

Pemisahan Pb(II) Menggunakan *Supported Liquid Membrane* (SLM) dengan Variasi Jumlah Senyawa Pembawa dan Konsentrasi Larutan Umpan

Utilization of Supported Liquid Membrane (SLM) in Separation of Pb(II) by Varying Concentration of Carrier and Feed Solution

Dwi Indarti^{*}, Novitasari, Yudi Aris Sulisty

Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Jember (UNEJ)

^{*}E-mail: indartidwi.fmipa@unej.ac.id

ABSTRACT

Supported liquid membrane (SLM) was prepared by reacting host material with carrier compounds. Carrier compound was Polyethylene Glycol-400 (PEG-400) that have been used with the variation of concentration 0, 2, 4, and 6%. The effect of its variations in SLM was characterized by FTIR and the performance was examined by transporting feed solution Pb(NO₃)₂ with variation 1, 5, 10, 15, and 25 ppm for 3 hours in pH 3. FTIR spectra depicted that the increasing concentration of PEG would arise the intensity of typical PEG's functional groups such as -OH, C-O-C, and CH₂-CH₂ sp³. The optimum transport Pb(II) was achieved by SLM with 6% PEG. Variation of feed solution concentration showed the main effect in SLM activity. The higher of feed solution concentration would decrease of transport activity. The % extract and % recovery 1 ppm was higher than 25 ppm with 72,5% and 70,27% than 6,1% and 3,59%, respectively.

Keywords: supported liquid membrane, Pb(II), poly ethylene glycol, extraction and recovery, carrier compound

PENDAHULUAN

Pb pada awalnya adalah logam berat yang secara alami terdapat di dalam kerak bumi, namun Pb juga bisa berasal dari kegiatan manusia bahkan mampu mencapai 300 kali lebih banyak dibandingkan Pb alami (Widowati *et al.*, 2008). Sumber utama adanya Pb di air berasal pembuangan limbah. Salah satu industri yang kandungan limbah cairnya terdapat Pb adalah industri aki penyimpanan di mobil (Palar, 2008). *Public Health Service* Amerika Serikat menetapkan bahwa sumber-sumber air untuk masyarakat tidak boleh mengandung Pb lebih dari 0,05 mg/L, sedangkan WHO menetapkan batas Pb di dalam air sebesar 0,1 mg/L serta Baku mutu timbal di perairan berdasarkan PP Nomor 20 tahun 1990 adalah 0,1 mg/L.

Berbagai metode telah dilakukan untuk memisahkan logam Pb. Salah satu metode yang sering digunakan yaitu pemisahan dengan membran. Pemisahan dengan membran yang sedang dikembangkan yaitu *Supported Liquid Membrane* (SLM). SLM merupakan pemisahan menggunakan membran yang diisi dengan carrier atau zat pembawa yang digunakan untuk meningkatkan permeabilitas membran, maka membran dinilai memiliki selektivitas yang cukup tinggi terhadap komponen yang diinginkan (Maming *et al.*, 2008).

Nghiem (2006) melaporkan bahwa PEG (*Polyethylen Glycol*) merupakan senyawa pembawa yang selektif memisahkan logam Pb. Membran Selulosa asetat (CA) digunakan sebagai *supported membrane*, yang setiap porinya akan diisi dengan senyawa pembawa PEG 400 Da yang selektif dengan logam Pb(II). CA sebagai material membran adalah mudah diproduksi, bahan dasarnya dapat diperbarui (*renewable*) dan dapat bertahan dalam pH 2-8, tetapi membran CA sangat rentan terhadap mikroba yang ada di alam (Wenten, 2000). CA dengan tambahan PEG sebagai membran sudah banyak digunakan, tetapi berfungsi sebagai membran filtrasi. Penelitian menggunakan PEG sebagai senyawa pembawa masih belum terpublikasikan, untuk itu perlu adanya karakterisasi untuk memastikan adanya gugus kimia PEG dalam membran. Karakterisasi pada penelitian ini dilakukan dengan FTIR (*Fourier Transform Infrared*).

Kinerja dari SLM dipengaruhi oleh konsentrasi senyawa pembawa, pH umpan dan penerima, konsentrasi umpan dan tipe membran pendukung (Drapala & Wieczorek, 2002). Bachluri (2015) berhasil melaporkan konsentrasi senyawa pembawa (PEG) (0; 1,0; 2,0; 3,0; 4,0; 5,0; dan 6,0% w/w) mempengaruhi optimasi transpor pada membran untuk memisahkan logam Pb (5

ppm). Kondisi optimum ditunjukkan dengan senyawa pembawa sebanyak 4,0%. Haris (2003) mengatakan bahwa konsentrasi larutan umpan (5, 10, dan 15 ppm) akan mempengaruhi transport pada membran. Semakin kecil konsentrasi logam berat di umpan akan menyebabkan *transport* pada membran semakin besar dan sebaliknya. Haris (2003) juga mengatakan bahwa berbagai pH umpan (2, 3, dan 4) akan mempengaruhi transport pemisahan. Transport Pb mencapai optimal pada pH 3 di umpan. Variasi yang akan dilakukan adalah jumlah senyawa pembawa dan variasi konsentrasi umpan. Penelitian ini diharapkan dapat mengetahui persen (%) ekstrak dan *recovery* dalam proses pemisahan ion Pb dengan membran cair berpendukung (SLM) dan adanya senyawa pembawa (PEG 400) pada membran akan diuji gugus fungsi dengan FTIR.

METODE

Bahan dan Alat

Bahan penelitian ini berupa selulosa asetat (Aldrich; BM 30.000), aseton (Merck; $\rho = 0,79$ g/mL), akudes demineralisasi, akudes, larutan standar Pb 1000 ppm, PEG (*Polyethylene Glycol*) 400 (Merck; $\rho = 1,126$ g/mL), serbuk $Pb(NO_3)_2$ (Merck), $NaCH_3COO$ (Merck), CH_3COOH 96% (glasial; Merck; $\rho = 1,05$ g/mL), HNO_3 65% pa (Merck; $\rho = 1,49$ g/mL),

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah cetakan membran datar, serta beberapa peralatan gelas (gelas beaker, gelas ukur, pipet tetes, pipet volume, Erlenmeyer, pengaduk, corong gelas, dan labu ukur), *stop watch*, mikrometer, anak stirer, neraca analitik (Ohaus Analytical Plus), pengaduk magnetik dan pemanas listrik (Lab. Companion HP-3000), pH meter (Jenway 3505), FTIR, spektrofotometer Serapan Atom (Buck Scientific 205).

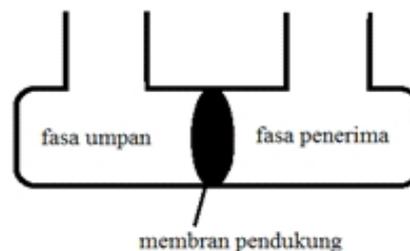
Pembuatan membran SLM

Pembuatan membran SLM dari selulosa asetat ini menggunakan metode inversi. Selulosa asetat dan aseton dihomogenkan dengan perbandingan 1:3 \pm selama 4 jam. PEG 400 kemudian ditambahkan sebanyak 0,2 mL (2%) dan diaduk dengan pengaduk magnetik sampai larutan homogen \pm selama 3 jam. Larutan polimer yang telah homogen kemudian didiamkan sampai tidak mengandung gelembung udara \pm 1 jam. Larutan polimer yang tidak mengandung gelembung udara dicetak pada cetakan yang telah diatur ketebalannya, kemudian dibiarkan pada suhu kamar selama 1 jam (penguapan pelarut). Membran yang dipilih mempunyai ketebalan yang seragam yaitu dengan mengukur menggunakan mikrometer pada beberapa titik kemudian hasilnya dirata-rata. Pembuatan membran yang sama dilakukan kembali dengan variasi komposisi PEG

400 sebanyak 0,4 mL (4%) dan 0,6 mL (6%).

Uji Kinerja Membran SLM

Membran SLM dimasukkan pada set alat SLM sesuai ukuran (Gambar 1). Larutan penerima 0,01 M juga dimasukkan pada sisi alat SLM dan larutan umpan Pb(II) dengan variasi konsentrasi 1,0; 2,0; 5,0; 10,0; dan 25,0 ppm masing-masing dimasukkan dalam sisi alat SLM sesuai Gambar 1. Proses transport dilakukan selama 3 jam (Bakti, 2005).



Gambar 1. Desain Alat Membran Berpendukung (SLM)

Larutan di umpan dan fasa penerima setelah 3 jam diambil 1,0 mL lalu diencerkan dalam labu ukur 10 mL. Konsentrasi logam Pb(II) ini dapat ditentukan dari kurva kalibrasi yang diperoleh. larutan umpan dan penerima mula-mula juga dilakukan pengukuran konsentrasi dengan AAS. Pengenceran dilakukan sampai absorbansi sampel terdapat pada kurva kalibrasi. Data konsentrasi tersebut digunakan untuk menghitung persen transport berupa % ekstrak dan % *recovery*. Persen (%) ekstrak dan *recovery* dihitung dengan persamaan sebagai persamaan 1 dan 2 :

$$\% \text{ Ekstrak} = \left(\frac{C_{f_{in}} - C_f}{C_{f_{in}}} \right) \times 100\% \dots \dots \dots (1)$$

$$\% \text{ Recovery} = \left(\frac{C_s - C_{s_{in}}}{C_{f_{in}}} \right) \times 100\% \dots \dots \dots (2)$$

Keterangan :

$C_{f_{in}}$: Konsentrasi mula-mula pada fasa umpan (ppm)

C_f : Konsentrasi akhir pada fasa umpan (ppm)

$C_{s_{in}}$: Konsentrasi mula-mula pada fasa penerima (ppm)

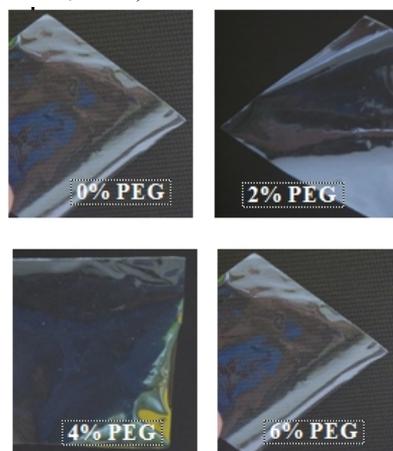
C_s : Konsentrasi akhir pada fasa penerima (ppm) (Bhatluri, 2015).

HASIL DAN PEMBAHASAN

Membran cair berpendukung dibuat dengan menggunakan bahan selulosa asetat dan teknik inversi fasa (penguapan pelarut atau *dry casting*). Teknik inversi fasa merupakan metode pembentukan polimer dari fasa cair menjadi fasa padat dengan adanya kondisi yang terkendali. Kondisi terkendali dalam penelitian

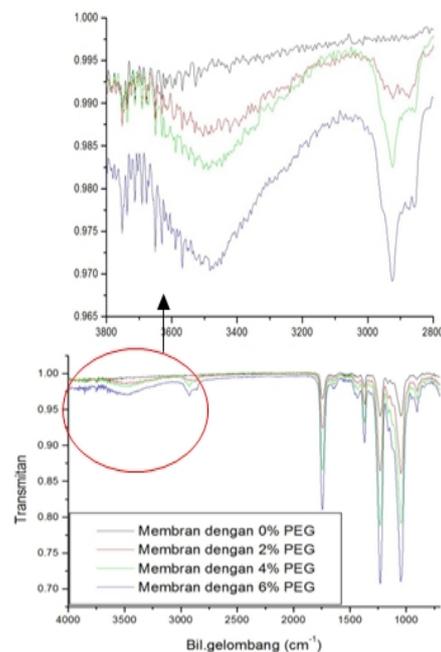
ini adalah penguapan pelarut atau *dry casting* dalam suhu kamar. Penguapan pelarut ini mempengaruhi proses pembentukan struktur membran yang dihasilkan, yaitu semakin rapat. Metode penguapan pelarut akan memperkecil pori membran yang dihasilkan dan diharapkan senyawa pembawa tidak lepas dari matriks. Komposisi dalam pembuatan membran sebesar 25% CA dan aseton 75% (Muliawati, 2012). Komposisi ini dipilih berdasarkan pada penelitian Said (2000) dan Muliawati (2012).

Aseton merupakan senyawa polar. Struktur aseton mengandung gugus C=O yang memiliki selisih keelektronegatifan yang cukup besar (yaitu 1). Kepolaran aseton terjadi karena adanya gugus penarik elektron (atom O) yang menyebabkan pengkutuban elektron menjadi parsial negatif dan parsial positif pada karbon karbonil (Timberlake & Wiliam, 2008). Hal tersebut menandakan bahwa aseton bersifat polar. Secara keseluruhan polimer selulosa asetat bersifat non polar, tetapi struktur polimer CA memiliki sisi polar (yaitu gugus C=O). Aseton dapat berinteraksi dengan CA, yaitu interaksi dipol-dipol (Wenten, 2000). Hal ini sesuai dengan prinsip *like dissolve like*. Hal tersebut didukung dengan nilai kelarutan dari CA dan aseton. Selulosa asetat memiliki nilai parameter kelarutan sebesar $19,96 \text{ MPa}^{1/2}$, sedangkan nilai parameter kelarutan aseton adalah $20,3 \text{ MPa}^{1/2}$. Semakin kecil selisih nilai parameter kelarutan polimer terhadap pelarut akan semakin mudah proses pelarutannya. Keduanya memiliki selisih nilai kelarutan yang relatif dekat yakni selisih $0,34 \text{ MPa}^{1/2}$. Hal ini menunjukkan bahwa aseton merupakan pelarut yang dapat melarutkan selulosa asetat dengan baik (Wenten, 2000).



Gambar 2. Bentuk fisik variasi membran SLM

Membran berpendukung dengan variasi senyawa pembawa, secara fisik tidak nampak perbedaannya (Gambar 2). Penambahan senyawa pembawa dimaksudkan agar terdapat gugus yang aktif untuk mentransfer ion logam dari larutan umpan (*feed*) untuk melewati membran. Keberadaan senyawa pembawa yaitu polietilen glikol (PEG) dalam membran berpendukung bisa dilihat dari spektra FTIR. Spektra FTIR membran dengan variasi senyawa pembawa dapat dilihat pada Gambar 3.

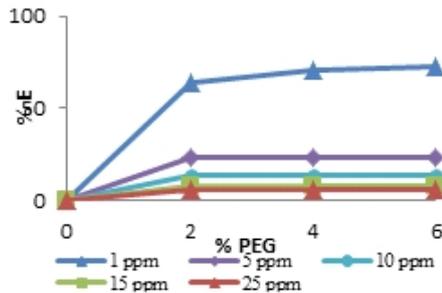


Gambar 3. Spektra FTIR variasi membran SLM

Polimer CA terdiri dari puncak-puncak yang khas dari gugus fungsi pada CA yaitu serapan puncak pada panjang gelombang 1744 cm^{-1} mewakili gugus C=O stretching, 1233 cm^{-1} mewakili ikatan C-C stretching dan 1044 cm^{-1} mewakili gugus C-O eter. PEG 400 terdiri dari puncak-puncak yang khas dari gugus fungsi pada PEG 400 yaitu serapan puncak pada panjang gelombang 3434 cm^{-1} mewakili gugus O-H stretching, 2671 cm^{-1} mewakili ikatan H-C-H stretching dan 1100 cm^{-1} mewakili gugus C-O eter. Semakin luas puncak serapan pada bilangan gelombang 3434 cm^{-1} mewakili gugus OH dan 2700 cm^{-1} H-C-H menunjukkan adanya penambahan konsentrasi PEG. Membran yang memiliki lebih banyak gugus yang mewakili PEG yaitu dengan urutan $6\% \text{ PEG} > 4\% \text{ PEG} > 2\% \text{ PEG} > 0\% \text{ PEG}$.

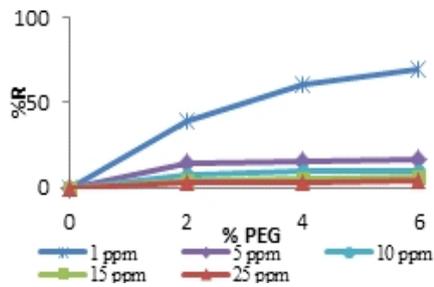
Pengaruh Jumlah PEG terhadap Kinerja Membran

Persentase ekstrak merupakan banyaknya ion logam yang meninggalkan umpan dibanding konsentrasi awal. Persen *recovery* merupakan banyaknya konsentrasi ion logam yang ada dalam penerima dibanding konsentrasi awal (Bhatluri, 2015).



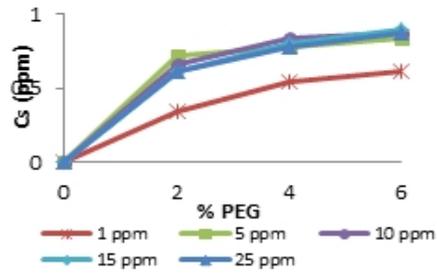
Gambar 4. Pengaruh % PEG dalam kinerja membran (persen ekstrak)

Gambar 4 menunjukkan bahwa semakin banyak %PEG, maka persentase ekstrak pada konsentrasi umpan Pb^{2+} 5, 10, 15, dan 25 ppm bernilai konstan. Hal ini dikarenakan % PEG yang semakin banyak akan mengakibatkan sisa ion logam yang telah diterima oleh membran akan tertahan.



Gambar 5. Pengaruh % PEG dalam kinerja membran (%R)

Gambar 5 menunjukkan nilai % R (*recovery*) semakin meningkat sebanding dengan meningkatnya % PEG yang ditambahkan pada membran cair berpendukung. Hal tersebut dapat diartikan bahwa ion Pb^{2+} pada penerima semakin banyak. Semakin banyak % PEG yang ditambahkan dalam SLM, maka ion Pb^{2+} akan banyak yang berinteraksi dengan gugus aktif PEG dalam membran dan semakin banyak pula yang akan diterima oleh penerima.

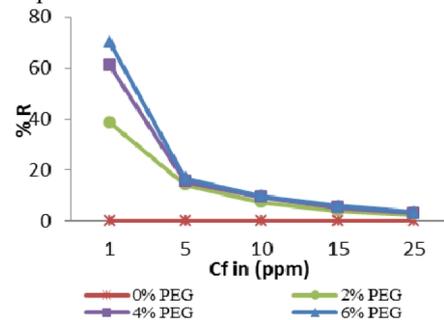


Gambar 6 Pengaruh PEG terhadap konsentrasi ion Pb^{2+} di penerima

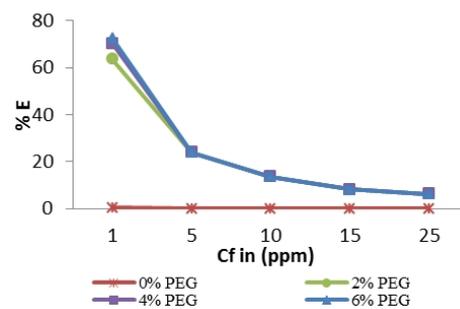
Gambar 6 menunjukkan bahwa semakin banyak % PEG yang ditambahkan, maka semakin banyak ion Pb^{2+} yang akan ditranspor oleh senyawa pembawa menuju ke penerima.

Pengaruh Konsentrasi Larutan Pb terhadap Kinerja dalam Membran Cair Berpendukung (SLM)

Salah satu faktor yang mempengaruhi kerja dari membran SLM adalah konsentrasi larutan umpan.



(a)

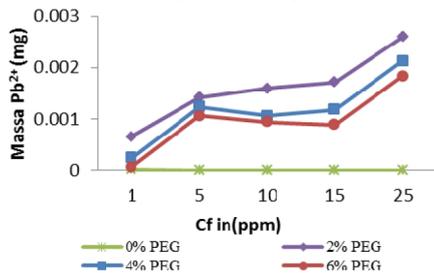


(b)

Gambar 7. Pengaruh variasi konsentrasi dalam kinerja membran (a) %*Recovery* (%R);(b) % Ekstrak (%E)

Gambar (7 a) dan (7 b) memperlihatkan bahwa semakin besar konsentrasi umpan yang digunakan, maka % R dan % E yang dihasilkan akan semakin menurun. Hal ini dikarenakan

oleh kapasitas membran yang terbatas. Bila konsentrasi bertambah besar, maka interaksi ion logam dengan senyawa pembawa akan semakin berkurang (Bakti, 2005). Semakin besar konsentrasi umpan maka massa ion Pb^{2+} yang ditampung membran semakin banyak. Hasil tersebut dapat dilihat pada Gambar 8.



Gambar 8. Pengaruh konsentrasi umpan terhadap massa ion Pb^{2+} pada membran

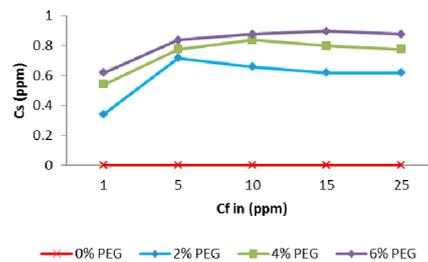
Hal ini menandakan bahwa massa ion Pb^{2+} semakin meningkat seiring dengan meningkatnya konsentrasi umpan yang digunakan pada %PEG yang sama. Ion logam dapat berinteraksi dengan senyawa pembawa sesuai dengan banyaknya % senyawa pembawa dan konsentrasi ion logam. Jika konsentrasi ion logam yang tersedia lebih besar daripada % senyawa pembawa, maka akan terjadi difusi berulang (kontinyu) (Maming, 2008). Konsentrasi ion logam semakin besar dengan volume umpan yang sama yaitu 3 mL, maka akan sering terjadinya interaksi dengan senyawa pembawa. Senyawa pembawa akan lebih banyak berinteraksi dengan ion logam. Oleh karena itu, konsentrasi ion logam semakin besar akan semakin banyak ion yang berada pada membran.

Gambar 8 menunjukkan bahwa membran yang memiliki % PEG semakin banyak, maka semakin kecil massa ion Pb^{2+} yang tertampung dalam membran. Hal ini dikarenakan semakin banyak PEG yang ditambahkan akan lebih banyak membawa ion Pb ke penerima, sehingga transport selama 3 jam akan menghasilkan massa ion Pb^{2+} dalam membran 6% PEG lebih sedikit dari pada massa ion Pb^{2+} dalam membran yang memiliki 2% PEG. Membran 0% PEG memiliki massa ion Pb^{2+} yang nol atau dapat dikatakan tidak ada. Hal ini dikarenakan membran 0% PEG tidak memiliki gugus yang aktif (PEG) untuk menarik ion logam dalam membran. Polimer CA sendiri memiliki gugus-gugus aktif yang dapat berinteraksi dengan ion logam. gugus tersebut diperkirakan tidak berada pada permukaan, sehingga tidak dapat berinteraksi dengan ion

logam.

Membran 2% PEG pada Gambar 8 memiliki massa paling banyak dibanding membran dengan 4% dan 6% PEG. Hal ini dimungkinkan senyawa pembawa pada membran 2% PEG tidak menyebar merata, sehingga ion Pb^{2+} menumpuk dalam satu layer dalam membran yang mengakibatkan ion logam tidak dapat ditarik oleh penerima (Anupama, 2005).

Gambar 8 juga dapat dilihat bahwa massa ion Pb^{2+} dalam membran terbanyak pada konsentrasi umpan mula-mula ($C_{f_{in}}$) 25 ppm. Hal ini dikarenakan kapasitas membran yang terbatas untuk menarik ion logam. Ion logam pada umpan yang semakin banyak mengakibatkan permukaan membran penuh dengan ion logam (Haris, 2003). Senyawa pembawa dalam membran akan sulit untuk bergerak menuju ke penerima. Selain itu, penerima juga memiliki batas dalam menarik ion logam.



Gambar 9. Konsentrasi ion Pb^{2+} di penerima setelah transport selama 3 jam

Gambar 9 menunjukkan bahwa pada konsentrasi umpan 5 ppm mengalami peningkatan tajam dari konsentrasi umpan 1 ppm. Konsentrasi umpan 5 ppm, membran dengan 2, 4, dan 6% mampu meningkatkan ion logam yang telah diterima oleh penerima. Hal tersebut dikarenakan daya transport membran dan penerima mampu menampung ion logam dengan sesuai kapasitasnya. Konsentrasi umpan ($C_{f_{in}}$) 10 ppm sampai 25 ppm pada membran 4% dan 6% PEG hampir tidak ada perubahan konsentrasi ion Pb^{2+} di penerima (C_s).

Gambar 9 juga dapat diartikan bahwa setiap penambahan PEG yang semakin banyak, maka penerima juga akan semakin banyak menerima ion Pb^{2+} . Penambahan PEG yang semakin banyak, mengakibatkan selama proses transport gugus aktif PEG semakin banyak yang berinteraksi dengan ion logam. Interaksi tersebut terjadi pada membran, yaitu kompleks ion logam-senyawa pembawa akan berdifusi

menuju ke penerima. Senyawa pembawa-ion logam di penerima akan mengalami perpecahan karena gaya dorong yang disebabkan oleh difusi antara umpan dan penerima. Hal tersebut menyebabkan membran yang lebih banyak PEGnya akan dapat mendifusikan ion logam lebih banyak ke penerima.

KESIMPULAN

Kesimpulan dalam penelitian ini adalah penambahan senyawa pembawa (PEG) pada membran CA telah berhasil. Hal tersebut dibuktikan dengan spectrum FTIR, yaitu gugus khas PEG yaitu OH, C-O-C, C-C dan CH₂ yang memiliki luasan serapan yang lebih besar. Jumlah senyawa pembawa semakin banyak, maka kinerja membran mentransport ion logam akan meningkat. Hal tersebut dibuktikan dengan meningkatkan persen *recovery* yang semakin besar seiring dengan semakin banyak senyawa pembawa. Konsentrasi larutan umpan sangat mempengaruhi kinerja membran. Semakin besar konsentrasi umpan yang digunakan, maka % ekstrak dan % *recovery* akan semakin kecil pada semua variasi senyawa pembawa yang digunakan.

DAFTAR PUSTAKA

- Agency for Toxic Substances and Disease Registry. 2007. *Toluene Toxicity (Case Studies in Environmental Medicine)*. Atlanta: U.S. Department of Health and Human Service, Public Health Service.
- Anupama, R. & K Palanivelu. 2005. Removal and Recovery of Lead from Aqueous Solution Using Supported Liquid Membrane. *Indian J. Chem. Technol.* 487 (1): 436-440.
- Bhatluri, Kumar, Manna, Ghoshal & Saha. 2015. Supported Liquid Membrane Based Removal of Lead(II) And Cadmium(II) from Mixed Feed: Conversion to Solid Waste by Precipitation. *Indian Institute of Technology Guwahati.* 459(2): 256-263.
- Drapala & Wiczorek. 2002. Extraction of Short Peptides Using Supported Liquid Membranes, Desalination. *Jurnal of Membran Liquid*, 50(1):120-122.
- Haris, M C. D. A. 2003. *Pemisahan Logam Berat Menggunakan Membran Cair Berpendukung dengan Variabel Konsentrasi Ion Logam dan ph Fasa Penerima*. Skripsi. Semarang: MIPA Universitas Diponegoro.
- Maming, Jumina, Siswanta, Sastrohamidjojo, & Ohto. 2008. Transport Behavior of Cr(III), Cd(II), Pb(II), and Ag(I) Ions Through Bulk Liquid Membrane Containing p-t-butylcalix[4]arene-tetraethylacetamide as Ion Carrier. *Indo, J. Chem.* 8 (3): 300-306.
- Mulianawati. 2012. *Pembuatan Dan Karakteristik Membran Nanofiltrasi Untuk Pengolahan Air*. Thesis. Semarang: Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Diponegoro.
- Nghiem, Patrick, Ian, Jilksa, Robert, & Spas. 2006. Extraction and transport of metal ions and small organic compounds using polymer inclusion membranes (PIMs). *Journal of Membrane Science.* 281 (1-2) 7-4.
- Palar, H. 2008. *Pencemaran dan Toksikologi Logam Berat*. Jakarta: PT. Rineka Cipta.
- Said, A.A.. 2000. *Studi Pembuatan Membran Nanofiltrasi untuk Pemurnian Air*. Thesis. Bandung: Teknik Kimia Institusi Teknologi Bandung.
- Sekretariat Negara Republik Indonesia. 1990. *Peraturan Pemerintah Nomor 20 Tahun 1990 Tentang Baku Mutu Timbal di Perairan*. Jakarta: Sekretariat Negara Republik Indonesia.
- Widowati, Sastiono, & Jusuf. 2008. *Efek Toksik Logam Edisi Pertama*. Yogyakarta: Andi.
- World Health Organization. 2008. *Water Sanitation Health [Serial Online]* [Http://WHO.Ind/Water_Sanitation_Health/Hygiene/Lyr](http://WHO.Ind/Water_Sanitation_Health/Hygiene/Lyr). [12 Agustus 2016].