

KESAN KEPEKATAN PELARUT DIMETHYLFORMAMIDE
(DMF) TERHADAP STRUKTUR DAN PRESTASI
PEMISAHAN MEMBRAN

NUR FADHUNA ABDUL GHANI

FAKULTI SAINS DAN TEKNOLOGI
UNIVERSITI SAINS DAN TEKNOLOGI MALAYSIA

2005

LF
34
FST
21
2005

KESAN KEPEKATAN PELARUT DIMETHYLFORMAMIDE (DMF)
TERHADAP STRUKTUR DAN PRESTASI PEMISAHAN MEMBRAN

Oleh

Nur Fadhuha Abdul Ghani

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

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

1100036917



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 KEPEKATAN PELARUT DIMETHYLFORMAMIDE (DMF) TERHADAP
STRUKTUR DAN PRESTASI PEMISAHAN MEMBRAN oleh NUR FAIDHUHA ABDUL
GHANI No. Matrik UK 6929 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

Nama: Dr. Nora'aini bt Ali

Cop Rasmi: DR. NORA'AINI BINTI ALI
Pensyarah
Jabatan Sains Kejuruteraan
Fakulti Sains dan Teknologi
Kolej Universiti Sains dan Teknologi Malaysia
21030 Kuala Terengganu.

Tarikh: 25.4.05

Penyelia Kedua (jika ada)

Nama: En Asmadi bin Ali

Cop Rasmi: ASMADI BIN ALI @ MAHMUD
Pensyarah
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

Alhamdulillah, syukur ke hadrat Allah S.W.T kerana dengan limpah dan izinNya dapatlah saya menyiapkan tesis ini. Setinggi-tinggi penghargaan saya rakamkan buat penyelia saya, Dr. Nora'aini Ali di atas segala bimbingan, tunjuk ajar dan nasihat yang diberikan sepanjang tempoh penyelidikan tesis ini. Tidak lupa juga buat penyelia kedua saya, En. Asmadi Ali.

Sekalung penghargaan saya dedikasikan buat penasihat luar saya, En. Zul di atas segala bimbingan dan nasihat yang diberikan. Buat ayahanda dan bonda tercinta, sejunjung kasih, untaian sayang anakanda bingkiskan. Terima kasih di atas segala semangat dan sokongan serta dorongan yang diberikan. Jutaan terima kasih juga diucapkan buat kakitangan Jabatan Kejuruteraan yang telah banyak membantu. Seterusnya ucapan terima kasih saya titipkan buat semua rakan-rakan PITA seperjuangan yang telah sama-sama bekerjasama dan saling memberikan tunjuk ajar dan idea-idea dalam menyiapkan projek penyelidikan ini. Seterusnya kepada semua pihak yang telah membantu saya sama ada secara langsung atau tidak langsung. Terima kasih saya ucapkan.

Jasa baik kesemua yang terlibat amat saya hargai dan akan saya kenang hingga ke akhir hayat.

JADUAL KANDUNGAN

	Halaman
MUKASURAT JUDUL	i
BORANG PENGESAHAN DAN KELULUSAN TESIS	ii
PENGHARGAAN	iii
JADUAL KANDUNGAN	iv
SENARAI JADUAL	vii
SENARAI RAJAH	viii
SENARAI SINGKATAN	x
SENARAI LAMPIRAN	xii
ABSTRAK	xiii
ABSTRACT	xiv
BAB 1 PENDAHULUAN DAN OBJEKTIF	1
1.1 Pengenalan	1
1.2 Pernyataan Masalah	4
1.3 Objektif	5
1.4 Skop Kajian	5

BAB 2	ULASAN BAHAN RUJUKAN	6
2.1	Sejarah	6
2.2	Prinsip Asas Proses Membran	7
2.3	Penuras Nano	9
2.4	Membran Asimetrik	9
2.5	Larutan Polimer	10
	2.5.1 <i>Polietersulfon</i>	10
	2.5.2 <i>Dimetilformamide (DMF)</i>	11
	2.5.3 <i>Air (H₂O)</i>	13
2.6	Proses Fasa Berbalik	13
2.7	Konfigurasi Membran Penuras	14
2.8	Kepekatan Kekutuban	14
2.9	Model Donnan – Sterik	16
2.10	Pembentukan Lompang Makro	17
2.11	Pengaruh Kepekatan Pelarut pada Struktur dan Sifat-Sifat Membran	18
BAB 3	METODOLOGI	21
3.1	Larutan Polimer	21
3.2	Penyediaan Membran	21
	3.2.1 <i>Pentitratan</i>	22
	3.2.2 <i>Penyediaan Larutan/Larutan Acuan</i>	25
	3.2.3 <i>Pembentukan Membran Lapisan Rata PES</i>	26
3.3	Pengukuran Prestasi Membran	29
	3.3.1 <i>Kebolehtelapan Fluks Air Tulen</i>	29

3.3.2	<i>Penyingkiran NaCl</i>	31
3.4	Pengimbas Elektron Mikroskopik (SEM)	36
BAB 4	KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN	38
4.1	Pencirian Struktur Membran Menggunakan SEM	38
4.2	Pengukuran Fluks Air Tulen	41
4.3	Penyingkiran Ion Klorida daripada Larutan Garam (NaCl)	45
4.4	Pengaruh Mekanisma Pembentukan Membran serta Kesan Kepekatan Pelarut ke atas Kebolehtelapan dan Prestasi Penyingkiran Garam	48
4.5	Pemilihan Peratus Pelarut Optimum	51
BAB 5	KESIMPULAN DAN CADANGAN	56
5.1	Kesimpulan	56
5.2	Cadangan	57
	RUJUKAN	59
	LAMPIRAN	61
	VITAE	73

SENARAI JADUAL

No. Jadual		Halaman
2.1	Struktur DMF serta ciri-ciri fizikalnya	12
3.1	Formulasi membran yang didapati selepas menjalani proses pentitratan	24
3.2	Jadual konduktiviti ionik bagi Na^+ dan Cl^- dan peresapan pada pencairan infiniti	36
4.1	Pengukuran fluks air tulen	44
4.2	Peratus penyingkiran garam NaCl bagi tiga kepekatan pelarut yang berlainan	46
4.3	Ringkasan pemalar kebolehtelapan, fluks dan peratus peyingkiran bagi ketiga-tiga membran bagi julat tekanan operasi 0-20 bar	52

SENARAI RAJAH

No. Rajah	Halaman	
2.1	Gambar proses pemisahan membran	7
2.2	Gambar julat saiz penyingkiran partikel	8
2.3	Struktur PES	11
3.1	Rajah skematik radas yang digunakan untuk tujuan pentitratan	23
3.2	Rajah skematik radas yang digunakan untuk tujuan penyediaan larutan membran	25
3.3	Mesin acuan elektrik semi-automatik	26
3.4	Lapisan membran yang terbentuk apabila direndam di dalam takungan pengentalan	27
3.5	Carta alir proses penyediaan membran asimetrik lapisan rata	28
3.6	Gambar Sel penuras penghujung tertutup model Sterlitech HP4750	29
3.7	Komponen-komponen bagi Sterlitech HP4750	31
3.8	Fenomena kepekatan kekutuban	33
3.9	<i>Auto-fine coater</i> (JFC 1600)	37
3.10	Mikroskop Elektron Pengimbas (SEM)	37
4.1	Keratan rentas SEM membran DMF 76, DMF 72 dan DMF 68	39
4.2a	Graf fluks [$(\times 10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2.\text{s}$] melawan tekanan (MPa), DMF 76	42
4.2b	Graf fluks [$(\times 10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2.\text{s}$] melawan tekanan (MPa), DMF 72	42

No. Rajah		Halaman
4.2c	Graf fluks [(x10 ⁻⁶) m ³ /m ² .s] melawan tekanan (Mpa), DMF	68 42
4.3	Graf penyingkiran (%) NaCl melawan fluks (x 10 ⁻⁶)(m/saat)	47
4.4	Graf kebolehtelapan bagi tiga membran dalam kepekatan pelarut yang berbeza	52
4.5	Graf fluks dan penyingkiran ion klorida melawan % komposisi pelarut	53

SENARAI SIMBOL/SINGKATAN

Singkatan

$\Delta x/A_k$	Nisbah berkesan ketebalan membran terhadap keporosan
C_b	Kepekatan pukal
C_f	Kepekatan larutan suapan
C_p	Kepekatan kekutuban
C_r	Kepekatan hasil tertahan
C_w	Kepekatan dinding
DMAc	N-N-dimetilasetamida
DMF	Dimetilformamide
j_i	Fluks ion
J_v	Fluks
M	Molar
MF	Microfiltration (Penuras mikro)
NF	Nanofiltration (Penuras nano)
NMP	N-metil pirrolidon
Pa	Pascal
PES	Polietersulfon
P_m	Pekali kebolehtelapan
PSf	Polisulfona

Singkatan

RO	Reverse Osmosis (Osmosis balikan)
R_{obs}	Penyingkiran pemerhatian
r_p	Jejari liang berkesan
rpm	Putaran per minit
R_{real}	Penyingkiran sebenar
SEM	Scanning Electron Microscopic (Pengimbas elektron mikroskopik)
UF	Ultrafiltration (Penuras ultra)
X_d	Ketumpatan cas berkesan

SENARAI LAMPIRAN

Lampiran	Halaman
A Pengiraan bagi pentitratan	61
B Penyediaan larutan garam(NaCl) 0.01M	64
C Keluk kalibrasi beserta ringkasan kepekatan dan isipadu larutan NaCl yang disediakan.	65
D Pergerakan Ion, Pembauran Dan Jejari Bahan Terlarut	67
E Data ukuran nilai fluks air tulen	68
F Data ujian penyingkiran garam NaCl	70

ABSTRAK

Penghasilan membran penuras nano (NF) asimetrik merupakan satu pencapaian yang semakin meluas dalam teknologi membran. Ini berikutan dengan kepelbagaian aplikasinya terutama dalam sektor industri. Dalam usaha untuk mempertingkatkan prestasi pemisahan membran, parameter-parameter dominan seperti kepekatan polimer, kepekatan pelarut, masa tahanan daya tolakan dan kadar ricihan pengacuan larutan membran amat perlu diberi perhatian. Parameter-parameter ini mampu memberikan implikasi yang besar pada sifat-sifat pemisahan membran NF. Maka kajian ini memfokuskan mengenai kesan kepekatan pelarut terhadap struktur membran dan prestasi pemisahannya. Tiga membran yang difabrikasi iaitu DMF 76, DMF 72 dan DMF 68 mempunyai kepekatan pelarut dimetilformamide (DMF) masing-masing pada 75.8wt.%, 72wt.% dan 68.62wt.%. Kaedah fasa pembalikan basah/kering diaplikasikan untuk menyediakan membran NF asimetrik polietersulfon. Struktur pada membran diperolehi melalui ujian Mikroskop Pengimbas Elektron (SEM) dan prestasi pemisahan membran diukur dengan menggunakan alat sel penghujung tertutup. Dengan berubahnya komposisi dan jenis larutan membran, perbezaan dari segi fizikal dan ciri struktur dapat dikesan dan dilihat. Berdasarkan kepada keputusan analisis yang diperolehi, seiring dengan penurunan kepekatan pelarut, semakin sedikit bilangan struktur air mata yang terbentuk dan elemen struktur span yang terbentuk semakin banyak. Kepekatan pelarut merupakan parameter utama yang amat penting dalam pembentukan morfologi dan prestasi membran. Pada setiap kepekatan yang berbeza, pemendakan memainkan peranan yang genting dan memberikan pengaruh pada struktur dan seterusnya prestasi membran. Keputusan yang diperolehi menunjukkan dengan kepekatan pelarut yang tinggi, fluks yang didapati adalah tinggi dan turut memberikan nilai kebolehtelapan yang tinggi. Manakala peratus penyingkiran menjadi semakin rendah. Ini dapat dilihat dengan jujukan P_m DMF 76 > P_m DMF 72 > P_m DMF 68 : (60.91, 6.46 dan 4.13) $m^3/m^2 \cdot s \cdot MPa$. Manakala penyingkiran pula menunjukkan ia berkadar songsang dengan fluks iaitu dalam jujukan $\% R_{76} < \% R_{72} < \% R_{68}$: (11.4, 18.9 dan 20.7)%.

ABSTRACT

Development of nanofiltration (NF) asymmetric membranes is a major breakthrough in membrane technology. The various application of membrane in industrial sector nowadays caused the development of membrane technology in worldwide. In order to increase the performance of separation membrane, the dominant parameters such as polymer concentration, solvent concentration, forced-convective evaporation time and shear rate of the dope solution casting should be focused. These parameters could give the major impact on the characteristics of NF membrane separation. Thus, this study was focused on the effect of solvent concentration on membrane structure and performances. Three fabricated membrane such as DMF 76, DMF 72 and DMF 68 have each dimethylformamide (DMF) solvent concentration at 75.8wt.%, 72wt.% and 68.62wt.%, respectively. The preparation of polyethersulfone asymmetric NF membrane was conducted using dry/wet phase inversion process. Structural properties of NF membranes were investigated by Scanning Electron Microscopy (SEM) and their separation performance were measured using dead-end cell permeation test. By changing the composition and type of casting solution, different physical surface characteristics were obtained. Based on the obtained analysis results, as the solvent concentration was decreased, the less formation of eye-tears structure could be seen whereas the more sponge-like structure was formed. The results showed solvent concentration is a particularly important parameter. At each individual polymer concentration, the precipitant plays a crucial role, and has a determining influence on membrane structure and on membrane performance. From the results obtained, it showed that as the higher solvent concentration, the flux was increased and gave the higher permeability coefficient value. Meanwhile, the percentage of rejection was decreased. This can be shown in a progression $P_m \text{ DMF } 76 > P_m \text{ DMF } 72 > P_m \text{ DMF } 68$: (60.91, 6.46 and 4.13) $\text{m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{MPa}$. While rejection is inversely proportional to flux production in regression $\% R_{76} < \% R_{72} < \% R_{68}$: (11.4, 18.9 and 20.7)%.