

PENGARUH GELOMBANG ULTRASONIK PADA KARAKTERISTIK MEMBRAN ULTRAFILTRASI

Kaseno¹⁾ dan T. Kokugan²⁾

Abstrak

Untuk mengetahui pengaruh gelombang atau daya ultrasonik (*ultrasonic force, USF*) terhadap karakteristik membran ultrafiltrasi (*UF*) yang terbuat dari keramik (*alumina, Al₂O₃*), maka dilakukan percobaan permeasi pada skala laboratorium untuk 3 jenis larutan yaitu; larutan ovalbumin, larutan dextran, dan larutan polyvinil alcohol (*PVA*). *USF* dipancarkan pada 1/8 bagian dari batang membran keramik pada saat percobaan permeasi dilaksanakan. Hasil percobaan membuktikan bahwa *USF* menghambat pembentukan lapisan gel pada permukaan membran dan polarisasi konsentrasi di dekat permukaan membran. Hal ini disimpulkan dari penurunan rejeksi dan peningkatan fluk membran *UF*, serta meningkatnya koefisien transfer masa (*mass transfer coefficient*) 1,4 kali jika dibandingkan dengan tanpa penggunaan *USF*.

Kata kunci: Gelombang ultrasonik, membran ultrafiltrasi, dan koefisien transfer masa.

Pendahuluan

Salah satu masalah pada pemakaian membran *UF* adalah terjadinya polarisasi konsentrasi di dekat permukaan membran dan terbentuknya lapisan gel pada permukaan membran. Hal ini akan menyebabkan penurunan jumlah permeat (*fluk*) dan peningkatan jumlah rejeksi. Untuk meningkatkan fluk pada proses *UF* biasanya dilakukan dengan menaikkan laju aliran umpan. Cara lain untuk meningkatkan fluk untuk permeasi yang menggunakan membran keramik adalah dengan vibrasi (*getaran*). Yukawa dkk (1993, 1999) melalui analisis kuantitatif, menyimpulkan bahwa penurunan fluk dapat dicegah dengan menggunakan arus listrik pada proses *UF* di dalam larutan koloid. Penggunaan arus listrik dalam larutan akan menyebabkan koloid yang terletak di dekat permukaan membran bergerak menuju ke bagian yang lebih encer (*proses elektroforesis*). Lebih jauh, para peneliti menemukan bahwa koefisien refleksi larutan koloid sangat dipengaruhi oleh bilangan *Reynolds*, kekuatan arus listrik, dan konsentrasi partikel difusi. Kimura dkk (1992), melakukan percobaan untuk mengetahui pengaruh arus listrik terhadap proses *UF*. Efisiensi proses *UF* yang tinggi pada larutan protein, yang memiliki daya hantar listrik yang rendah, dapat dilakukan dengan menggunakan arus listrik. Imasaka dkk (1999), melaporkan bahwa ketika gas dialirkan dari bagian bawah modul membran, maka karakteristik permeasi hasil dari membran

UF dapat meningkat dan pembentukan gel pada permukaan membran berkurang.

Telah diketahui bahwa gelombang atau daya ultrasonik (*USF*) dapat berpengaruh pada proses dispersi, koagulasi, penghilangan gas, pada proses pelarutan dan jalannya reaksi kimia. Berikut adalah laporan dari beberapa peneliti terkait dengan penggunaan *USF* tersebut; Sakibahara dkk (1993), menggunakan *USF* pada larutan elektrolit di dalam wadah berbentuk bulat, kemudian koefisien transfer massa rata-rata pada permukaan wadah diukur dengan menggunakan laju pengukuran proses difusi reaksi elektrode. Dengan menggunakan *USF* 25 kHz pada sampel ekstraksi, Hoshino dkk (1994), membuat peralatan ekstraksi cair-cair dan menguji karakteristik serta efisiensinya. Zanwar dkk (1998), menggunakan *USF* pada *fixed bed reactor*, dan menguji pengaruhnya pada koefisien transfer massa yang terjadi, dan mengemukakan suatu hubungan dengan bilangan Sherwood.

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pengaruh *USF* pada karakteristik proses *UF* yang menggunakan membran terbuat dari keramik (*alumina, Al₂O₃*).

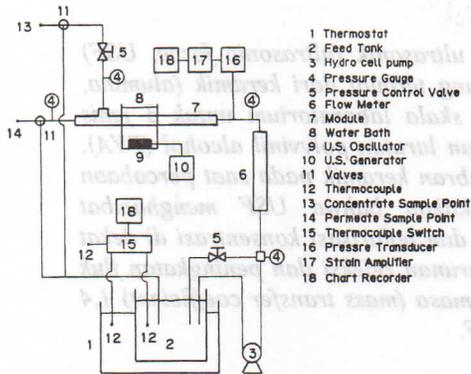
Alat dan Cara Penelitian

Peralatan yang digunakan untuk penelitian ini secara sekematis ditunjukkan pada gambar 1. Membran *UF* yang digunakan adalah sebuah modul tunggal dari alumina (*Al₂O₃*) yang ditempatkan di dalam pipa (*housing*) yang terbuat dari pipa stainless steel (*SS*). Peralatan dioperasikan dengan sistem sirkulasi total.

1) Balai Pengkajian Bioteknologi BPPT

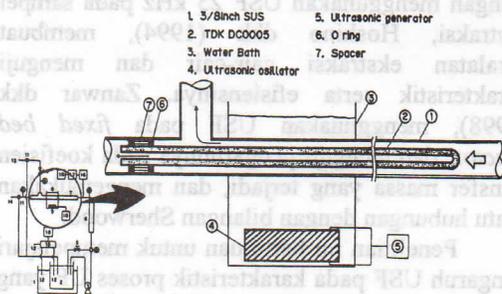
2) Tokyo University of Agriculture and Technology, Jepang

Larutan sampel yang terdapat di dalam *waterbath* pada suhu $30 \pm 1^\circ\text{C}$, kemudian diumpankan ke dalam modul dengan pompa diaphragma. Perbedaan tekanan (*transmembrane pressure*, TMP) diukur dengan *pressure transducer*, dan tekanan ini divariasikan dari 1 kg/cm^2 sampai 7 kg/cm^2 . Laju aliran umpan juga divariasikan dari 0,5 liter/menit, sampai 4,0 liter/menit.



Gambar 1. Skematik Diagram Peralatan Penelitian

Bagian utama dari alat penelitian ini lebih ditail ditunjukkan pada Gambar 2. Membran keramik yang digunakan adalah membran Dynaceram DC 0005 yang dibuat oleh TDK Co. Ltd. Jepang. Membran ini tertutup pada salah satu sisi dan ditempatkan di dalam pipa SS berdiameter 3/8 inci. Diameter pori-pori yang terdapat pada lapisan penunjang (*support layer*) adalah rata-rata $0,5 \mu\text{m}$, dan pada lapisan luar (*skin layer*) membran keramik adalah $0,05 \mu\text{m}$.



Gambar 2. Ditail modul membran UF yang digunakan dalam percobaan

Diameter luar dan diameter dalam membran keramik masing-masing adalah 5 dan 3 mm. Panjang membran adalah 550 mm. Sebuah *waterbath* dengan suhu konstan ($30 \pm 1^\circ\text{C}$) diletakkan pada bagian tengah modul membran. Sebuah *ultrasonic oscillator* dimasukkan ke dalam *waterbath* ini. *Oscillator* ini dapat diatur untuk mengantarkan daya maksimum sebesar 150 W, dan frekuensinya dapat diatur dari 25 kHz hingga 1,2 MHz. Pada penelitian ini juga

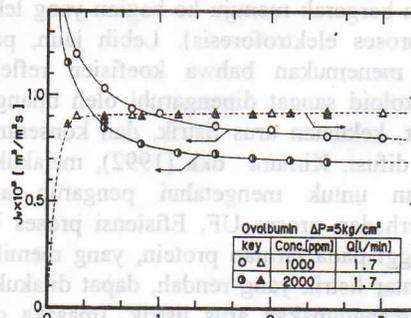
digunakan *vibrator* barium-titan berbentuk cakram. Output dari *vibrator* ini dapat diatur untuk mengantarkan daya dari 70 W hingga 100 W, demikian juga dengan frekuensi dari 200 kHz hingga 400 kHz. USF diradiasikan pada sekitar 1/8 permukaan permeasi membran keramik.

Tiga macam larutan polimer digunakan dalam penelitian ini, yaitu larutan ovalbumin adalah larutan yang mudah sekali membentuk lapisan gel pada permukaan membran keramik, larutan dextran, adalah larutan yang hampir tidak membentuk lapisan gel, dan larutan PVA yang mempunyai karakteristik antara ovalbumin dan dextran. Konsentrasi larutan polimer yang digunakan antara 1000 dan 4000 ppm. Sampel-sampel ini dianalisa dengan *spectroscopic meter*. Panjang gelombang yang digunakan untuk larutan ovalbumin dan dextran adalah 280 nm, sedangkan untuk larutan PVA adalah 190 nm. Karakteristik ketiga larutan ini secara rinci ditunjukkan pada Tabel 1 pada lampiran.

Hasil dan Pembahasan

Fluk dan Rejeksi

Untuk melihat karakteristik awal proses permeasi pada membran UF keramik sebelum penggunaan USF, dibuat kurva standar fluk (J_v) dan rejeksi (R_{obs}) untuk larutan ovalbumin sebagai fungsi waktu, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3. Fluk larutan ovalbumin menurun dengan cepat pada 1 jam pertama permeasi. Kelakuan (tren) dari kurva ini tidak berubah walaupun konsentrasi larutan dirubah. Waktu untuk mencapai keadaan setimbang (*steady state*) sekitar 2 – 3 jam. Sedangkan untuk rejeksi (R_{obs}) larutan ovalbumin hanya memerlukan waktu 20 menit untuk mencapai kondisi setimbang. Selanjutnya, untuk pengamatan pengaruh USF terhadap karakteristik membran UF keramik ini dilakukan pada kondisi kesetimbangan tersebut.



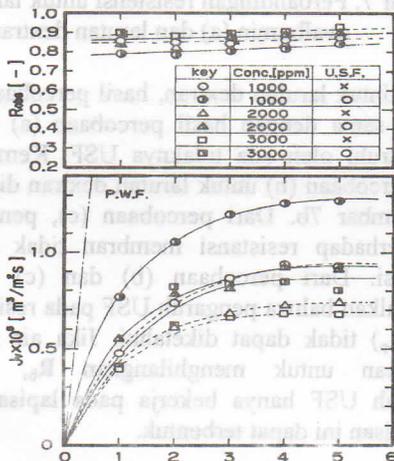
Gambar 3. Perubahan Fluk dan rejeksi terhadap waktu permeasi

Pengaruh USF pada fluk dan Rejeksi.

Pengaruh USF pada karakteristik membran UF yang terbuat dari keramik diamati pada 4 bagian dari membran, yaitu:

- 1) Pada bagian terbentuknya polarisasi konsentrasi, di dekat permukaan membran.
- 2) Pada lapisan gel, di permukaan membran.
- 3) Di dalam pori membran, dan
- 4) Pada bagian batang membran (*membrane body*).

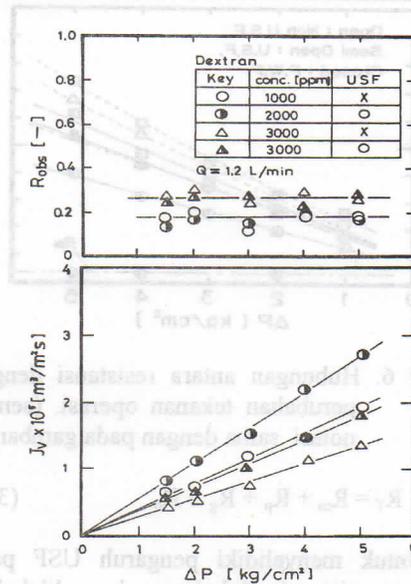
Gambar 4 menunjukkan pengaruh USF terhadap fluk (J_v) dan rejeksi (R_{obs}) air murni dan larutan ovalbumin. Larutan ovalbumin disiapkan untuk 3 konsentrasi yang berbeda, yaitu 1000, 2000 dan 3000 ppm. Untuk mencegah peningkatan temperatur yang diakibatkan oleh radiasi USF, maka suhu *waterbath* diatur konstan pada $30 \pm 1^\circ\text{C}$. Hasil percobaan menunjukkan bahwa USF tidak berpengaruh terhadap fluk air murni (*pure water fluk*, PWF). Sehingga dapat disimpulkan bahwa USF tidak berpengaruh terhadap karakteristik membran UF itu sendiri. Untuk larutan ovalbumin nilai J_v sangat dipengaruhi oleh USF. Pengaruh USF terhadap nilai J_v akan menjadi lebih besar jika konsentrasi larutan ovalbumin semakin rendah. Di sisi lain, nilai R_{obs} akan tinggi dan secara perlahan-lahan menurun dengan adanya USF sebagai satu bagian untuk meningkatkan nilai J_v .



Gambar 4. Hubungan antara fluk, rejeksi dan waktu permeasi untuk larutan ovalbumin.

Untuk larutan dextran, pengaruh tekanan operasi (ΔP) pada fluk (J_v) dan rejeksi (R_{obs}) ditunjukkan pada Gambar 5. Nilai J_v untuk larutan dextran lebih tinggi dibandingkan dengan larutan ovalbumin. Nilai J_v meningkat secara proposional dengan kenaikan ΔP . Selain itu, tidak ada nilai fluk kritis untuk larutan dextran, seperti yang ditunjukkan pada larutan ovalbumin. Fluk meningkat sebesar 30-40 % dengan adanya USF.

Di sisi lain, nilai rejeksi sangat kecil dan secara perlahan-lahan menurun dengan adanya USF sebagai bagian untuk meningkatkan nilai fluk. Sifat permeasi larutan PVA hampir sama dengan larutan dextran.



Gambar 5. Hubungan antara fluk, rejeksi dan waktu permeasi untuk larutan dextran

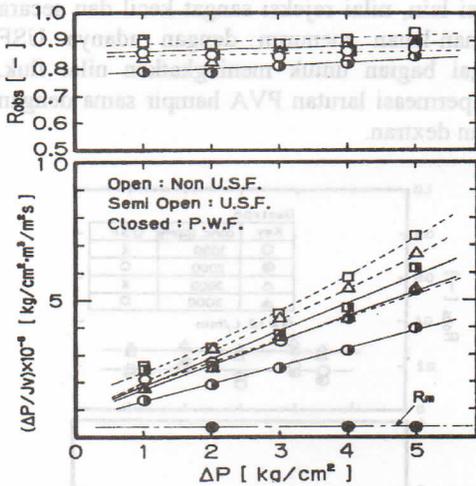
Pengaruh USF Terhadap Resistensi (*resistance*) dari Permeasi

Gambar 6 menunjukkan hasil resistansi dari permeasi larutan ovalbumin dengan dan tanpa adanya USF. Simbul lingkaran hitam penuh (●) mewakili nilai resistansi membran tanpa USF, sedangkan simbul lainnya sama dengan yang digunakan pada gambar gambar 4. Nilai resistansi (R) dapat dijabarkan dengan persamaan berikut :

$$J_v = P/\mu R'_T = \Delta P/R_T \quad (1)$$

$$R_T = \Delta P/J_v \quad (2)$$

Pada saat nilai ΔP mencapai 3 kg/cm^2 , maka nilai resistansi total (R_T) menjadi 10 kali lebih tinggi dibandingkan dengan nilai resistansi awal membran keramik (tanpa USF). Tetapi ketika USF diterapkan pada membran, maka nilai resistansi akan menurun sekitar 20-30 % dari nilai R_T awal. Laju *recovery* permeat menggunakan USF ini tidak berubah meskipun nilai ΔP berubah. Untuk menyelidiki pengaruh USF lebih mendetail, maka dilakukan studi terhadap resistansi pada permeasi lokal ;



Gambar 6. Hubungan antara resistansi dengan perubahan tekanan operasi. (semua notasi sama dengan pada gambar 4)

$$R_T = R_m + R_p + R_g + R_b \quad (3)$$

Untuk menyelidiki pengaruh USF pada tiap-tiap resistansi lokal, maka dilakukan percobaan dengan atau tanpa USF, sebagai berikut :

- a) Setelah permeasi menggunakan larutan ovalbumin, dextran dan PVA selesai, larutan diganti dengan air murni (*pure water flux*, PWF), dan percobaan permeasi diulangi lagi dengan kondisi yang sama.
- b) Setelah percobaan (a) selesai, membran keramik secara dikeluarkan dari dalam *housing*, kemudian dibersihkan dengan busa (*sponge*) untuk menghilangkan lapisan gel yang terdapat di permukaan membran. Setelah dicuci dengan air, membran dikembalikan ke dalam *housing*. Percobaan kemudian diulangi menggunakan air murni.
- c) Sebelum dilakukan percobaan permeasi menggunakan larutan yang telah disebutkan di atas, maka resistansi permeasi membran diukur dengan menggunakan air murni.

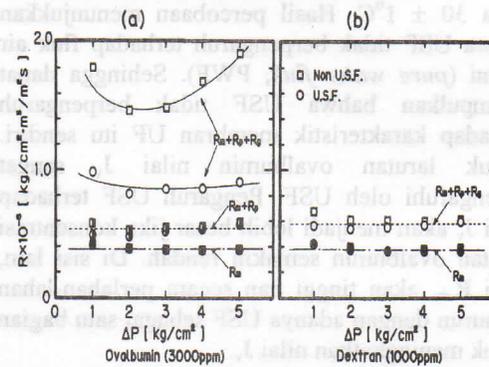
Dari percobaan (a) didapatkan nilai resistansi total tanpa adanya resistansi dari lapisan konsentrasi pekat (*boundary layer*, R_b), seperti yang ditunjukkan pada persamaan 4 :

$$R_1 = R_m + R_p + R_g \quad (4)$$

Dari percobaan (b), nilai resistansi permeasi total tanpa adanya resistansi lapisan gel bisa didapatkan dengan persamaan (5) :

$$R_2 = R_m + R_p \quad (5)$$

Dari percobaan (c) didapatkan resistansi awal dari membran keramik (R_m). Dari seluruh percobaan ini bisa didapatkan R_m , R_p dan R_g secara terpisah. Hasil dari larutan ovalbumin diperlihatkan pada Gambar 7a, sedangkan untuk larutan dextran ditunjukkan pada Gambar 7b. Pada gambar ini simbol (□, ○) merupakan simbol untuk percobaan yang tidak menggunakan USF, sedangkan simbol (◻, ◯) merupakan simbol resistansi permeat pada percobaan yang menggunakan USF. Dari gambar ini dapat diketahui bahwa lapisan gel pada larutan ovalbumin dapat dipisahkan dengan mudah menggunakan gelombang ultrasonik, tetapi metoda ini tidak dapat digunakan untuk larutan dextran, karena larutan ini sangat sulit untuk membentuk lapisan gel (gambar 7b).



Gambar 7. Perbandingan resistansi untuk larutan ovalbumin (a) dan larutan dextran (b)

Untuk larutan dextran, hasil percobaan (b) hampir sama dengan hasil percobaan (a) tanpa dipengaruhi oleh ada tidaknya USF. Kemudian hasil percobaan (b) untuk larutan dextran diambil dari gambar 7b. Dari percobaan (c), pengaruh USF terhadap resistansi membran tidak dapat dideteksi. Dari percobaan (b) dan (c) dapat disimpulkan bahwa pengaruh USF pada resistansi pori (R_p) tidak dapat diketahui. Jika air murni digunakan untuk menghilangkan R_b , maka pengaruh USF hanya bekerja pada lapisan gel jika lapisan ini dapat terbentuk.

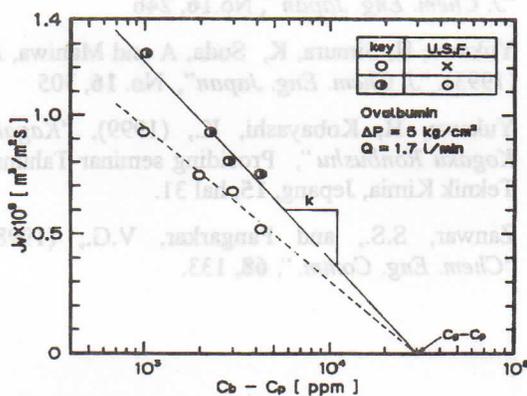
Pengaruh USF terhadap koefisien transfer massa UF

Untuk mempelajari pengaruh USF pada *boundary layer*, maka konsentrasi larutan umpan diubah. Nilai fluk permeat kritis bisa digambarkan melalui model polarisasi untuk pembentukan gel (*gel polarization model*) dengan persamaan (6).

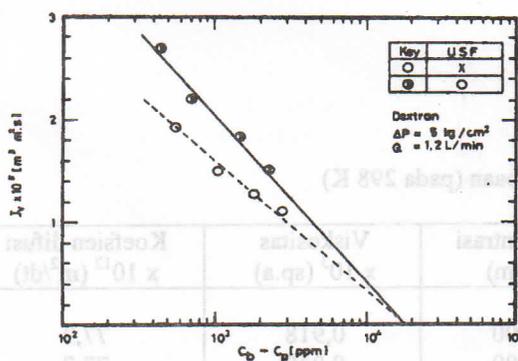
$$J_v = k \cdot \ln(C_g - C_p) / (C_b - C_p) \quad (6)$$

$$\text{Dimana } k = D/\delta \quad (7)$$

Gambar 8. menunjukkan hubungan antara fluk (J_v) dengan konsentrasi larutan umpan (C_b) pada larutan ovalbumin, dengan atau tanpa USF. Gradien fluk permeat dengan adanya USF adalah 1,4 kali lebih besar bila dibandingkan dengan tanpa adanya USF. Bagaimanapun, perbedaan konsentrasi ($C_b - C_p$) untuk 2 kasus ini dapat diplotkan pada poin yang sama dengan $J_v = 0$, dan pada titik ini nilai C_b adalah sama dengan konsentrasi lapisan gel (C_g). Oleh karena itu dapat diketahui bahwa konsentrasi gel tidak berubah, tidak tergantung pada ada atau tidaknya USF. Hubungan antara fluk dengan konsentrasi umpan pada larutan dextran ditunjukkan pada gambar 9. Sama seperti yang terjadi pada larutan ovalbumin, nilai gradien fluk permeat dengan USF lebih besar 1,4 kali dibandingkan tanpa USF. Derajat kemiringan kurva pada larutan dextran lebih besar bila dibandingkan pada larutan ovalbumin. Perbedaan konsentrasi ($C_b - C_p$) untuk 2 kasus ini dapat diekstrapolasikan pada titik dimana nilai $J_v = 0$.



Gambar 8. Hubungan fluk dan konsentrasi umpan untuk larutan ovalbumin.



Gambar 9. Hubungan fluk dan konsentrasi umpan untuk larutandextran.

Dari informasi tersebut bisa diketahui bahwa jika USF digunakan pada membran UF, maka nilai koefisien transfer massa (k) pada membran akan menjadi 1,4 kali lebih tinggi bila

dibandingkan dengan tanpa menggunakan USF, tanpa memperhitungkan terbentuk-tidaknya lapisan gel pada permukaan membran keramik. Untuk mengevaluasi hubungan transfer massa untuk ketiga larutan yang digunakan, maka kelompok bilangan tak berdimensi dianalisa dengan persamaan (8), sebagai berikut :

$$N_{sh} = c (N_{ge})^m (N_{sc})^n (d/l)^q \quad (8)$$

Gambar 10. menunjukkan hubungan ini untuk larutan ovalbumin, dextran dan PVA. Jika permeasi tanpa USF, maka hubungan ini digambarkan dengan persamaan (9) :

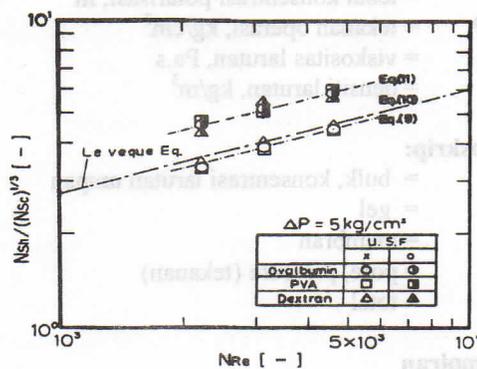
$$N_{sh} = 1,58 \{N_{ge} N_{sc} (d/l)\}^{1/3} \quad (9)$$

Nilai yang didapatkan dari persamaan (9) ini lebih kecil dari nilai yang didapatkan dari persamaan Leveque (10) yang berhubungan dengan laminar flow :

$$N_{sh} = 1,62 \{N_{ge} N_{sc} (d/l)\}^{1/3} \quad (10)$$

Ketika USF digunakan, maka nilai bilangan Sherwood untuk ketiga larutan yang digunakan akan menjadi 1,4 kali lebih tinggi bila dibandingkan dengan tanpa USF, dan korelasinya dijelaskan dengan persamaan (11) berikut :

$$N_{sh} = 2,21 \{N_{ge} N_{sc} (d/l)\}^{1/3} \quad (11)$$



Gambar 10. Hubungan antara bilangan Sherwood, Reynold dan bilangan Schmidt

Tidak diketahui dengan jelas dalam percobaan ini apakah nilai koefisien difusi akan meningkat, dan apakah ketebalan lapisan gel akan menurun dengan penggunaan USF ini. Tetapi telah diketahui bahwa USF dapat meningkatkan koefisien transfer massa.

Kesimpulan

1. Gelombang ultrasonik akan menurunkan resistansi permeasi pada membran UF.

- Tetapi tidak dapat menghilangkan *fouling* yang terjadi pada pori-pori membran.
- Koefisien transfer massa untuk ketiga larutan yang digunakan dapat dikorelasikan menggunakan persamaan Leveque, baik dengan ataupun tanpa USF. Ketika gelombang USF diterapkan, nilai koefisien transfer massa ini meningkat menjadi 1,4 kali lebih tinggi, dan kejadian ini tidak tergantung apakah larutan tersebut mudah membentuk lapisan gel atau tidak.
 - Gelombang ultrasonik mempunyai tendensi untuk meningkatkan fluk dan menurunkan rejeksi pada proses UF baik terbentuk lapisan gel ataupun tidak.

Keterangan Simbul:

- C = konsentrasi, kg/m³
- D = koefisien difusi, m²/s
- d = diameter ekivalen, m
- Jv = fluk volume, m³/m².s
- k = koefisien transfer masa, m/s
- L = panjang membran, m
- N_{Re} = bilangan Reynold
- N_{Sc} = bilangan Schmidt
- N_{Sh} = bilangan Sherwood
- Q = laju alir, m³/s
- R_{obs} = rejeksi hasil pengamatan
- R = resistensi, kg/cm².s/m
- v = laju alir linier, m/s
- δ = tebal konsentrasi polarisasi, m
- P = tekanan operasi, kg/cm²
- μ = viskositas larutan, Pa.s
- ρ = densiti larutan, kg/m³

Subskrip:

- b = bulk, konsentrasi larutan umpan
- g = gel
- m = membran
- p = pore, pressure (tekanan)
- T = total

Lampiran

Tabel 1. Karakteristik larutan yang digunakan untuk percobaan (pada 298 K)

	Berat molekul (-)	Konsentrasi (ppm)	Viskositas x 10 ³ (sp.a)	Koefisien difusi x 10 ¹² (m ² /dt)
Ovalbumin	46.000	1000	0,918	77,9
		2000	0,930	77,7
PVA-500	24.000	3000	0,942	77,5
Dextran 100-200	100.000-200.000	1000	2,40	40,7
		1000	8,94	98,6

Daftar Pustaka

Fujiwara, S., Takagi, T., and Kokugan, T., (1999), "Kagaku Kogaku Sympo. series", **21**, 55.

Hoshino, T, Utiyama, M, and Yukawa, H, (1994), "Kagaku Kogaku Ronbushu" , No. **10**, 351.

Imasaka, T, Kanekuni, N, Yajima, N, and Yoshino, T, (1999), "Kagaku Kogaku Ronbushu" , **15**, 306.

Kimura, S, Nomura, T, (1992), "Membrane" , No. **1**, 245.

Nabetani, H and Nakajima, M. Watanabe, K, Nakao, S, and Kimura, S, (2000) ; "AIChE Journal", No. **36**, 907.

Sakakibakara, M, Tatuda, H. and Endo, K. , (1993), "Kagaku Kogaku Ronbushu", Prosiding seminar Teknik Kimia tahunan Jepang, No. **9**, hal. 336.

Yukawa, H, Simura, K, and Maniwa, A., (1993), "J. Chem. Eng. Japan", No. **16**, 246

Yukawa, H, Simura, K, Suda, A and Maniwa, A, (1993). "J. Chem. Eng. Japan", No. **16**, 305

Yukawa, H, Kobayashi, K., (1999), "Kagaku Kogaku Ronbushu", Prosiding seminar Tahunan Teknik Kimia, Jepang, **15**, hal 31.

Zanwar, S.S., and Pangarkar, V.G., (1998), "Chem. Eng. Comm.", **68**, 133.