

# Preparasi dan Karakterisasi Membran Gabungan PSf/PEG dengan Variasi Pengisi KTZ dan KTZ Teroksidasi untuk Aplikasi pada Larutan Kristal Violet

Nurul Widiastuti, M. Faqri Fahrozi Huzein dan Taufik Qodar Romadiansyah

*Departemen Kimia, Fakultas Sains dan Analitika Data  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111*

*\*<sup>1</sup>Penulis korespondensi : nurul\_widiastuti@chem.its.ac.id*

## Abstrak

*Abstrak: Membran gabungan polisulfon (PSf) dengan aditif polietilen glikol (PEG-400) dan variasi pengisi karbon teremplat zeolit (KTZ) dan KTZ teroksidasi telah dipreparasi melalui metode inversi fasa dengan dimetilasetamida (DMAc) sebagai pelarut. Membran dikarakterisasi dengan X-Ray Diffraction (XRD), Scanning Electron Microscopy (SEM), Atomic Force Microscopy (AFM), Thermogravimetric Analysis (TGA), Forier Transform Infrared (FTIR) dan contact angle meter. Membran diuji kinerjanya dengan filtrasi kristal violet. Nilai fluks air untuk membran PSf/PEG, PSf/PEG-KTZ dan PSf/PEG-KTZ teroksidasi masing-masing adalah 101,91 L/m<sup>2</sup>jam, 320,05 L/m<sup>2</sup>jam dan 60,64 L/m<sup>2</sup>jam. Nilai rejeksi terhadap kristal violet untuk masing-masing membran adalah 98,17%, 82,90% dan 99,4%.*

**Kata kunci:** Kristal violet, KTZ, membran gabungan, polisulfon

## I. PENDAHULUAN

Industri tekstil merupakan salah satu sektor industri yang sangat berkembang di Indonesia. Dampak negatif dari perkembangan industri ini adalah limbah zat warna banyak dihasilkan dan dibuang ke badan air. Salah satu zat warna tekstil yang sering digunakan adalah kristal violet. Kristal

violet termasuk zat warna golongan trifenilmetana yang dapat digunakan untuk pewarnaan nilon, kapas dan sutra. Zat warna ini mengandung gugus benzena sehingga bersifat stabil dan sulit diuraikan. Kristal violet bila terlalu lama berada di lingkungan akan mejadi sumber penyakit karena bersifat karsiogenik, toksik dan mutagenik. Oleh karena itu perlu

dilakukan metode yang efektif untuk mengurangi kristal violet pada limbah tersebut (Maria dkk., 2007).

Membran adalah satu dari beberapa metode pemisahan yang berpotensi untuk dikembangkan. Membran sebagai salah satu metode pemisahan memiliki keunggulan dalam hal kebutuhan energi yang kecil, proses pemisahannya tidak destruktif terhadap zat-zat yang dipisahkan, tidak membutuhkan tempat yang besar, biaya operasional yang kecil, serta proses pemisahan tanpa adanya perubahan fasa dari zat yang akan dipisahkan (Mulder, 1996).

Membran menurut materi penyusunannya dapat dibagi menjadi membran polimer dan membran anorganik. Membran polimer banyak digunakan sebagai membran filtrasi karena keekonomisan dan kemudahan dalam pembuatannya. Namun membran polimer memiliki nilai fluks dan rejeksi yang sedang (Liu dkk., 2014). Membran anorganik memiliki kinerja pemisahan yang sangat baik dengan nilai fluks dan rejeksi yang tinggi. Namun membran anorganik ini bersifat rapuh, dan preparasi membran anorganik termasuk sulit dan mahal (Alventosa-deLara dkk., 2012).

Membran gabungan (*mixed matrix membrane*) merupakan membran komposit antara material polimer dan anorganik, dimana material anorganik

didispersikan kedalam matriks polimer (Magueijo dkk., 2013). Penggabungan kedua material ini dapat menutupi kelemahan dari membran polimer dan anorganik. Membran gabungan memiliki nilai fluks dan rejeksi yang tinggi. Membran PSf/MWNT-Pdop hasil sintesis (Sianipar dkk., 2016) memiliki nilai fluks air sebesar 174,22 L/m<sup>2</sup>jam dan rejeksi terhadap protein BSA sebesar 99,21%. Preparasi membran ini mudah dan lebih ekonomis, serta sifatnya yang tidak rapuh membuat membran gabungan lebih menguntungkan untuk digunakan sebagai membran filtrasi.

Terdapat dua jenis polimer yang dapat digunakan pada membran gabungan, yaitu polimer hidrofilik dan hidrofobik. Diantara kedua jenis polimer tersebut, polimer hidrofobik banyak digunakan sebagai pendukung membran filtrasi karena mempunyai ketahanan termal dan kimia yang baik (Mulder, 1996). Polisulfon (PSf) merupakan jenis polimer hidrofobik yang memiliki sifat tahan terhadap panas dan oksidasi, tidak larut atau rusak oleh asam-asam encer maupun alkali serta mudah difabrikasi (Leo dkk., 2013). Kelemahan dari membran hidrofobik adalah kurang disukai air dan mudah terjadinya penyumbatan (*fouling*). Penambahan aditif hidrofilik dapat mengurangi sifat hidrofobitas pada membran.

PEG (polietilen glikol) merupakan aditif yang digunakan untuk meningkatkan sifat hidrofilisitas pada membran. Membran hidrofilik akan lebih memudahkan air untuk masuk dan melewati membran dibandingkan dengan membran hidrofobik. Selain itu PEG berfungsi sebagai agen pembentuk pori (*pore forming*), sehingga dapat meningkatkan fluks tanpa mengurangi nilai rejeksi secara signifikan (Ma dkk., 2011).

Material anorganik yang didispersikan pada membran gabungan disebut sebagai pengisi (*filler*). Jenis pengisi yang dapat digunakan yaitu TiO<sub>2</sub>, zeolit, *graphene oxide*, MWNT (*multi walled carbon nanotube*), dll. Diantara jenis pengisi-pengisi tersebut, pengisi karbon memiliki aspek rasio yang tinggi, sehingga dapat meningkatkan performa membran dengan kadar penambahan yang sedikit (Sianipar dkk, 2016). Selain itu karbon juga memiliki densitas yang rendah, ketahanan termal dan kimia yang baik, serta memiliki distribusi yang baik pada matriks polimer. Berdasarkan hal tersebut, pada penelitian ini digunakan pengisi jenis karbon.

Karbon tertemplat zeolit (KTZ) adalah material karbon yang disintesis dari prekursor karbon dengan penggunaan zeolit sebagai templatnya. Penemplatan karbon menggunakan zeolit bertujuan

agar karbon memiliki ukuran pori sesuai dengan templatnya dan memiliki keteraturan pori yang lebih baik (Alam dkk., 2011). KTZ memiliki pori dengan ukuran mikropori dan mesopori (Sud dk., 2004). Ukuran mikropori baik digunakan sebagai pengisi karena dapat bersifat sebagai *molecular sieving*, dimana molekul yang memiliki ukuran lebih kecil dapat melewati pori dan berdifusi lebih cepat dibandingkan dengan molekul yang memiliki ukuran lebih besar (Padaki dkk., 2015).

Sifat pengisi karbon yang memiliki interaksi lemah dengan polimer akan menciptakan sieve in cage yang bersifat tidak selektif pada membran dan menurunkan nilai rejeksi. Oleh karena itu, modifikasi pengisi karbon perlu dilakukan dengan penambahan gugus fungsi yang dapat meningkatkan kompatibilitas antara karbon dengan polimer tanpa menutupi pori karbon (Sianipar dkk., 2016). Terdapat beberapa metode modifikasi karbon, antara lain dengan penambahan gugus ICIC (*5-isocyanato-isophthaloyl chloride*) (Qiu dkk., 2009), pelapisan menggunakan *polydopamine* (Pdop) (Sianipar dkk., 2016), dan oksidasi dengan asam (Yin dkk., 2013). Diantara metode-metode tersebut, oksidasi karbon dengan asam mempunyai kelebihan yaitu kemudahan proses modifikasi dan performa yang baik.

## II. METODOLOGI PENELITIAN

### a. Alat dan bahan

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini dibagi berdasarkan empat tahapan penelitian, di antaranya: (1) Sintesis zeolit, KTZ, dan KTZ teroksidasi yang memerlukan neraca analitik, reaktor hidrotermal (*stainless steel autoclave*), *hot plate*, oven, pompa vakum, seperangkat alat refluks, *stainless steel crucible*, dan *tubular furnace*, (2) Preparasi membran yang memerlukan plat kaca, motor pengaduk, *hot plate*, *sieve filter* (mesh#400), *roller stainless steel*, dan bak ultrasonik, (3) Alat yang digunakan untuk analisis zeolit, KTZ, dan KTZ teroksidasi yaitu XRD Expert Pan Analytical, SEM Zeiss EVO MA30, SEM SU 3500, FTIR Thermo Scientific Nicolet iS10, dan gas adsorpsi/desorpsi N<sub>2</sub> (BET) ASAP 2040, serta analisis membran menggunakan *atomic force microscopy* (AFM) SII Nano Technology SPA400, *contact angle meter*, FTIR Thermo Scientific Nicolet iS10, dan TGA Brand-TA Instrument TGAQ500, (4) Uji filtrasi membran yang memerlukan seperangkat alat *dead-end cylindrical filtration stirred cell*.

Sedangkan bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini dibagi berdasarkan 3 tahapan penelitian, di antaranya: (1) Sintesis zeolit, KTZ dan

KTZ teroksidasi yang memerlukan natrium aluminat, natrium silikat, NaOH 99% p.a (Sigma Aldrich), sukrosa (98%, Fluka), air demineralisasi, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 98% p.a (Merck), gas nitrogen (N<sub>2</sub>, 99,9999%), HCl 37%, (SAP), HF 48%, p.a (Sigma Aldrich), HNO<sub>3</sub> 65% p.a (Sigma Aldrich), (2) Preparasi membran yang memerlukan polimer berupa polisulfon (UDEL PSU P-1700 NT11), pelarut N,N-dimetilacide (DMAc Merck), dan akuades, (3) Uji filtrasi MMM yang memerlukan zat warna kristal violet (Sigma Aldrich) dan akuades.

### b. Prosedur kerja

Prosedur kerja dalam penelitian ini meliputi sintesis zeolit-Y dengan metode hidrotermal. Zeolit-Y hasil sintesis dikarakterisasi dengan XRD dan dilakukan analisis adsorpsi-desorpsi N<sub>2</sub> (BET) sebelum digunakan sebagai templat pada sintesis karbon tertemplat zeolit-Y (KTZ). Sintesis KTZ menggunakan metode impregnasi. KTZ hasil sintesis dilakukan oksidasi menggunakan asam dengan metode refluks. KTZ dan KTZ teroksidasi selanjutnya digunakan sebagai pengisi pada preparasi membran gabungan menggunakan metode inversi fasa. Kemudian, membran dikarakterisasi dan diuji kinerjanya terhadap zat warna kristal violet.

### Sintesis Zeolit-Y

Dalam penelitian ini zeolit-Y

disintesis dengan metode hidrotermal yang didasarkan pada penelitian (Kayadoe, 2013) dan (Agustina, 2013). Sintesis zeolit-Y terbagi menjadi tiga tahapan, yaitu pembuatan *seed gel*, *feedstock gel*, dan *overall gel*. *Seed gel* merupakan gel yang disintesis dari alumina dan silika yang diperam selama sehari. *Feedstock gel* merupakan gel yang sama dengan *seed gel*, namun dengan jumlah lebih besar dan dibuat tanpa proses pemeraman. *Seed gel* yang dihasilkan dicampurkan ke dalam *feedstock gel* membentuk *overall gel*. Dalam hal ini *seed gel* berfungsi memancing pertumbuhan inti kristal pada *feedstock gel*. Sedangkan *overall gel* berfungsi untuk membangun kristal zeolit.

a. *Seed Gel*

Sebanyak 3,469 g natrium hidroksida, 1,924 g natrium aluminat dan 23,991 g aqua DM dimasukkan ke dalam botol propilen dan diaduk sampai homogen. Setelah itu, ke dalam campuran ditambahkan 17,518 g natrium silikat secara perlahan sambil diaduk secara perlahan sampai campuran menjadi homogen. Kemudian, campuran dalam botol ditutup dan dilakukan pemeraman selama 1 hari.

b. *Feedstock Gel*

Sebanyak 0,1 g natrium hidroksida, 13,518 g natrium aluminat,

dan 157,518 g aqua DM kedalam botol propilen dan diaduk sampai homogen. Setelah itu, ke dalam campuran ditambahkan 107,212 g natrium silikat secara perlahan dan diaduk dengan kecepatan 600 rpm. Gel kemudian ditutup hingga dilakukan penambahan *seed gel*.

c. *Overall Gel*

*Seed gel* hasil pemeraman ditimbang dengan berat 16,5 g dan secara perlahan ditambahkan kedalam *feedstock gel*. Kemudian, dilakukan pengadukan pada *overall gel* selama 20 menit dengan kecepatan 600 rpm. *Overall gel* selanjutnya dipindahkan ke dalam autoklaf dan dilakukan pemeraman selama 24 jam. Setelah itu, *overall gel* dihidrotermal pada suhu 100 °C selama 7 jam. Setelah proses hidrotermal, zeolite-Y yang telah terbentuk dicuci dengan air demineralisasi sampai pH di bawah 9 dan dilakukan pengeringan pada suhu 110 °C selama 12 jam.

### Sintesis KTZ (Karbon Tertemplat Zeolit-Y)

Dalam penelitian ini, KTZ disintesis menggunakan metode impregnasi dengan penggunaan sukrosa sebagai prekursor karbon dan zeolit-Y yang telah disintesis sebagai templat. Pembuatan material ini terdiri dari tiga tahapan metode, yaitu impregnasi sukrosa pada zeolit-Y, kemudian karbonisasi templat, dan penghilangan zeolit-Y sebagai templat

menggunakan asam (Guan dkk., 2009 dan Su dkk., 2004).

a. Impregnasi

Sebelum dilakukan proses impregnasi, sebanyak 10 g zeolit-Y di-*degas* terlebih dahulu menggunakan *tubular furnace* selama 4 jam pada temperatur 200 °C dengan kenaikan suhu 1 °C/menit. Setelah itu, impregnasi dilakukan dengan mencampurkan 12,5 g sukrosa, 50 mL asam sulfat 0,35 M dan zeolit-Y hasil *degas*. Setelah itu, dilakukan pengadukan pada campuran selama 72 jam dengan kecepatan 250 rpm pada suhu kamar. Selanjutnya, campuran disaring.

b. Karbonisasi templat

Campuran yang telah diperoleh dari tahap pertama dilakukan karbonisasi menggunakan *tubular furnace* pada temperatur 800 °C dengan kenaikan 2 °C/menit dalam kondisi dialiri N<sub>2</sub> (laju alir 30 cm<sup>3</sup>/menit). Hasil karbonisasi pada tahap ini disebut padatan komposit zeolit/karbon.

c. Penghilangan templat zeolit

Penghilangan templat zeolit pada padatan komposit zeolit/karbon hasil tahap kedua dilakukan dengan 3 kali proses pencucian, yaitu menggunakan HF 5%, HCl 37% dan HF 48%.

Pencucian pertama dilakukan dengan merendam zeolit/karbon kedalam HF 5% selama 1 jam. Setelah dilakukan

perendaman, pH padatan dinetralisasi menggunakan air demineralisasi. Kemudian, padatan dikeringkan pada suhu 110 °C selama 12 jam. Pencucian selanjutnya menggunakan HCl 37% dengan proses refluks, yaitu dengan merendam padatan karbon sebanyak 5 g dalam HCl 37% dengan volume 30 mL dan dilakukan refluks pada suhu 60 °C selama 1 jam. Kemudian, padatan karbon hasil refluks dinetralisasi menggunakan air demineralisasi. Pencucian terakhir yaitu dengan merendam karbon selama 1 jam ke dalam larutan HF 48%. Kemudian, padatan yang telah dicuci dilakukan netralisasi pH menggunakan air demineralisasi dan dilakukan pengeringan pada suhu 120 °C selama 12 jam. Karbon hasil pencucian merupakan karbon tertemplat zeolit-Y (KTZ). Selanjutnya KTZ tersebut dilakukan proses oksidasi dan digunakan juga sebagai pengisi pada membran gabungan.

**Oksidasi KTZ**

Oksidasi KTZ dilakukan menggunakan metode refluks dengan asam. 1 g KTZ direfluks kedalam 10 mL campuran H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> pekat dan HNO<sub>3</sub> pekat dengan perbandingan 3:1 pada suhu 80 °C selama 3 jam. Kemudian, padatan hasil refluks dilakukan peyaringan dan pencucian dengan akuades sampai pH netral. Setelah itu, padatan dikeringkan selama 24 jam pada suhu 80 °C.

## Preparasi Membran

Pada penelitian ini dilakukan preparasi tiga jenis membran, yaitu membran PSf/PEG, PSf/PEG-KTZ dan PSf/PEG-KTZ teroksidasi. Membran dipreparasi dengan menggunakan metode inversi fasa. Metode inversi fasa diawali dengan preparasi larutan dope untuk masing-masing membran dengan komposisi yang sesuai pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi larutan dope membran

Pada pembuatan larutan dope PSf/PEG, polisulfon dioven terlebih dahulu selama 3 jam pada suhu 120°C untuk menghilangkan kadar air dan pengotor. Setelah itu, sejumlah polisulfon dan DMAc dimasukkan kedalam tabung erlemeyer tertutup dan diaduk pada kecepatan 400 rpm dengan suhu 60°C sampai semua polimer larut sempurna. Setelah itu, PEG-400 ditambahkan kedalam larutan dan diaduk kembali selama 12 jam untuk memastikan semua komponen homogen. Larutan selanjutnya didiamkan selama 24 jam agar gelembung udara yang timbul saat proses pengadukan hilang.

Pembuatan larutan *dope* membran PSf/PEG dengan pengisi KTZ dan KTZ teroksidasi dipreparasi dengan metode yang sama. Preparasi larutan *dope* diawali dengan mencampurkan DMAc, pengisi, dan PEG-400 kedalam erlemeyer tertutup. Selanjutnya campuran diaduk pada

kecepatan 600 rpm selama 12 jam dengan suhu 60 °C. Setelah itu, campuran disonikasi dengan frekuensi 40 kHz selama 2 jam. Selanjutnya polisulfon ditambahkan kedalam larutan dan diaduk kembali pada kecepatan dan suhu yang sama seperti sebelumnya selama 24 jam. Setelah itu larutan disonikasi kembali dengan frekuensi 40 kHz selama 2,5 jam. Larutan tersebut kemudian didiamkan

Membran	Komposisi			PEG-400 (%berat)
	PSf (%berat)	DMAc (%berat)	Pengisi (%berat)	
PSf/PEG	18	82	-	6
PSf/PEG-KTZ	18	81,9	0,1	6
PSf/PEG-KTZ teroksidasi	18	81,9	0,1	6

selama 1 jam pada suhu ruangan.

Larutan *dope* yang sudah dipreparasi selanjutnya dituang diatas kaca dan dilakukan pencetakan dengan *stainless steel roller*. Setelah itu, larutan dope langsung dimasukkan kedalam bak koagulasi berisi air demineralisasi selama 5 menit hingga membran terangkat dari cetakan kaca. Membran yang telah terbentuk selanjutnya disimpan dalam wadah berisi akuades.

## Karakterisasi Membran

Membran hasil preparasi dikarakterisasi menggunakan *scanning electron microscope* (SEM), *atomic force microscopy* (AFM), *thermo gravimetry analysis* (TGA), dan sudut kontak.

## Pengukuran Kinerja Membran

- a. Fluks Air Murni dan Kristal Violet

Membran dipotong dengan diameter 5.5 cm berbentuk lingkaran. Analisa fluks air murni dan kristal violet dilakukan dengan sistem *dead-end cylindrical filtration stirred cell*. Analisa dilakukan pada tekanan sebesar 2 bar dalam selang waktu 2 menit, pada setiap membran diukur volume permeat menggunakan gelas ukur. Selanjutnya, dilakukan perhitungan fluks air selama waktu pengukuran dengan menggunakan Persamaan (1).

$$J = \frac{V}{A.t} \quad (1)$$

dimana J adalah fluks ( $L/m^2.jam$ ), V adalah volume permeat (Liter), A adalah luas permukaan membran ( $m^2$ ) dan t adalah waktu (jam) (Mulder, 1996).

#### b. Rejeksi

Larutan kristal violet dengan konsentrasi 50 mg/L disiapkan sebagai larutan umpan (*feed*). Selanjutnya larutan dilewatkan pada membran dengan bantuan alat *dead-end cylindrical filtration cell* pada tekanan 2 bar dan pengadukan konstan. Setelah itu, konsentrasi zat warna pada permeat hasil filtrasi dilakukan analisis dengan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang 590 nm. Rejeksi dari kristal violet dapat dihitung menggunakan Persamaan (2).

$$R = \left(1 - \left(\frac{C_p}{C_f}\right)\right) \times 100\% \quad (2)$$

dimana R merupakan koefisien rejeksi,  $C_p$  merupakan konsentrasi kristal violet

dalam permeat dan  $C_f$  merupakan konsentrasi kristal violet dalam larutan umpan (Maharani dan Damayanti 2013).

### III. HASIL DAN PEMBAHASAN Zeolit-Y, KTZ, dan KTZ Teroksidasi Hasil Sintesis

Zeolit-Y, komposit karbon/zeolit dan KTZ hasil sintesis dilakukan dengan XRD. Difaktogram zeolit-Y pada Gambar 1. (c) dibandingkan dengan data JCPDS No. 39-1380 untuk mengkonfirmasi fasa kristal zeolit-Y.

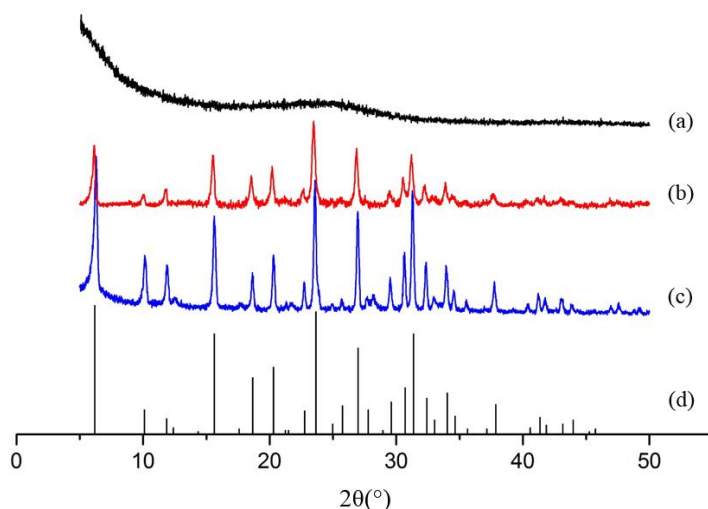
Pada Gambar 1. (c) terdapat puncak-puncak difraktogram pada  $2\theta = 6,2^\circ, 10,1^\circ, 11,9^\circ, 20,3^\circ, 23,6^\circ, 26,9^\circ, 30,7^\circ, 31,3^\circ$ . Puncak-puncak tersebut sesuai dengan data JCPDS, yang menandakan bahwa zeolit-Y berhasil disintesis (Guan dkk., 2009). Pada Gambar 1. (b) merupakan difraktogram komposit karbon/zeolit. Pada Gambar 1. (b) tersebut terlihat bahwa puncak-puncak khas zeolit-Y masih ada pada difraktogram komposit zeolit-Y/karbon yang menandakan sukrosa telah masuk ke dalam pori zeolit-Y dan setelah proses karbonisasi, sukrosa berubah menjadi karbon yang memiliki bentuk seperti zeolit-Y tanpa merubah struktur kristal dari zeolit-Y sendiri. Pada Gambar 1 (c) merupakan difraktogram KTZ, pada gambar tersebut terlihat bahwa tidak terdapat lagi puncak-puncak karakteristik zeolit. Hal tersebut menandakan bahwa



penghilangan templat dengan asam telah berhasil dilakukan (Chen dkk., 2007).

Ukuran pori zeolit dan KTZ hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan BET, seperti yang terlihat pada Tabel 2. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa terjadi peningkatan ukuran pori dan luas permukaan KTZ dibandingkan dengan zeolit. Hal tersebut menunjukkan keberadaan sebagian besar mesopori terbentuk pada karbon yang dihasilkan,

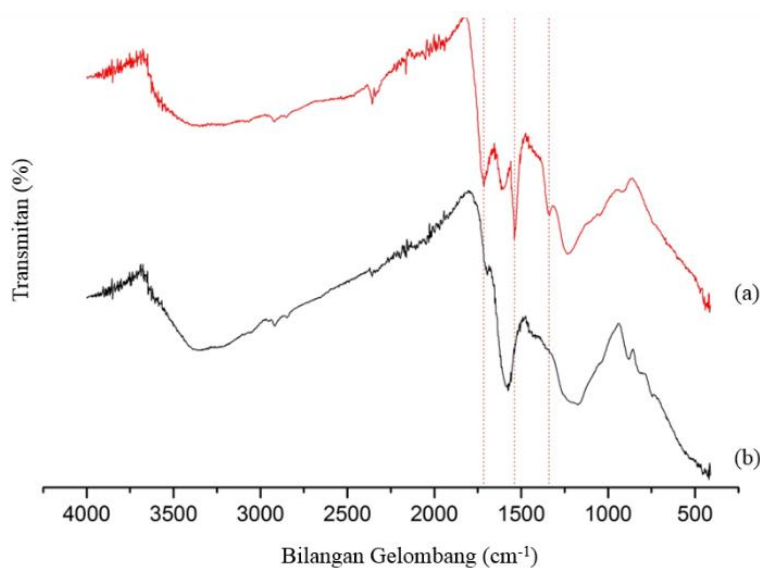
yang diakibatkan oleh tidak sempurnanya pengisian karbon (sukrosa) pada pori zeolit-Y (Guan dkk., 2009). Peningkatan luas permukaan karbon disebabkan oleh pembentukan mesopori dan mikropori pada karbon. Selain itu, celah antarpartikel pada karbon juga berpengaruh terhadap luas permukaan, sehingga molekul N<sub>2</sub> banyak teradsorp pada pori karbon (Kyotani dkk., 2003).



Gambar 1. Hasil difaktogram (a) KTZ, (b) komposit zeolit-Y/karbon, (c) Zeolit-Y dan (d) standar zeolite-Y berdasarkan JCPDS No. 39-1380

Tabel 1. Karakterisasi BET zeolit-Y dan KTZ hasil sintesis

	Zeolit-Y	KTZ
Luas permukaan BET (m <sup>2</sup> /g)	678,48	1254,38
Volume pori total (cm <sup>3</sup> /g)	0,34	0,94
Mikroporositas (%)	91,43	16,15
Diameter pori rata	1,02	1,75



Gambar 2. Spektra FTIR (a) KTZ teroksidasi dan (b) KTZ

KTZ dan KTZ teroksidasi hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan FTIR, seperti yang terlihat pada Gambar 2. Pada spektra FTIR KTZ teroksidasi terdapat perbedaan jika dibandingkan spektra FTIR KTZ, yaitu muncul puncak serapan baru pada bilangan gelombang  $1715\text{ cm}^{-1}$ ,  $1538\text{ cm}^{-1}$  dan  $1340\text{ cm}^{-1}$ . Puncak serapan pada  $1715\text{ cm}^{-1}$  dan  $1340\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan adanya vibrasi C=O dan C-O dari gugus asam karboksilat. Adanya gugus asam karboksilat pada KTZ menandakan bahwa proses oksidasi berhasil dilakukan (Yin dkk., 2013). Puncak serapan yang diperoleh pada  $1538\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan terjadinya vibrasi  $-\text{NO}_2$  aromatik (Tao dan Xiaoqin, 2008).

### Karakteristik Membran

Membran PSf/PEG dan PSf/PEG-KTZ teroksidasi dikarakterisasi menggunakan SEM, seperti yang terlihat pada Gambar 3. Morfologi permukaan atas

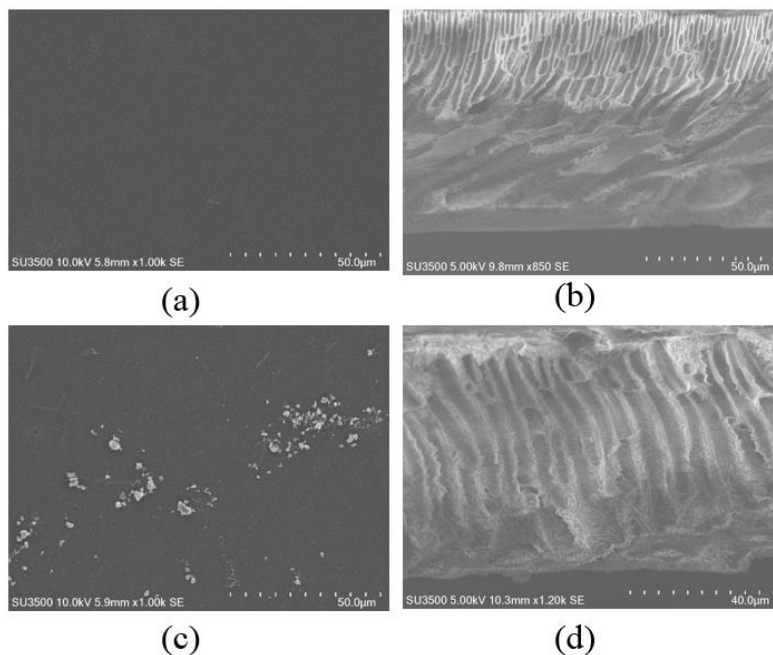
membran PSf/PEG dan PSf/PEG-KTZ teroksidasi ditampilkan pada Gambar 3 (a) dan (c). Pada Gambar 3 (a) terlihat bahwa permukaan membran halus tanpa penambahan pengisi, sedangkan pada Gambar 3 (c) terlihat adanya pertikel pengisi KTZ teroksidasi yang teraglomerasi pada permukaan membran. Morfologi tampang lintang membran PSf/PEG dan PSf/PEG-KTZ teroksidasi ditampilkan pada Gambar 3 (b) dan (d).

Pada gambar tampang lintang tersebut diketahui bahwa ketebalan lapisan selektif membran bertambah dari  $1,31\text{ }\mu\text{m}$  menjadi  $2,52\text{ }\mu\text{m}$  pada penambahan pengisi KTZ teroksidasi. Penebalan tersebut terjadi akibat adanya *delayed demixing* yang diakibatkan oleh interaksi yang kuat antara pengisi dengan polimer (Liu dkk., 2014).

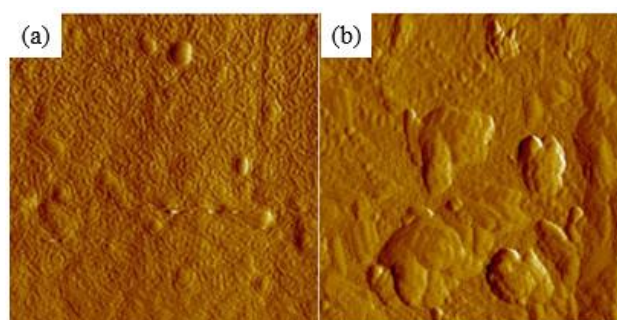
Kekasaran membran PSf/PEG dan PSf/PEG-KTZ teroksidasi dianalisa

menggunakan AFM, seperti yang ditampilkan pada Gambar 4. Penambahan pengisi akan menambah kekasaran membran, karena keberadaan pengisi di permukaan membran. Pada Gambar 4. (b)

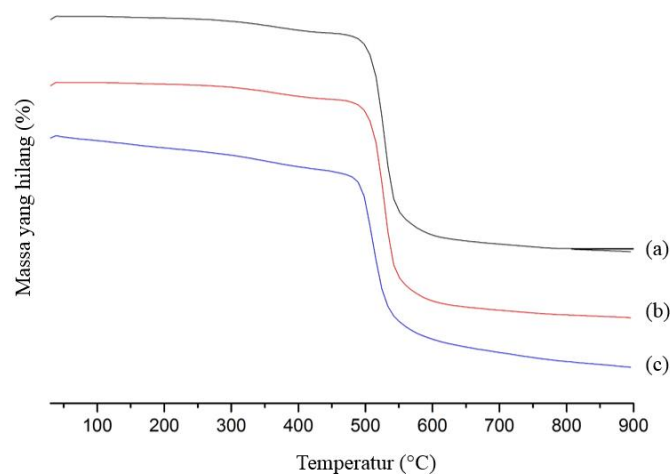
terlihat adanya nodul besar yang menandakan adanya aglomerasi pengisi karena gaya adhesi yang kuat antara polimer dengan pengisi (Mohamad dkk., 2016).



Gambar 3. Hasil SEM (a) permukaan membran PSf/PEG, (b) tampang lintang membran PSf/PEG, (c) permukaan membran PSf/PEG-KTZ teroksidasi dan (d) tampang lintang membran PSf/PEG-KTZ teroksidasi



Gambar 4. Hasil AFM (a) membran PSf/PEG dan (b) membran PSf/PEG-KTZ teroksidasi



Gambar 5. Termogram membran (a) PSf/PEG, (b) PSf/PEG-KTZ dan (c) PSf/PEG-KTZ teroksidasi

Kestabilan termal membran dianalisa menggunakan thermogravimetric analysis (TGA), seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5. Termogram membran PSf/PEG dan PSf/PEG-KTZ terdapat satu tahap penurunan berat, yaitu dekomposisi polimer PSf. Pengisi KTZ dapat meningkatkan suhu awal dekomposisi membran dari 198,8°C menjadi 200,8°C. Hal tersebut dikarenakan adanya interaksi yang baik antara pengisi KTZ dengan polisulfon sehingga dapat meningkatkan ketahanan termal membran.

Sifat hidrofilitas dari masing-masing membran dianalisa menggunakan analisa sudut kontak, seperti yang ditampilkan pada Tabel 3. Pada Tabel 3 tersebut terlihat bahwa pengisi KTZ dapat meningkatkan sifat hidrofilitas membran yang ditunjukkan dengan penurunan nilai sudut kontak. Hal tersebut dikarenakan adanya pengisi KTZ mempunyai gugus hidrofilik seperti gugus fenol yang berada pada permukaan membran, sehingga dapat

menambah sifat hidrofilitas membran (Yin dk., 2013). Sedangkan pengisi KTZ teroksidasi menurunkan sifat hidrofilitas membran yang ditunjukkan dengan peningkatan nilai sudut kontak. Hal tersebut dikarenakan adanya halangan sterik dan interaksi elektrostatis yang besar antara pengisi dengan polimer ataupun pengisi dengan sesamanya yang menyebabkan pengisi berada secara tidak beraturan pada membran pada saat proses inversi fasa (Qiu dkk., 2009).

Kinerja membran diukur dengan pengukuran fluks dan rejeksi, seperti yang terlihat pada Tabel 4. Penambahan pengisi KTZ pada membran dapat meningkatkan nilai fluks air. Hal ini sesuai dengan sifat hidrofilitas membran. Selain itu, pori KTZ sebesar 1,75 nm dapat melewati molekul air sebesar 2,9 nm sehingga molekul air dapat melewati pori KTZ dengan laju difusi yang lebih besar dan meningkatkan nilai fluks air (Liu dkk., 2014).

Penambahan pengisi KTZ teroksidasi pada membran dapat menurunkan nilai fluks. Hal ini sesuai dengan penurunan sifat hidrofilitas membran. Penambahan pengisi KTZ teroksidasi juga menebalkan lapisan selektif membran. Penebalan lapisan selektif akan mengurangi laju difusi air.

Nilai rejeksi pada membran dengan pengisi KTZ mengalami penurunan jika dibandingkan dengan membran PSf/PEG. Hal ini diduga terdapat *sieve in cage* pada membran dengan pengisi KTZ yang bersifat tidak selektif sehingga menurunkan nilai rejeksi.

Penambahan pengisi KTZ teroksidasi dapat meningkatkan rejeksi. Hal ini dikarenakan penebalan lapisan selektif membran dapat meningkatkan nilai rejeksi. Selain itu, gugus karboksilat pada pengisi KTZ teroksidasi juga dapat mengadsorpsi kristal violet, sehingga dapat

meningkatkan nilai rejeksi.

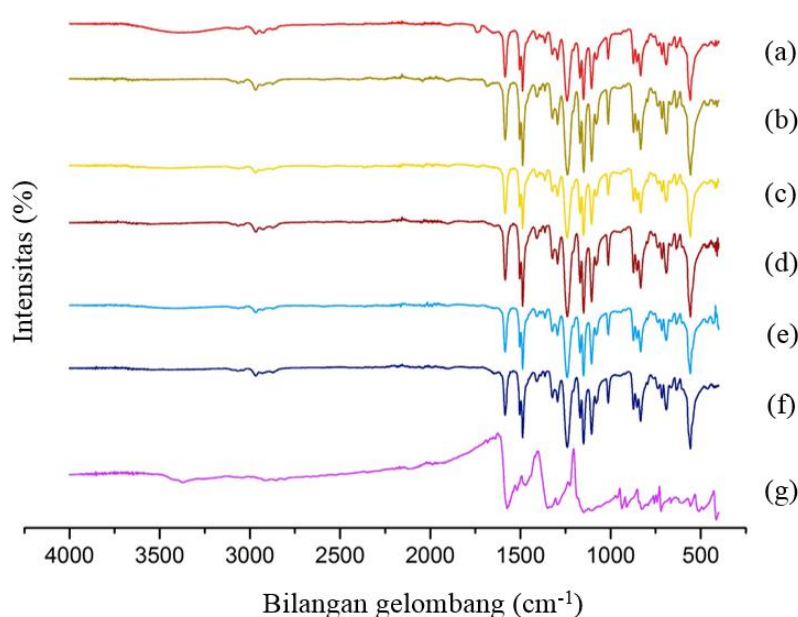
Adanya perubahan gugus fungsi pada membran setelah digunakan untuk ultrafiltrasi kristal violet ditunjukkan pada Gambar 6. Pada Gambar 6 (f) merupakan hasil spektra FTIR membran PSf/PEG. Pada spektra tersebut muncul puncak serapan pada bilangan gelombang  $1584\text{ cm}^{-1}$ ,  $1409\text{ cm}^{-1}$ ,  $1290\text{ cm}^{-1}$ ,  $1240\text{ cm}^{-1}$ ,  $1150\text{ cm}^{-1}$  dan  $1040\text{ cm}^{-1}$ . Puncak serapan pada  $1293\text{ cm}^{-1}$  dan  $1150\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi regangan asimetrik dan simetrik dari gugus O=S=O. Puncak serapan pada  $1240\text{ cm}^{-1}$  dan  $1040\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi regangan asimetrik dan simetrik dari gugus C-O-C (Ionita dkk., 2014). Puncak serapan pada  $1409\text{ cm}^{-1}$  menandakan terjadinya vibrasi asimetrik dari -CH<sub>3</sub> dan puncak serapan pada  $1584\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan terjadinya vibrasi C=C aromatik (Sianipar dkk., 2016).

Tabel 2. Hasil analisa sudut kontak membran

Membran	PSf/PEG	PSf/PEG-KTZ	PSf/PEG-KTZ teroksidasi
Sudut Kontak	81,28°	80,86°	81,63°

Tabel 3. Hasil uji fluks dan rejeksi membran terhadap kristal violet

Membran	Fluks Air (L/m <sup>2</sup> jam)	Fluks Kristal Violet (L/m <sup>2</sup> jam)	Rejeksi Kristal Violet (%)
PSf/PEG	101,91	80,43	98,96
PSf/PEG-KTZ	320,05	275,83	82,91
PSf/PEG-KTZ teroksidasi	60,64	50,11	99,40



Gambar 6. Spektra IR (a) Membran PSf/PEG-KTZ teroksidasi setelah filtrasi, (b) Membran PSf/PEG-KTZ teroksidasi sebelum filtrasi, (c) Membran PSf/PEG-KTZ setelah filtrasi, (d) Membran PSf/PEG-KTZ sebelum filtrasi, (e) Membran PSf/PEG setelah filtrasi, (f) Membran PSf/PEG sebelum filtrasi dan (g) kristal violet

Pada Gambar 6 (d) merupakan spektra FTIR membran PSf-PEG/KTZ sebelum proses ultrafiltrasi. Pada membran PSf-PEG/KTZ menunjukkan tidak terbentuknya puncak serapan baru jika dibandingkan dengan spektra FTIR membran PSf/PEG. Hal tersebut sesuai dengan penelitian yang dilaporkan oleh Ionita dkk (2014), bahwa penambahan pengisi GO pada membran PSf tidak menimbulkan puncak serapan baru ataupun pergeseran. Hal tersebut menandakan tidak adanya interaksi antara pengisi dengan polimer (Ionita dkk., 2014).

Pada Gambar 6 (b) juga ditunjukkan spektra FTIR membran PSf/PEG-KTZ teroksidasi. Pada spektra tersebut muncul puncak baru pada bilangan gelombang DOI: <http://dx.doi.org/10.12962/j25493736.v6i2.1145>

1700  $\text{cm}^{-1}$  jika dibandingkan dengan spektra FTIR PSf/PEG. Puncak serapan pada 1700  $\text{cm}^{-1}$  yaitu vibrasi dari C=O yang terbentuk dari gugus pengisi KTZ teroksidasi.

Analisa FTIR selanjutnya dilakukan pada membran setelah ultrafiltrasi. Gambar 6 (a), (c), dan (e) merupakan spektra FTIR membran PSf/PEG, PSf/PEG-KTZ dan PSf/PEG-KTZ teroksidasi setelah digunakan pada proses filtrasi kristal violet. Pada spektra tersebut ditunjukkan bahwa terdapat penurunan intensitas pada spektra FTIR membran setelah filtrasi jika dibandingkan dengan spektra FTIR membran sebelum filtrasi. Penurunan intensitas menandakan kristal violet juga teradsorp pada membran pada saat proses filtrasi berlangsung.

## KESIMPULAN

Membran gabungan dengan variasi pengisi KTZ dan KTZ teroksidasi telah berhasil dipreparasi. Membran diuji kinerjanya dengan uji pemisahan terhadap kristal violet dan didapatkan hasil berupa nilai fluks dan rejeksi. Membran gabungan PSF/PEG dengan pengisi KTZ memiliki nilai fluks air tertinggi, yaitu sebesar 320,05 L/m<sup>2</sup>jam. Nilai rejeksi tertinggi diperoleh pada membran PSF/PEG dengan pengisi KTZ teroksidasi, yaitu sebesar 99,4%. Pada penggunaan variasi pengisi pada membran gabungan ini didapatkan bahwa nilai fluks dan rejeksi saling berbanding terbalik.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi yang telah mendanai penelitian ini melalui Program Desentralisasi Penelitian DITLITABMAS, Penelitian Unggulan ITS tahun 2015-2016.

## DAFTAR PUSTAKA

Agustina, E., (2013), Karbon Tertemplate Zeolit-Y dengan Aktivasi ZnCl<sub>2</sub> Sebagai Material Penyimpan Hidrogen, *Thesis*, Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.

Alam, N., Mokaya, R., (2011), Characterization and hydrogen storage of Pt-doped carbons templated by Ptex changed zeolite Y, *Journal of Microporous and Mesoporous Materials*, 142, pp. 716-724.

Alventosa-deLara, E., Barredo-Damas, S., Alcaina-Miranda, M. I., Iborra-Clar, M. I., (2012), Ultrafiltration technology with a ceramic membrane for reactive dye removal: Optimization of membrane performance, *Journal of Hazardous Materials*, 209-210, pp. 492-500.

Chen L., Singh R. K., Webley P., (2007), Synthesis characterization and hydrogen storage properties of 38 microporous carbons template by cation exchanged forms of zeolite Y with propylene and butylene as carbon precursors, *Microporous and Mesoporous Materials*, 102, pp. 159-170.

Guan C., Wang K., Yang C., Zhao X. S., (2009). Characterization of a zeolite-templated carbon for H<sub>2</sub> storage application, *Journal of Microporous and Mesoporous Materials*, 118, pp. 503-507.

Ionita, M., Pandeale, Andreea M., Crica, L., Pilan, L., (2014), Improving the Thermal and Mechanical Properties of Polysulfone by Incorporation of Graphene Oxide. *Composites Part B: Engineering*, 59, pp. 133-139.

Kayadoe, V., (2013), Sintesis dan Karakterisasi Karbon Tertemplate Zeolit NaY dengan Prekursor Sukrosa sebagai Material Penyimpan Hidrogen, *Thesis*, Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.

Kyotani, Tkashi, Ma, Zhixin, Akira, T., (2003), Template synthesis of novel porous carbons using various types of zeolites, *Journal of Carbon*, 41, pp. 1451-1459.

- Leo, C. P., Ahmad Kamil, N. H., Junaidi, M. U. M., Kamal, S. N. M., Ahmad, A. L., (2013), The potential of SAPO-44 zeolite filler in fouling mitigation of polysulfone ultrafiltration membrane, *Separation and Purification Technology*, 103, pp. 84-91.
- Liu, F., Ma, B. R., Zhou, D., Xiang, Y. H., Xue, L. X., (2014), Breaking through tradeoff of Polysulfone ultrafiltration membranes by zeolite 4A, *Microporous and Mesoporous Materials*, 186, pp. 113-120.
- Ma, Y., Shi, F., Ma, J., Wu, M., Zhang, J., Gao, C., (2011), Effect of PEG additive on the morphology and performance of polysulfone ultrafiltration membranes, *Desalination*, 272, pp. 51-58.
- Magueijo, V. M., Anderson, L. G., Fletcher, A. J., Shilton, S. J., (2013), Polysulfone mixed matrix gas separation hollow fibre membranes filled with polymer and carbon xerogels, *Chemical Engineering Science*, 92, pp. 13-20.
- Maharani, R. M., Damayanti, A., (2013). Pengolahan Limbah Cair Rumah Makan Menggunakan Membran Nanofiltrasi Silika Aliran Cross Flow untuk Menurunkan Fosfat dan Amonium, *Jurnal Teknik POMITS*, 2, pp. D.92-D.97.
- Maria, C. P., Mu'nisatun S., Rany, S., Djoko, M., (2007), Studi pendahuluan mengenai degradasi zat warna azo (metil orange) dalam pelarut air menggunakan mesin berkas elektron 350 keV/10mA, *Jurnal Forum Nuklir*, 1, pp. 31-44.
- Mohamad, M. B., Fong, Y. Y., Shariff, A., (2016), Gas Separation of Carbon Dioxide from Methane using Polysulfone Membrane Incorporated with Zeolite-T, *Procedia Engineering*, 148, pp. 621-629.
- Mulder, M., (1996), Basic Principles of membrane Technology 2nd ed., *Kluwer Academic Publisher*: Doerdrecht.
- Padaki, M., Surya Murali, R., Abdullah, M. S., Misdan, N., Moslehyani, A., Kassim, M. A., Hilal, N., Ismail, A. F., (2015), Membrane technology enhancement in oil-water separation. A review, *Desalination*, 357, pp. 197-207.
- Qiu, S., Wu, L., Pan, X., Zhang, L., Chen, H., Gao, C., (2009), Preparation and properties of functionalized carbon nanotube/PSF blend ultrafiltration membranes, *Journal of Membrane Science*, 342, pp. 165-172.
- Sianipar, M., Hyun, S., Min, C., Tijing, L. D., Kyong, H., (2016), Journal of Industrial and Engineering Chemistry Potential and performance of a polydopamine-coated multiwalled carbon nanotube / polysulfone nanocomposite membrane for ultrafiltration application. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 34, pp. 364-373.
- Su, F., Zhao, X. S., Lv.Lu., Zhou, Z., (2004), Synthesis and characterization of microporous carbons templated by ammonium-form zeolite Y, *Journal of Carbon*, 42, pp. 2821 – 2831.
- Tao, X., Xiaoqin, L., (2008), Peanut Shell Activated Carbon: Characterization, Surface Modification and Adsorption of Pb<sup>2+</sup> from Aqueous Solution, *Chinese*



*Journal of Chemical Engineering*, 16,  
pp. 401-406.

Yin, J., Zhu, G., Deng, B., (2013). Multi-walled carbon nanotubes (MWNTs)/polysulfone (PSU) mixed matrix hollow fiber membranes for enhanced water treatment, *Journal of Membrane Science*, 437, pp. 237-248.