou dkk., 2007). Pori dengan jumlah yang lebih besar dihasilkan dari rasio PEG/SDA yang lebih tinggi sehingga fluks yang dihasilkan lebih besar pula, seperti terlihat pada Gambar 2. Fluks tertinggi dihasilkan dari formula membran dengan penambahan PEG pada rasio PEG/SDA 30% berturut-turut untuk air, dekstran dan BSA sebesar 146, 114, dan 96 L/m².jam.



Gambar 2. Hubungan antara fluks air, larutan dekstran, BSA (TMP 1,2) pada berbagai rasio PEG 1450 Da/SDA (koagulasi pada suhu kamar).

Suatu fenomena umum yang sering terjadi ditemukan dalam suatu proses pemisahan dengan membran, yaitu apabila fluks membran besar maka rejeksi akan rendah, demikian pula sebaliknya jika rejeksi tinggi maka fluks juga akan rendah. Fenomena tersebut dihasilkan juga pada rejeksi untuk dekstran yang dapat dilihat pada Gambar 3. Pada Gambar 3, rejeksi dekstran dan BSA yang dihasilkan menurun dengan naiknya rasio PEG/SDA, walaupun tingkat penurunan sangat kecil. Rejeksi dekstran dihasilkan sekitar 53 – 59%. Hal ini disebabkan karena ukuran pori membran yang dihasilkan masih terlalu besar dibandingkan ukuran molekul dekstran, sehingga masih terdapat sejumlah besar molekul dekstran yang lolos melalui pori membran. Untuk BSA, rejeksi yang dihasilkan berada dalam kisaran 81 – 86%. Namun apabila dilihat dari nilai rejeksi, maka dapat dikatakan bahwa ukuran pori membran mendekati ukuran molekul BSA.



Gambar 3. Hubungan rejeksi dekstran dan BSA (TMP 1,2 bar) pada berbagai rasio PEG 1450 Da/SDA (koagulasi pada suhu kamar).

3.4 Molecular Weight Cut-Off (MWCO) Membran

Molecular Weight Cut-Off (MWCO) didefinisikan sebagai bobot molekul suatu zat terlarut yang 80-90% dapat direjeksi oleh membran (Mahendran dkk., 2004). Pengukuran rejeksi padatan (*Solute Rejection Measurements*) merupakan metode yang paling banyak digunakan dalam mengkarakteristik membran berpori. Dari berbagai variasi formulasi membran yang telah dihasilkan diperoleh rejeksi terhadap larutan standar dekstran (12 kDa) berkisar 53 – 59% dan rejeksi larutan standar BSA (67 kDa) berkisar 81 – 86%. Berdasarkan hasil yang diperoleh tersebut,

dapat dikatakan bahwa ukuran pori membran berada pada ukuran maksimal 67 kDa. Menurut Osada dan Nakagawa (1992) membran ultrafiltrasi (UF) mempunyai ukuran pori berkisar 10 – 1000 Å atau MWCO sekitar 10^3 - 10^6 Da. Ukuran pori membran yang dihasilkan ini masih termasuk kategori membran dengan jenis proses ultrafiltrasi.

4. Kesimpulan

Membran selulosa asetat yang dihasilkan bersifat asimetrik dan berpori. Penambahan PEG dapat meningkatkan kinerja membran. Fluks yang dihasilkan lebih tinggi dibandingkan membran tanpa PEG. Peningkatan rasio PEG terhadap SDA pada pembuatan membran menghasilkan fluks dengan nilai yang tinggi dan rejeksi yang rendah. Pori membran berada pada ukuran maksimal 67 kDa dan masih termasuk kategori membran dengan jenis proses ultrafiltrasi.

Ucapan terimakasih

Ucapan terimakasih kepada Prof. Dr. Ir. H. Abdul Aziz Darwis, MSc dan Prof. Dr. Ir. Hj. Erliza Noor dari Departemen Teknologi Industri Pertanian FATETA IPB- Bogor serta Dr. Ir. H. Kaseno, M.Eng dari BPPT Pusat atas ilmu dan arahan yang berkaitan dengan penelitian yang telah dilakukan ini.

Daftar Pustaka

- Akhlus, S dan Widiastuti, N. (2005) Perolehan Kembali NaOH Dari Limbah White Liquor Hasil Pengelantangan Sistem Fotosensitizer Katil Bergerak. *Akta Kimindo* (1) No. 1 Oktober 2005. 35-40.
- Aroon, M. A., Ismail, A. F., Rahmati, M.M.M., Matsuura, T. (2010) Morfologi and permeation properties of polysulfone membrane for gas separation: effects of nonsolvent additives and co-solvent, *Elsevier: Separation and Purification Technology*. 72. 194-202.
- Chou, W.L., Yu, D.G., Chien, M, dan Yang, C.H.J. (2007) Effect of molecular weight and concentration of PEG additives on morphology and permeation performance of cellulose acetate. *Science direct Separation and Purification Technology*.

- Javiya, S., Yogesh, Gupta, S., Singh, K dan Bhattacharya, A. (2008) Porometry studies of the polysulfone membranes on addition of poly(ethylene glycol) in gelation bath during preparation, *Journal of Mex. Chem. Soc*, 52(2), 140-144, Sociedad Química de México ISSN 1870-249X.
- Mahendran, R., Malaisamy, R., DAN Mohan, D.R. (2004) Cellulose acetate and polyethersulfone blend ultrafiltration membranes. Part I: Preparation and characterizations, *Polymer Advanced Technologies*, 15, 149-157.
- Mulder, M. (1996) Basic Principles of Membrane Technology. Kluwer Academic Publisher, Netherland.
- Rosnelly, C.M., Darwis, A.A., Noor, E., dan Kaseno. (2009) Pembuatan Selulosa Diasetat dari Selulosa Pulp Sengon (*Paraserianthes falcataria*) sebagai Bahan Baku Pembuatan Membran. *Jurnal Agri-Tek*, 10, 1, Maret.
- Saleh, N.J., Alhelaly, A., Samita, N.A., Alsahy, Q. (2008) Effect of alcohol additives on the morphology and separation performance of polyethersulfone (PES) hollow fiber ultrafiltration membranes, *Eng and Tech*, 26 (12), 1451-1461.
- Shibata, T. (2004) Cellulose acetate in separation technology, *Macromol. Symp*, 208, 353-369.