

**STUDI DENSITY FUNCTIONAL THEORY (DFT) DAN GRAND  
CANONICAL MONTE CARLO (GCMC) TERHADAP PENGARUH  
DOPING ATOM B, N SERTA LOGAM Mg DALAM MENINGKATKAN  
KAPASITAS PENYIMPANAN HIDROGEN PADA MOF-650**

Ahmad Sirrullah  
19/442498/PA/19247

**INTISARI**

Penelitian ini bertujuan untuk melakukan modifikasi MOF-650 dengan doping atom B, N dan substitusi logam pusatnya dengan Mg secara komputasi, serta dilanjutkan mengkaji pengaruh modifikasi yang dilakukan terhadap karakter MOF-650 sebagai material penyimpan hidrogen. Penelitian ini diawali dengan doping atom B dan N pada azulena, penaut organik MOF-650, dan kemudian dikaji momen dipolnya. Variasi azulena terdoping B dan N dengan momen dipol terendah dan tertinggi dipilih. Kemudian, MOF-650 dimodifikasi dengan menggunakan azulena terdoping serta mengganti logam pusatnya dengan Mg. MOF-650 murni dan termodifikasi dilakukan perhitungan optimasi geometri dengan metode DFT tingkat *Generalized Gradient Approximation* (GGA)-PBESol dan *basis set double- $\zeta$  valence*. Analisis transfer muatan serta *Density of States* (DOS) dilakukan terhadap modifikasi yang dilakukan. Selanjutnya, karakter MOF-650 sebagai material penyimpan hidrogen ( $H_2$ ) dikaji dengan metode simulasi GCMC dan DFT dengan parameter uji kapasitas adsorpsi dan energi interaksi  $H_2$ .

Pemodelan MOF-650 termodifikasi berhasil dilakukan dan didapatkan kerangka MOF dengan topologi *primitive cubic* (*pcu*). Terdapat tiga kerangka MOF termodifikasi yang dihasilkan, yakni MOF-650-NB-C7-azulena dengan panjang kisi  $a = b = c = 30,95 \text{ \AA}$ , MOF-650-NB-C7-azulena-Mg dengan panjang kisi  $a = b = c = 31,10 \text{ \AA}$ , serta MOF-650-NB-azulena-Mg dengan panjang kisi  $a = b = c = 31,10 \text{ \AA}$ . Kapasitas penyimpanan  $H_2$  maksimum dari tiga kerangka menghasilkan urutan MOF-650-NB-C7-azulena < MOF-650-NB-azulena-Mg < MOF-650-NB-C7-azulena-Mg. Variasi MOF-650-NB-C7-azulena-Mg mampu memberikan peningkatan kapasitas adsorpsi 24 wt%. Adapun dari hasil kajian energi interaksi  $H_2$ , ESP, serta RDF yang dipadukan hasil analisis momen dipol, transfer muatan, serta kapasitas adsorpsi menghasilkan beberapa kesimpulan pemahaman, yakni kapasitas adsorpsi serta energi interaksi  $H_2$  meningkat dengan adanya doping B-N dan Mg sebagai akibat meningkatnya kepolaran dan transfer muatan;  $H_2$  lebih suka terdistribusi di sekitar kluster logam dari kerangka MOF karena energi interaksinya lebih kuat sekitar 1,66–3,14 kkal/mol; terdapat distribusi muatan positif serta negatif pada situs Unit Bangun Sekunder (UBS) MOF dan cincin lima (C5) azulena yang menyebabkan interaksi elektrostatis lebih kuat; serta distribusi muatan negatif jauh lebih tinggi di situs UBS daripada penaut organiknya.

Kata kunci: DFT, GCMC, material penyimpan hidrogen, MOF-650

***STUDY OF DENSITY FUNCTIONAL THEORY (DFT) AND GRAND CANONICAL MONTE CARLO (GCMC) ON THE EFFECT OF DOPING B, N ATOMS AND Mg METAL IN ENHANCING HYDROGEN STORAGE CAPACITY OF MOF-650***

Ahmad Sirrullah  
19/442498/PA/19247

**ABSTRACT**

This research aims to computationally modify MOF-650 by doping it with B, N atoms and substituting its central metal with Mg, and then investigate the effects of these modifications on the characteristics of MOF-650 as a hydrogen storage material. The study begins by doping B and N atoms into azulene, an organic linker of MOF-650, and analyzing its dipole moments. Different variations of B and N-doped azulene with the lowest and highest dipole moments are selected. Subsequently, MOF-650 is modified using the B and N-doped azulene and by replacing the central metal with Mg. Pure and modified MOF-650 structures undergo geometry optimization calculations using the DFT method with the GGA-PBESol level of theory and a *double- $\zeta$  valence* basis set. Charge transfer analysis and DOS calculations are conducted on the modifications made. Furthermore, the hydrogen storage characteristics of MOF-650 are investigated as a material through GCMC and DFT simulations, employing adsorption capacity and hydrogen interaction energy as the evaluation parameters.

Successful modeling of the modified MOF-650 is achieved, obtaining MOF frameworks with a pcu topology. There are three modified MOF frameworks produced, namely MOF-650-NB-C7-azulene with lattice parameters  $a = b = c = 30.95 \text{ \AA}$ , MOF-650-NB-C7-azulene-Mg with lattice parameters  $a = b = c = 31.10 \text{ \AA}$ , and MOF-650-NB-azulene-Mg with lattice parameters  $a = b = c = 31.10 \text{ \AA}$ . The maximum  $\text{H}_2$  storage capacity among the three frameworks follows the order of  $\text{MOF-650-NB-C7-azulene} < \text{MOF-650-NB-azulene-Mg} < \text{MOF-650-NB-C7-azulene-Mg}$ . The MOF-650-NB-C7-azulene-Mg variation exhibits a 24 wt% increase in adsorption capacity. From the analysis of  $\text{H}_2$  interaction energy, ESP, RDF, dipole moments, charge transfer, and adsorption capacity, several conclusions are drawn: the adsorption capacity and  $\text{H}_2$  interaction energy increase due to B-N and Mg doping, resulting in enhanced polarity and charge transfer; hydrogen preferentially distributes around the metal clusters within the MOF framework due to stronger interaction energies in the range of 1.66–3.14 kcal/mol; there is a distribution of positive and negative charges at the sites of the Secondary Building Units (SBUs) of the MOF and the five-membered ring (C5) of azulene, leading to stronger electrostatic interactions; and the distribution of negative charge is significantly higher at the SBU sites than in the organic linker.

**Keywords:** DFT, GCMC, hydrogen storage material, MOF-650