

KESAN JENIS PELARUT KE ATAS PRESTASI PEMISAHAN  
DAN MORFOLOGI MEMBRAN ASIMETRIK PENURAS NANO

WAN ROHANA ZAKARIA

LP  
42  
FST  
21  
2005

FAKULTI SAINS DAN TEKNOLOGI  
UNIVERSITI SAINS DAN TEKNOLOGI MALAYSIA

2005

KESAN PELARUT KE ATAS PRESTASI PEMISAHAN DAN MORFOLOGI  
MEMBRAN ASIMETRIK PENURAS NANO

Oleh

Wan Rohana binti Zakaria

Laporan Penyelidikan ini diserahkan untuk memenuhi  
sebahagian daripada keperluan bagi  
Ijazah Sarjana Muda Teknologi Alam Sekitar

Jabatan Sains Kejuruteraan  
Fakulti Sains Dan Teknologi  
KOLEJ UNIVERSITI SAINS DAN TEKNOLOGI MALAYSIA  
2005

1100036925

LP  
43  
FGT  
5  
2005



JABATAN SAINS KEJURUTERAAN  
FAKULTI SAINS DAN TEKNOLOGI  
KOLEJ UNIVERSITI SAINS DAN TEKNOLOGI MALAYSIA

PENGAKUAN DAN PENGESAHAN LAPORAN  
PROJEK PENYELIDIKAN I DAN II

Adalah ini diakui dan disahkan bahawa laporan penyelidikan bertajuk:  
KESAN JENIS PELARUT KE ATAS PRESTASI PEMISAHAN DAN MORFOLOGI  
MEMBRAN ASIMETRIK PENURAS NANO oleh WAN ROHANA ZAKARIA. No.  
Matrik UK 6506 telah diperiksa dan semua pembetulan yang disarankan telah  
dilakukan. Laporan ini dikemukakan kepada Jabatan Sains Kejuruteraan sebagai  
memenuhi sebahagian daripada keperluan memperoleh Ijazah SARJANA MUDA  
TEKNOLOGI (ALAM SEKITAR), Fakulti Sains dan Teknologi, Kolej Universiti  
Sains dan Teknologi Malaysia.

Disahkan oleh:

Penyelia Utama

DR. NORA'AINI BINTI ALI

Pensyarah

Nama: Dr. Nora'aini bt Ali

Jabatan Sains Kejuruteraan  
Fakulti Sains dan Teknologi

Cop Rasmi:

Kolej Universiti Sains dan Teknologi Malaysia  
21030 Kuala Terengganu.

Tarikh: 25.4.05

Penyelia Kedua (jika ada)

Nama: En Asmadi bin Ali

ASMADI BIN ALI @ MAHMUD

Pensyarah

Cop Rasmi:

Jabatan Sains Kejuruteraan  
Fakulti Sains dan Teknologi  
Kolej Universiti Sains dan Teknologi Malaysia  
21030 Kuala Terengganu.

Tarikh: 22.04.05

Ketua Jabatan Sains Kejuruteraan

Nama: PM.Ir Ahmad bin Jusoh

Cop Rasmi:

Tarikh: 23.04.05

## PENGHARGAAN

Assalamualaikumwarahmatullahiwabarakatuh...

Alhamdulillah, syukur ke hadrat Ilahi kerana dengan limpah kurnia dan pertolonganNya saya berjaya menyiapkan Projek Ilmiah Tahun Akhir (PITA) ini. Pertama sekali jutaan terima kasih tidak terhingga kepada Ayahanda tercinta Zakaria bin Awang dan Bonda Wan Jah Wan Ibrahim serta keluarga di atas dorongan dan nasihat yang diberikan sepanjang saya menjalankan PITA. Seterusnya ucapan terima kasih saya tujukan kepada Dr. Nora'aini Ali selaku Pensyarah Jabatan Sains Kejuruteraan merangkap penyelia saya, En. Asmadi Ali, Pn. Hasiah dan En. Zul di atas segala tunjuk ajar dan bimbingan yang diberikan kepada saya sepanjang proses penyelidikan PITA ini. Juga untuk kakitangan makmal instrumentasi, Cik Mazalina, Puan Zulaikha, En. Zali, En. Razman dan yang lainnya terima kasih di atas kerjasama yang padu, yang telah diberikan sepanjang penyelidikan ini berjalan.

Tidak ketinggalan juga saya ingin mengucapkan ribuan terima kasih kepada **teman-teman serumah dan rakan-rakan seperjuangan** yang turut menjalankan **penyelidikan PITA** kerana di atas kerjasama, bimbingan serta sumbangan buah fikiran yang bernas dari anda semua. Akhir kata, kepada semua yang terlibat secara langsung **ataupun tidak langsung** sepanjang menjalankan penyelidikan PITA ini, saya ingin merakamkan jutaan terima kasih di atas segala pertolongan kalian. Hanya Allah yang dapat membalasnya. **Jasamu Dikenang..Wassalam...**

## ISI KANDUNGAN

TAJUK	HALAMAN	
MUKA SURAT JUDUL	i	
BORANG PENGESAHAN DAN KELULUSAN TESIS	ii	
PENGHARGAAN	iii	
SENARAI KANDUNGAN	iv	
SENARAI JADUAL	viii	
SENARAI RAJAH	ix	
SENARAI SINGKATAN DAN SIMBOL	xi	
SENARAI LAMPIRAN	xiii	
ABSTRAK	xiv	
ABSTRACT	xv	
<b>BAB 1</b>	<b>Pengenalan</b>	
1.1	Definisi Membran	2
1.2	Prinsip Asas Proses Membran	2
1.3	Kelebihan Penggunaan Membran	4
1.4	Klasifikasi Membran	4
1.5	Parameter Yang Mempengaruhi Penghasilan Membran	6
1.6	Pernyataan Masalah	6
1.7	Objektif	7

1.8	Skop Kajian	7
-----	-------------	---

## **BAB 2**      **ULASAN BAHAN RUJUKAN**

2.1	Penuras Nano	10
2.2	Pemilihan Pelarut	10
2.2.1	Polietersulfona (PES)	10
2.2.2	Pelarut	11
2.2.3	Air Sebagai Bukan Pelarut	11
2.3	Pelarut Sebagai Pembentuk Struktur Membran	11
2.4	Pelarut Berlainan Bagi Jenis Polimer Yang Berlainan	13
2.4.1	Pelarut bagi Poliersulfona (PES) dan Polisulfona (PSF)	13
2.4.2	Pelarut bagi Poli (Vinilidan Floraid)(PVPF)	14
2.4.3	Pelarut bagi Polimer Selulos Asetat (CA)	14
2.4.4	Pelarut bagi Polimer Poliacvilonitril (PAN)	14
2.4.5	Pelarut bagi Polimer POLY (etilene-ko-vinil alkohol) (EVAL)	14
2.5	Kesan Pelarut Ke Atas Penyediaan Membran Asimetrik	15
2.5.1	Pemilihan Membran Asimetrik	16
2.6	Kesan Daripada Sifat-Sifat Pelarut	17
2.7	Pengaruh Pelarut Semulajadi	17
2.8	Kesan Nisbah Pelarut Ke Atas Sifat-Sifat Dan Struktur Membran.	18
2.9	Kesan Pelarut Ke Atas Kepekatan Polimer.	19

2.10	Kesan Kelembapan Kepada Pelarut.	19
2.11	Kesan Pemilihan Pelarut Ke Atas Pembentukan Struktur Membran	20
2.12	Kepekatan Kekutuban	20

### **BAB 3           METODOLOGI**

3.1	Bahan	24
3.1.1	Polimer Polietersulfona (PES)	24
3.1.2	Bahan Pelarut	25
3.1.3	Bahan Bukan Pelarut	28
3.2	Formulasi Larutan	29
3.3	Kaedah Turbiditrik	30
3.4	Penyediaan Larutan Membran	33
3.5	Penyediaan kepingan rata membran	36
3.5.1	Teori pembentukan membran	41
3.5.2	Pengiraan kadar ricihan	43
3.6	Penilaian Prestasi Membran	43
3.6.1	Ujian kebolehtelapan air suling	44
3.6.2	Ujian penyingkiran air garam	48
3.7	Kepekatan Kekutuban	50
3.8	Mikroskop Pengimbas Elektron (SEM)	55

## **BAB 4            KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN.**

4.1	Pengukuran Fluks Air Tulen	61
4.1.1	Pemalar Kebolehtelapan Air Suling	63
4.2	Imbasan Imej Struktur Keratan Rentas Membran	65
4.3	Penyingkiran Air Garam (NaCl).	69
4.3.1	Penyingkiran Air Garam Oleh Membran Berstruktur Longgar	70
4.3.2	Penyingkiran Ion Cl <sup>-</sup> Oleh Membran Berstruktur Padat	74
4.4	Kesan Jenis Pelarut Ke Atas Prestasi Membran	77
4.4.1	Kesan Jenis Pelarut Ke Atas Membran Berstruktur Longgar	78
4.3.2	Kesan Jenis Pelarut Ke Atas Membran Berstruktur Padat	80

## **BAB 5            KESIMPULAN DAN CADANGAN.**

5.1	Kesimpulan.	83
5.2	Cadangan.	85

<b>RUJUKAN</b>	87
----------------	----

<b>LAMPIRAN</b>	92
-----------------	----

<b>VITAE</b>	105
--------------	-----



## SENARAI JADUAL

<b>Jadual</b>	<b>Halaman</b>
3.1 Sistem dan komposisi dalam penghasilan membran yang berlainan.	24
3.2 Sifat-sifat fizikal dan kimia pelarut NMP	26
3.3 Sifat-sifat fizikal dan kimia pelarut DMF	28
3.4 Komposisi polimer/pelarut/bukan pelarut	29
3.5 Komposisi sebelum dan selepas turbiditrik	33
3.6 Jejari bahan pelarut dan kebolehtelapan setiap ion dalam terlarut	55
4.1(a) Pekali kebolehtelapan membran berstruktur longgar	63
4.1(b) Pekali kebolehtelapan membran berstruktur padat	63
4.3(a) Peratus penyingkiran pada tekanan berbeza bagi membran berstruktur longgar	71
4.3(b) Peratus penyingkiran pada tekanan berbeza bagi membran berstruktur padat	74
4.4(a) Nilai fluks dan peratus penyingkiran pada membran berstruktur longgar	79
4.4(b) Nilai fluks dan peratus penyingkiran pada membran berstruktur longgar	81

## SENARAI RAJAH

<b>No.Rajah</b>		<b>Halaman</b>
1.1	Skematik kehadiran dua fasa sistem yang diasingkan oleh membran	3
3.1	Struktur Molekul Polimer Polietersulfona (PES)	25
3.2	Struktur kimia NMP.	26
3.3	Struktur kimia DMF.	27
3.4	Susunan radas untuk kaedah pentitratan (turbiditrik)	31
3.5	Penyediaan radas untuk penghasilan larutan memban.	34
3.6	Mesin pengacuan membran	36
3.7	Menguji kerataan plat kaca.	37
3.8	Penuangan larutan membra.	38
3.9	Pembentukan lapisan membran	39
3.10	Membran direndam dalam takungan pengental.	39
3.11	Perendaman membran dalam takungan tertutup berisi metanol	40
3.12	Membran digantung untuk tujuan pengeringan	40
3.13	Diagram skematik teknik rendaman pemendakan	42
3.14	Operasi sel hujung tertutup	44
3.15	Pemasangan alat pengukur kebolehtelapan.	46
3.16	Rajah skematik ujian penelapan air suling	47
3.17	Konsep asas bagi pemisahan membran.	51
3.18	Kepekatan kekutuban; penerangan pada keadaan yang stabil	51

<b>No.Rajah</b>	<b>Halaman</b>
3.19 Mikroskop Pengimbas Elektron (SEM) (Model JSM P/N HP475)	55
3.20 Penyalut emas automatik. (JFC 1600)	56
3.21 Sampel dimasukkan ke tempat sampel pada SEM	57
3.22 Carta alir proses penghasilan dan pengukuran prestasi membran	58
4.1(a) Graf fluks melawan tekanan bagi membran berstruktur longgar (PES 18/N dan PES 18/D)	65
4.1 (b) Graf fluks melawan tekanan bagi membran berstruktur padat (PES 25/N dan PES 25/D)	65
4.2 Imej keratan rentas membran.	65
4.3(a) Graf penyingkiran melawan tekanan membran berstruktur longgar (PES 18/N dan PES 18/D)	71
4.3(b) Graf penyingkiran melawan tekanan membran berstruktur longgar (PES 25/N dan PES 25/D)	74
4.4 (a) Graf fluks melawan peratus penyingkiran bagi membran berstruktur longgar.	78
4.4 (b) Graf fluks melawan peratus penyingkiran bagi membran berstruktur padat.	80

## SENARAI SINGKATAN DAN SIMBOL

### Singkatan Dan Simbol

CA	Selulos asetat
DMF	Dimetilformamida
DMAc	Dimetilacetamida
DMSO	dimetilsulfoksida
DMPU	dimetilpropileneurea
EVAl	poli (etelin-co-vinil-alkohol)
JMR	Jisim molekul relatif
MF	Penuras mikro
M	Molar
MF	Penuras mikro
MW	Berat molekul ( <i>Molecular Weight</i> )
MWCO	<i>Molecular Weight Cut-Off</i>
NaCl	Sodium klorida
NF	penuras nano
NMP	N-metil pirrolidon
PES	Polietersulfon
PSf	Polisulfona
PVDF	poli (vinilidan florida)
PAN	poliacrilonitril.
RO	Osmosis balikan

## Singkatan Dan Simbol

SEM	<i>Scanning electron microscopic</i> (Pengimbas elektron mikroskopik)
TMU	Tetrametilurea
THF	Tetrahidrofur
UF	Penuras ultra
A	Luas kawasan membran yang berkesan
$C_b$	Kepekatan pukal
$C_f$	Kepekatan larutan suapan
$C_r$	Kepekatan hasil tertahan
$C_p$	Kepekatan larutan tertelap
$C_w$	Kepekatan dinding
$e$	Cas elektron
$D$	Pekali kebolelsebaran
$J_v$	Fluks
$J.c_p$	Aliran bahan terlarut yang melepasi membran
$J.c$	Aliran perolakan bahan terlarut yang tertahan pada membran
$k$	Pekali pemindahan jisim
$K_B$	Pemalar Boltzman
nm	Nanometer
$P_m$	Pemalar kebolehtelapan
Pa	Pascal
$Q_i$	Cas ion
$r$	Jejari sel pengacau
$R_{obs}$	Penyingkiran pemerhatian

### Singkatan Dan Simbol

$r_p$	Jejari liang berkesan
rpm	Putaran per minit
$R_{real}$	Penyingkiran sebenar
$t$	masa
$T$	Suhu operasi
$Cl^-$	Ion klorida
$Na^+$	Ion natrium
$(\gamma)$	Kadar pericikan
$\nu$	Kelikatan kinematik
$\delta$	Ketebalan lapisan sempadan
$\mu$	Mikro
$\Delta x/A_k$	Nisbah berkesan ketebalan membran terhadap keporosan
(%w/w)	Peratus berat per berat
$D_\infty$	Kebolelsebaran pukal
$\mu_i^0$	Pergerakan ion
$\Delta P$	Tekanan operasi
V	Isipadu
$\omega$	laju pengacau (rad/saat)
$Z_i$	Valensi ion

## SENARAI LAMPIRAN

<b>Lampiran</b>		<b>Halaman</b>
A1	Pengiraan untuk kaedah turbiditrik (PES 25%/NMP 75%)	92
A2	Pengiraan untuk kaedah turbiditrik (PES 18%/NMP 82%)	93
A3	Pengiraan untuk kaedah turbiditrik (PES 18%/DMF 82%)	94
A4	Pengiraan untuk kaedah turbiditrik (PES 25%/DMF 75%)	95
B1	Penyediaan larutan garam	96
B2	Keluk penentuukuran 0-0.01M	98
B3	Keluk penentuukuran 0-0.1M	99
C	Data ujikaji kebolehtelapan air suling	100
D	Keputusan penyingkiran garam bagi PES 18/D	102
E	Keputusan penyingkiran garam bagi PES 28/D	103
F	Keputusan penyingkiran garam bagi PES 18/N	104
G	Keputusan penyingkiran garam bagi PES 25/N	105

## ABSTRAK

Pembangunan dalam membran asimetrik adalah suatu perkembangan yang besar dalam bidang teknologi menyebabkan ramai para pengkaji mengkaji tentang membran. Hasil kajian tersebut mendapati banyak parameter yang boleh mempengaruhi jenis struktur dan prestasi membran. Walaubagaimanapun, salah satu parameter yang kritikal ialah penggunaan jenis pelarut/bukan pelarut. Oleh sebab itu, kajian ini menggunakan dua jenis pelarut iaitu; N-metil-2-pirolidona (NMP) dan N,N-Dimetilformamida (DMF) untuk menghasilkan dua larutan acuan yang berbeza daripada sistem tenari (polimer/pelarut/bukan pelarut) di mana Polietersulfon (PES) diguna sebagai polimer manakala air suling ( $H_2O$ ) diguna sebagai bukan pelarut. Komposisi membran yang difabrikasikan terbahagi kepada dua jenis iaitu: membran berstruktur longgar (PES 18/75 NMP/7  $H_2O$  [PES18/N] dan PES 18/77 DMF /5  $H_2O$  [PES 18/D]) dan membran berstruktur padat (PES 25/68 NMP /7  $H_2O$  [PES 25/N] dan PES 25/71 DMF/4  $H_2O$  [PES 25/D]). Kepingan rata membran ini dihasilkan dengan menggunakan mesin pengacuan semi automatik yang melibatkan mekanisma fasa pembalikan basah/kering dan fasa pemisahan untuk pembentukan membran. Mikroskop pengimbas elektron (SEM) pula diguna untuk melihat morfologi membran. Keputusan ujikaji prestasi membran yang dihasilkan menunjukkan pekali kebolehtelapan bagi membran menggunakan pelarut DMF lebih tinggi iaitu antara 3-7 [ $\times 10^{-12}$ ]( $m^3/m^2$ .saat. Pa) berbanding dengan membran menggunakan pelarut NMP iaitu hanya di antara 0.6-6 [ $\times 10^{-12}$ ]( $m^3/m^2$ .saat. Pa). Sebaliknya, peratus penyingkiran air garam daripada membran menggunakan pelarut NMP adalah lebih tinggi (14%-41%) berbanding menggunakan pelarut DMF (10%-17%). Morfologi SEM menunjukkan kehadiran struktur kelompong mikro yang paling banyak pada membran PES 18/D, tetapi berkurang pada membran PES 18/N dan membran PES 25/D. Manakala struktur span dan jejari yang halus serta padat terbentuk pada membran PES 25/N. Keputusan yang diperolehi jelas menunjukkan pelarut NMP lebih baik untuk digunakan berbanding pelarut DMF untuk polimer PES dalam menghasilkan membran yang setara dengan penuras nano.



## ABSTRACT

The development of asymmetric membrane was a breakthrough in the membrane technology makes many researchers studied about membrane. From the result, they recognized that, although many parameters exist which have an influence on the type of membrane structure and performance, the choice of solvent / non-solvent is crucial. Therefore, in this study, two types of solvent were used: N-methyl-2-pyrrolidone (NMP), N, N-Dimethyl-formide (DMF) to prepare two different dope solutions from ternary system (polymer/solvent/non-solvent) where polyethersulfone (PES) as a polymer while water (H<sub>2</sub>O) as a non-solvent. Fabrication of membrane composition was divided into two groups: loose membrane structure (PES 18/75 NMP/7 H<sub>2</sub>O [PES18/N] and PES 18/77 DMF /5 H<sub>2</sub>O [PES 18/D]) and tight membrane structure (PES 25/68 NMP /7 H<sub>2</sub>O [PES 25/N] and PES 25/71 DMF/4 H<sub>2</sub>O [PES 25/D]). These flat sheet membranes were fabricated using semi automatic casting machine and were developed by the dry/wet phase inversion method and phase separation. In order to view the membrane morphology, Scanning Electron Microscopy (SEM) was used. The experimental results based on the membrane performance showed that membrane using DMF as solvent had higher permeability coefficient value between  $3-7 [ \times 10^{-12} ] (m^3/m^2 \cdot \text{saat} \cdot \text{Pa})$  compare to membrane using NMP as solvent which were between  $0.6-6 [ \times 10^{-12} ] (m^3/m^2 \cdot \text{saat} \cdot \text{Pa})$ . However, the percentage of rejections for salt were contradict with the permeability whereby membrane using NMP as solvent had higher rejection for salt (14%-41%) compare to membrane using DMF as solvent (9%-17%). SEM morphology shows that there are many microvoid structures on PES 18/D membrane but this structure become lesser on PES 18/N and PES 25/D membrane. While on PES 25/N membrane structure, there are tight sponge and small finger like morphology. Based on these findings, it was clear that NMP was a better solvent than DMF for polymer PES in preparation of high performance membrane asymmetric nano filtration.