

**SIMULASI MONTE CARLO UNTUK  
PENENTUAN STRUKTUR SOLVASI ION Ni(II)  
DALAM AMONIA PEKAT  
MENGGUNAKAN POTENSIAL PASANGAN**

MPK 20/05

WIS

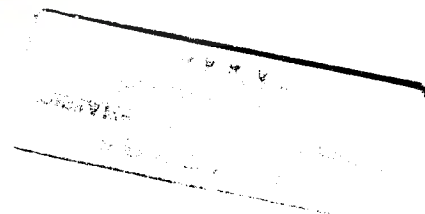
3

**SKRIPSI**

**HENRY WIDHIYANTO**



**JURUSAN KIMIA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
UNIVERSITAS AIRLANGGA  
SURABAYA  
2006**



**SIMULASI *MONTE CARLO* UNTUK  
PENENTUAN STRUKTUR SOLVASI ION Ni(II)  
DALAM AMONIA PEKAT  
MENGUNAKAN POTENSIAL PASANGAN**

**SKRIPSI**

**Sebagai Salah Satu Syarat untuk Memperoleh  
Gelar Sarjana Bidang Kimia pada  
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Universitas Airlangga**

**Oleh :**

**HENRY WIDHIYANTO**  
**NIM. 080112286**

**Tanggal Lulus : 15 Pebruari 2006**

**Disetujui Oleh :**

**Pembimbing I**



**Drs. Faidur Rochman, MS.**  
**NIP. 131406061**

**Pembimbing II**



**Drs. Imam Siswanto, M.Si**  
**NIP. 132049473**

## LEMBAR PENGESAHAN NASKAH SKRIPSI

**Judul** : **Simulasi *Monte Carlo* Untuk Penentuan Struktur Solvasi Ion Ni(II) Dalam Amonia Pekat Menggunakan Potensial Pasangan**

**Penyusun** : **Henry Widhiyanto**

**NIM** : **080112286**

**Pembimbing I** : **Drs. Faidur Rochman, MS.**

**Pembimbing II** : **Drs. Imam Siswanto, M.Si**

**Disetujui Oleh**

**Pembimbing I**



**Drs. Faidur Rochman, MS.**  
**NIP. 131406061**

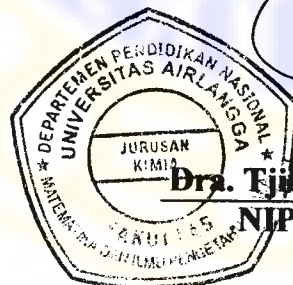
**Pembimbing II**



**Drs. Imam Siswanto, M.Si**  
**NIP. 132049473**

**Mengetahui :**

**Ketua Jurusan Kimia  
FMIPA Universitas Airlangga**



**Dra. Fijjik Srie T., Ph.D**  
**NIP. 131801627**

## **PEDOMAN PENGGUNAAN SKRIPSI**

Skripsi ini tidak dipublikasikan, namun tersedia di perpustakaan dalam lingkungan Universitas Airlangga. Diperkenankan untuk dipakai sebagai referensi kepustakaan, tetapi pengutipan harus sejin penyusun dan harus menyebutkan sumbernya sesuai kebiasaan ilmiah.

**Dokumen skripsi ini merupakan hak milik Universitas Airlangga.**

Aku masih terlelap dalam gelap  
Tanpa pernah menyadari kesadaranku telah tersekap  
Walau telah kuraih setitik sinar untuk menyingkap pekat yang terus mendekap  
Aku masih saja terpesona dalam gelap

Dia yang menyadarkanku  
Dia yang memberiku sesuatu  
Dia yang tak pernah mengharap sesuatu  
Dia yang selalu bersamaku

Endapkan semua jelaga pikiran  
Luruh dalam buai belaian kalbu  
Otak yang terbelenggu oleh nafsu dunia  
Kosong tanpa makna, makna tanpa arti

---

Dan janganlah kamu mengikuti apa yang kamu tidak mempunyai pengetahuan tentangnya. Sesungguhnya pendengaran, penglihatan dan hati, semuanya itu akan diminta pertanggung jawabnya. (QS. Al Israa' 36)

Kepunyaan Allah-lah apa yang di langit dan apa yang di bumi, dan adalah (pengetahuan) Allah Maha Meliputi segala sesuatu (QS. An-Nisaa' 126).

Katakanlah : "Sekiranya lautan menjadi tinta untuk (menulis) kalimat-kalimat Tuhanku, sungguh habislah lautan itu sebelum habis (ditulis) kalimat-kalimat Tuhanku, meskipun Kami datangkan tambahan sebanyak itu (pula)." (QS. Al Kahfi 109)

---

Skripsi ini aku persembahkan bagi Allah SWT, Bunda tercinta, Ayah tersayang, Adik-adikku terkasih dan "lentera" yang akan selalu menerangi gelap hatiku ~ tetaplah bersinar usahlah padam sampai pelita terakhir. Terima kasih telah memberikan warna pada sepenggal kanvasku ini...

## KATA PENGANTAR

Tiada lagi kata yang patut diucapkan selain kata syukur *Alhamdulillah*, segala puji bagi Allah, Tuhan bagi orang yang berakal, karena hanya dengan rahmat dan karunia-Nya penyusun dapat menyelesaikan penulisan skripsi dengan judul “Simulasi *Monte Carlo* Untuk Penentuan Struktur Solvasi Ion Ni(II) dalam Amonia Pekat Menggunakan Potensial Pasangan”.

Skripsi ini disusun sebagai tugas akhir yang harus diselesaikan sebagai persyaratan meraih gelar Sarjana Sains dalam bidang Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Airlangga.

Dalam kesempatan ini penyusun mengucapkan terima kasih kepada :

1. Drs. Faidur Rochman, M.S selaku dosen pembimbing I dan Drs. Imam Siswanto, M.Si selaku dosen pembimbing II yang dengan sabar memberikan bimbingan, arahan dan petunjuk serta nasehat dalam penyusunan skripsi ini.
2. Ibu Siti Wafiroh, M.Si dan Dra. Hartati, M.Si sebagai dosen penguji yang telah banyak memberikan masukan, saran dan nasehat untuk menyempurnakan skripsi ini.
3. Prof. Dr. Ami Soewandi, JS selaku dosen wali.
4. Dra. Tjitjik Srie Tj., Ph.D selaku ketua jurusan kimia FMIPA Universitas Airlangga dan seluruh staf jurusan kimia.
5. Seluruh dosen pengajar, staf dan karyawan di lingkungan FMIPA Universitas Airlangga.

6. Ayah, Bunda, dan adik-adik tercinta yang telah memberikan kasih sayang, kepercayaan, dan dukungan baik secara moril maupun materi.
7. Himmatul Barroroh yang telah banyak meluangkan waktu membantu penyusun.
8. Teman-teman angkatan 2001, khususnya Lela, Nurul, Yus, Muf, Sulih, Nina, Dewi dan teman-teman yang tidak bisa disebutkan satu persatu atas dukungannya.
9. Semua pihak yang telah membantu dalam menyelesaikan penulisan skripsi ini.

Penyusun menyadari bahwa masih terdapat banyak kekurangan dalam penyusunan skripsi ini, oleh karena itu kritik dan saran yang membangun sangat penyusun harapkan. Semoga skripsi ini dapat bermanfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan.

Surabaya, Januari 2006

Penyusun

Henry Widhiyanto

**Widhiyanto, H., 2006, Simulasi *Monte Carlo* Untuk Menentukan Struktur Solvasi Ion Ni(II) dalam Amonia pekat Menggunakan Potensial Pasangan. Skripsi di bawah bimbingan Drs. Faidur Rochman, MS. dan Drs. Imam Siswanto, M.Si., Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Airlangga, Surabaya**

---

### ABSTRAK

Simulasi *Monte Carlo* ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam larutan amoniak pekat menggunakan potensial pasangan telah dilakukan untuk mempelajari solvasi preferensial. Potensial interaksi  $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_3 - \text{NH}_3$ ,  $\text{H}_2\text{O} - \text{NH}_3$ ,  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$  diambil dari literatur sebagai masukan simulasi. Sistem simulasi terdiri dari 1 ion  $\text{Ni}^{2+}$ , 210 molekul  $\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{NH}_3$  dimana jumlahnya masing-masing disesuaikan dengan konsentrasi. Simulasi dilakukan pada suhu 293,15 K. agar sistem tetap berada dalam fasa cair. Hasil simulasi menunjukkan bahwa solvasi di kulit pertama  $\text{Ni}^{2+}$  terdiri dari 6 molekul  $\text{NH}_3$  pada konsentrasi 49,76% dan 59,72%. Sedangkan pada konsentrasi 69,67% dan 79,62% berjumlah 8 molekul  $\text{NH}_3$ . Pada kulit solvasi kedua, jumlah molekul  $\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{NH}_3$  berturut-turut adalah 3 dan 8 pada konsentrasi 49,76%; 1 dan 19 pada konsentrasi 59,72%; 2 dan 19 pada konsentrasi 69,67%; serta 0 dan 21 pada konsentrasi 79,62%. Data distribusi sudut, radial dan angka solvasi menunjukkan adanya dua struktur geometri yaitu segitiga antipiramida dan segiempat antipiramida. Molekul  $\text{H}_2\text{O}$  sudah tidak mensolvasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  di kulit pertama.

Kata kunci : Simulasi *Monte Carlo*, Potensial pasangan, Solvasi preferensial,



**Widhiyanto, H., 2006, Monte Carlo Simulation to obtain solvation structure of Ni(II) in concentrated ammonia using two-body potential. The script guided by Drs. Faidur Rochman, MS. and Drs. Imam Siswanto, M.Si., Department of Chemistry, Mathematic and Science Faculty, Airlangga University, Surabaya**

---

### ABSTRACT

Monte Carlo simulation for  $\text{Ni}^{2+}$  in concentrated ammonia solution using two body potential was carried out in order to study preferential solvation. Interaction potential of  $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_3 - \text{NH}_3$ ,  $\text{H}_2\text{O} - \text{NH}_3$ ,  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$  adopted from literatures used for simulation input. Simulation system consist of 1 ion  $\text{Ni}^{2+}$ , 210  $\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{NH}_3$  molecules whereas each quantity have been adjusted by the concentrations. The simulation is running at 293,15 K in order to keep the system in liquid state. The results show that first solvation shell of  $\text{Ni}^{2+}$  consist of 6  $\text{NH}_3$  molecules at 49,76% and 59,72% ammonia solution. Whereas at 69,67% and 79,62% ammonia solvation are 8  $\text{NH}_3$  molecules. The amount of  $\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{NH}_3$  molecules in the second solvation shell of  $\text{Ni}^{2+}$  ion are 3 and 8 at 49,62%; 1 and 19 at 59,72% ; 2 and 19 at 69,67%; 0 and 21 at 79,62% respectively. Distribution data of angle, radial and solvation number indicate two geometry structure that are triangle antipiramidal and quadrangle antipiramidal.

**Keywords :** *Monte Carlo simulation, Two-body potential, Preferential solvation.*

## DAFTAR ISI

	<b>Halaman</b>
HALAMAN JUDUL	
LEMBAR PENGESAHAN	
KATA PENGANTAR .....	i
ABSTRAK .....	ii
ABSTRACT .....	iv
DAFTAR ISI .....	v
DAFTAR TABEL .....	vii
DAFTAR GAMBAR .....	viii
DAFTAR LAMPIRAN .....	ix
BAB I PENDAHULUAN .....	1
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Rumusan Masalah .....	3
1.3 Tujuan Penelitian .....	3
1.4 Manfaat Penelitian .....	4
BAB II TINJAUAN PUSTAKA .....	5
2.1 Kajian Eksperimental dan Kesesuaiannya dengan Komputasi .....	5
2.2 Potensial Interaksi .....	7
2.2.1 Potensial pasangan .....	10
2.2.2 <i>Three-body potential</i> .....	11
2.3 Metode Simulasi <i>Monte Carlo</i> .....	11
2.3.1 Metode Metropolis .....	12
2.3.2 Kondisi batas berulang .....	12
2.3.3 Aturan bayangan terkecil .....	13
2.4 Tahapan Simulasi <i>Monte Carlo</i> .....	15
2.4.1 Penyusunan konfigurasi awal .....	15
2.4.2 Pencapaian kesetimbangan .....	16
2.4.3 Penarikan sampel .....	18
2.4.4 Analisis hasil simulasi .....	18
2.5 Simulasi <i>Monte Carlo</i> untuk Beberapa Logam Transisi .....	19
BAB III METODE PENELITIAN .....	21
3.1 Tempat Penelitian .....	21
3.2 Alat dan Bahan Penelitian .....	21
3.2.1 Alat penelitian .....	21
3.2.2 Bahan penelitian .....	22

3.3	Prosedur Penelitian .....	23
3.3.1	Diagram alir penelitian .....	23
3.3.2	Tahapan simulasi .....	24
3.3.2.1	Tahap simulasi <i>Monte Carlo</i> .....	24
3.3.2.2	Tahap analisa hasil simulasi <i>Monte Carlo</i> .....	28
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN.....		33
4.1	Simulasi Monte Carlo ion $Ni^{2+}$ dalam Larutan Amonia Pekat .....	33
4.2	Analisa Hasil Simulasi.....	35
4.2.1	Analisa fungsi distribusi radial .....	35
4.2.2	Analisa distribusi angka solvasi.....	41
4.2.3	Analisa distribusi sudut.....	44
4.3	Struktur Statis Ion $Ni^{2+}$ dalam Amonia Pekat.....	46
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN.....		48
5.1	Kesimpulan .....	48
5.2	Saran .....	48
DAFTAR PUSTAKA .....		50
LAMPIRAN		
SENARAI		

## DAFTAR TABEL

Nomor	Judul Tabel	Halaman
2.1	Parameter struktur hidrasi beberapa kation yang diperoleh secara eksperimen (Inada et al, 1999) dan simulasi.....	7
2.2	Perbandingan bilangan koordinasi hasil simulasi dengan menggunakan potensial pasangan ( $V_2$ ) dan potensial pasangan yang menyertakan <i>three-body potential</i> ( $V_2+V_3$ ).....	20
3.1	Fungsi potensial interaksi yang diperlukan untuk simulasi MC ion $Ni^{2+}$ dalam amonia pekat.....	22
3.2	Jumlah partikel untuk simulasi MC ion $Ni^{2+}$ dalam amonia pekat.....	24
4.1	Jarak interaksi ion $Ni^{2+} - H_2O$ di kulit pertama dan kedua.....	41
4.2	Distribusi angka solvasi $Ni - H_2O$ dan $Ni - NH_3$ di kulit pertama dan kedua hasil analisis MC .....	41
4.3	Distribusi sudut $H_3N - Ni - NH_3$ di kulit pertama hasil analisis MC.....	45

## DAFTAR GAMBAR

No.	Judul Gambar	Halaman
1.	Perbandingan energi interaksi pasangan $\text{Co}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$ dengan dan tanpa koreksi <i>three-body potential</i> (Ethica, 2000) .....	10
2.	Kondisi batas berulang sistem dua dimensi (Leach, 1996) .....	13
3.	Aturan bayangan terkecil sistem dua dimensi (Leach, 1996).....	14
4.	Fluktuasi energi sistem sebagai parameter kontrol kesetimbangan sistem (Barroroh, 2003).....	17
5.	Fungsi distribusi radial $\text{Ni}^{2+} - \text{N}$ dan $\text{Ni}^{2+} - \text{H}$ dari $\text{NH}_3$ (Qurrachman, 2005) .....	19
6.	Distribusi bilangan koordinasi hasil simulasi MC dengan koreksi <i>three-body potential</i> (Barroroh, 2003).....	19
7.	Diagram alir penelitian .....	23
8.	Fluktuasi energi simulasi MC $\text{Ni}^{2+}$ dalam amonia 79,62%.....	34
9.	Profil energi sistem saat simulasi MC tahap pengambilan sampel.....	34
10.	Fungsi distribusi radial pada konsentrasi amonia 49,76%.....	37
11.	Fungsi distribusi radial pada konsentrasi amonia 59,72%.....	38
12.	Fungsi distribusi radial pada konsentrasi amonia 69,67%.....	39
13.	Fungsi distribusi radial pada konsentrasi amonia 79,62%.....	40
14.	Distribusi angka solvasi $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$ dan $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$ hasil analisis MC .....	42
15.	Distribusi angka solvasi $\text{Zn}^{2+} - \text{NH}_3$ (Barroroh, 2003) .....	44
16.	Fungsi distribusi sudut $\text{H}_3\text{N} - \text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$ hasil analisis MC .....	45
17.	Struktur $\text{Ni}^{2+}$ dalam amonia (a) Segiempat antipiramida (b) Segitiga antipiramida .....	46

## DAFTAR LAMPIRAN

No.	Judul Lampiran
1.	Potensial interaksi pelarut – pelarut
2.	Potensial interaksi ion – pelarut
3.	Potensial interaksi campuran pelarut
4.	Struktur statis Ni <sup>2+</sup> segitiga antipiramida
5.	Struktur statis Ni <sup>2+</sup> segiempat antipiramida

## BAB I

### PENDAHULUAN

#### 1.1 Latar Belakang

Reaksi kimia biasanya terjadi dalam suatu medium pelarut. Berbagai macam interaksi terjadi dalam pelarut sehingga perlu dipelajari lebih mendalam agar dapat diketahui bagaimana suatu reaksi tersebut terjadi. Salah satunya adalah solvasi. Solvasi terjadi apabila molekul atau ion dilarutkan dalam suatu pelarut sehingga terjadi interaksi dan asosiasi dengan ion atau molekul pelarut. Semakin kecil ukuran ion tersebut maka, semakin banyak molekul dari pelarut yang dapat berasosiasi. Apabila yang berinteraksi adalah ion, semakin tinggi muatannya, maka akan semakin banyak ion dari pelarut yang berinteraksi. Ketika ion berinteraksi dengan pelarut, efek keberadaan ion ini akan menyebabkan modifikasi dalam struktur lokal dan perubahan dinamika molekul-molekul pelarut di sekitar ion. Hasil interaksi ini merupakan suatu hubungan yang rumit antara mobilitas ionik, ukuran dan muatan (Millero, 1979).

Metoda penentuan struktur hidrasi ion secara garis besar dapat dibagi menjadi tiga, yaitu : (1) Metode spektroskopi., (2) Metoda hamburan, dan (3) Metode simulasi komputer. Metode spektroskopi dan hamburan digunakan dalam penelitian eksperimental. Metode simulasi komputer saat ini banyak digunakan dalam penelitian teoritis karena keterbatasan dari penelitian eksperimental pada penentuan struktur hidrasi ion belum mampu menjelaskan struktur hidrasi kulit ke

dua, seperti jumlah molekul air yang terkoordinasi dan jarak interaksi antara ion dan molekul air (Ohtaki dan Radnai, 1993).

Simulasi komputer merupakan suatu metode pendekatan teoritis untuk menganalisis struktur dan dinamika molekul. Simulasi dapat diklasifikasikan menjadi tiga kategori : (1) Dinamika molekul (MD – *Molecular Dynamics*), (2) Simulasi *Monte Carlo* (MC), dan (3) Mekanika molekul (MM – *Molecular Mechanics*). Metoda MD dapat digunakan untuk menjelaskan sifat struktur sistem yang dinamis, sedangkan metoda MC dan MM hanya dapat menjelaskan sifat struktur sistem yang statis.

Studi interaksi pelarut dan zat terlarut dalam keadaan cair dengan menggunakan metode MC telah banyak dilakukan baik itu dalam keadaan sistem ion – pelarut sendiri atau dalam pasangan ion logam sebagai kation dan halogen sebagai anion. Ion logam yang telah diteliti adalah logam alkali, alkali tanah dan logam transisi baik periode pertama ataupun periode kedua.

Data eksperimen perhitungan interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan air terhidrat pada fasa padat dari metode difraksi sinar X dan *Extended X-ray Absorption Fine Structure-EXAFS* menunjukkan bahwa rata-rata jumlah molekul air di kulit pertama adalah 6 dan jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  – O dari molekul  $\text{H}_2\text{O}$  sebesar 2,07Å (Ohtaki dan Radnai, 1993). Hidrasi kulit kedua dari ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam  $\text{H}_2\text{O}$  belum bisa dianalisis dengan jelas bila hanya menggunakan data eksperimen, sehingga sangat perlu dilakukan pendekatan teoritis untuk menjelaskannya.



Aplikasi lebih luas dari penelitian ini adalah mampu melihat interaksi ion logam dengan pelarut dalam sistem metabolisme manusia sehingga dapat dimanfaatkan untuk bidang-bidang lain.

## 1.2 Rumusan Masalah

Adapun rumusan masalah dari penelitian ini adalah untuk mengetahui:

1. berapa banyak molekul ligan  $\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{NH}_3$  yang mengelilingi ion  $\text{Ni}^{2+}$  pada kulit pertama maupun kedua pada masing-masing konsentrasi larutan amonia?
2. apakah ada perbedaan struktur solvasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  pada masing-masing konsentrasi larutan amonia?

## 1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk melakukan kajian struktur solvasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam pelarut amonia pekat dengan menggunakan metode simulasi MC dan selanjutnya menentukan struktur molekul  $\text{H}_2\text{O} - \text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$ . Dengan simulasi ini dapat dihasilkan struktur statis  $\text{H}_2\text{O} - \text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$ , yang diperoleh dari fungsi distribusi radial, distribusi angka hidrasi, distribusi sudut  $\text{H}_2\text{O} - \text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$ ,  $\text{H}_2\text{O} - \text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_3 - \text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$  distribusi energi pasangan  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$ ,  $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_3 - \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_3 - \text{NH}_3$  pada suhu 293,15 K.

#### 1.4 Manfaat Penelitian

Manfaat dari penelitian ini adalah sebagai berikut.

1. Mendapatkan suatu penjelasan teoritis mengenai sifat dan struktur solvasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam campuran pelarut  $\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{NH}_3$  yang tidak dapat diperoleh hanya melalui eksperimen di laboratorium.
2. Dapat menunjang perkembangan ilmu lain secara luas, khususnya yang berkenaan dengan solvasi ion dalam pelarut.

## BAB II

### TINJAUAN PUSTAKA

#### 2.1 Kajian Eksperimental dan Kesesuaiannya dengan Komputasi

Adanya gaya intermolekuler baik tolakan ataupun tarikan menyebabkan cairan mempunyai kerapatan yang relatif tinggi. Hal ini merupakan suatu kajian yang sangat menarik di bidang ilmu kimia. Dewasa ini telah banyak dilakukan penelitian tentang keadaan cair, terutama interaksi intermolekuler. Telah diketahui bahwa potensial pasangan sistem keadaan gas digunakan sebagai dasar utama penyusun potensial sistem keadaan cair. Potensial pasangan sistem keadaan cair dapat didefinisikan melalui potensial pasangan sistem keadaan gas dengan suatu faktor koreksi tertentu (Marcus, 1977). Penggunaan jenis potensial pasangan dalam simulasi komputer telah dilakukan sejak 1974 oleh Kistenmacher dan kawan-kawan untuk penentuan struktur kompleks molekular dari  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{F}^-$  dan  $\text{Cl}^-$ . Pada perkembangan selanjutnya, didapatkan hasil yang kurang memuaskan karena memberikan kesalahan yang cukup besar, terutama untuk kation divalen atau yang lebih tinggi. Kesalahan energetiknya dapat mencapai 32% untuk  $[\text{Ca}(\text{H}_2\text{O})_6]^{2+}$  (Tongraar et al, 1998); 18% untuk  $[\text{Zn}(\text{NH}_3)_6]^{2+}$  (Hannongbua et al, 1992); 27,2% untuk  $[\text{Cu}(\text{NH}_3)_6]^+$ ; 20,5% untuk  $[\text{Cu}(\text{H}_2\text{O})_6]^+$  (Pranowo et al, 1999) dan 23% untuk  $[\text{Li}(\text{NH}_3)_6]^+$  (Hannongbua, 1998). Karena itu telah banyak dianjurkan penggunaan potensial interaksi yang lebih tinggi yaitu *three-body potential* untuk mengoreksi kesalahan tersebut.

Penelitian tentang interaksi pelarut-pelarut telah banyak dilakukan dengan menggunakan metode simulasi baik MC maupun MD seperti campuran metanol-air (Okazaki et al, 1984), DMSO-air (Vaisman dan Berkowitz, 1992), amonia-air (Tanabe dan Rode, 1988), aseton-air (Ferrario et al, 1990), dan hidroksilamin-air (Visozo et al, 1994). Sementara itu untuk sistem zat terlarut-pelarut antara lain,  $\text{Na}^+$ -amonia dan  $\text{Mg}^{2+}$ -amonia (Hannongbua, 1997),  $\text{Na}^+$ -hidroksilamin (Vizoso et. al, 1994),  $\text{Cu}^+$ -air dan  $\text{Cu}^+$ -amonia (Pranowo et al, 1999),  $\text{Zn}^{2+}$ -air (Marini et al, 1996),  $\text{Zn}^{2+}$ -amonia (Hannongbua et al, 1992)  $\text{Cu}^{2+}$ -air (Texler dan Rode, 1995),  $\text{Cu}^{2+}$ -amonia (Pranowo dan Rode, 1999)  $\text{Co}^{2+}$ -air (Armunanto, 2000),  $\text{Co}^{2+}$ -amonia (Kusumawardani, 2002) dan  $\text{Ni}^{2+}$ -air (Inada et al, 2002).

Penentuan struktur solvasi beberapa ion dalam beberapa jenis pelarut juga telah dilakukan secara eksperimental. Menurut Ohtaki dan Radnai (1993), metode penentuan struktur hidrasi ion secara eksperimen dikelompokkan dalam tiga golongan yaitu (1) struktur stasis dengan menggunakan alat difraksi (sinar X, neutron dan *Extended X-ray Absorption Fine Structure—EXAFS*), (2) struktur dinamis, menggunakan *Nuclear Magnetic Resonance—NMR* dan (3) energi yang berbeda, dengan menggunakan alat spektroskopi *Infra Red (IR)* dan Raman. Analisis dengan *X Ray Diffraction* lebih akurat daripada *EXAFS* (Ohtaki dan Radnai, 1993), sementara analisis dengan *EXAFS* lebih akurat daripada *NMR* (Camuniti et al, 1977; Sham et al, 1981; Miyanaga et al, 1988)

Data yang diperoleh dari simulasi ternyata hampir sama dengan data yang diperoleh lewat eksperimen. Hal tersebut dapat dilihat pada Tabel 2.1.

**Tabel 2.1** Parameter struktur hidrasi beberapa kation yang diperoleh secara eksperimen (Inada et al, 1999) dan simulasi

Kation	Parameter	XRD	Simulasi
Co (II)	N	6	6,0 <sup>(1)</sup>
	R	2,08	2,09
Ni (II)	N	6	6,0 <sup>(1)</sup>
	R	2,05	2,07
Cu (II)	N <sub>eq</sub>	4	4,0 <sup>(2)</sup>
	R <sub>eq</sub>	1,97	2,20
	N <sub>aks</sub>	2	2,0
	R <sub>aks</sub>	2,29	2,20
Zn (II)	N	6	6,0 <sup>(3)</sup>
	R	2,07	2,20

Keterangan : N = Bilangan koordinasi, R = panjang ikatan kation – ligan (Å), <sup>(1)</sup> Metode MD (D'Angelo et al, 2002), <sup>(2)</sup> Metode MC (Texler dan Rode, 1995), <sup>(3)</sup> Metode MC (Marini et al, 1996)

## 2.2 Potensial Interaksi

Atom gas mulia pada keadaan setimbang terpisah pada jarak tertentu. Apabila jarak tersebut dikurangi maka akan muncul suatu gaya tolakan yang kuat. Gaya tolakan tersebut termasuk energi potensial yang disebut sebagai energi potensial intermolekular. Energi ini merupakan fungsi orientasi relatif dari jarak antar dua pusat massa molekul (Pranowo dan Rode, 2001).

Jika atom-atom saling mendekat dari jarak tak terhingga, maka energi potensialnya akan turun hingga menjadi negatif sampai pada titik kesetimbangan.

Hal ini menunjukkan adanya gaya tarik antar molekul yang muncul. Jika atom-atom tersebut didekatkan lagi melampaui diameter atomiknya maka energi potensial tersebut akan meningkat tajam dan mencapai nilai positif. Hal ini dikarenakan adanya gaya tolak antar molekul (Kihara, 1978)

Energi potensial termasuk sebuah komponen masukan (*input*) yang penting dalam simulasi. Komponen terpenting dalam menentukan energi potensial adalah energi pada jarak pendek (*short range*) dan jarak panjang (*long range*). Energi jarak pendek merupakan hasil tumpang tindih fungsi gelombang orbital-orbital molekul yang berinteraksi dan diperoleh dari variasi jarak  $R$  sebagai fungsi eksponensial ( $\exp(-k \cdot R)$ ) dengan  $k$  adalah tetapan Born-Mayer (Ethica, 2002).

Energi jarak panjang dibagi menjadi tiga yaitu energi elektrostatis, energi induksi dan energi dispersi. Energi jarak panjang diperoleh dari variasi jarak  $R$  sebagai  $R^{-n}$ , yang melibatkan energi coulomb antar muatan. Sehingga energi potensial ( $V_{int}$ ) terdiri dari 4 suku yaitu :

$$V_{int} = V_{short} + V_{elec} + V_{ind} + V_{disp} \dots\dots\dots (2.1)$$

Suku jarak dekat ( $V_{short}$ ) menggambarkan interaksi tolak-menolak yang mengalami penurunan secara eksponensial sebagai fungsi jarak antar molekul. Suku elektrostatis ( $V_{elec}$ ) menggambarkan interaksi antar momen multipol pada masing-masing spesi. Suku induksi ( $V_{ind}$ ) menggambarkan efek polarisasi awan muatan pada masing-masing spesi melalui medan statik polarisasi karena pengaruh medan statis polarisasi spesi lain. Suku dispersi ( $V_{dis}$ ) menggambarkan

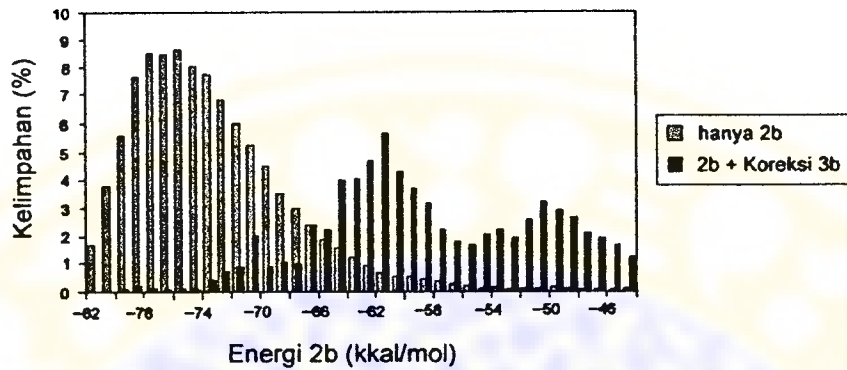
interaksi yang menyebabkan korelasi perubahan multikutub secara cepat pada dua spesi. (Ethica, 2002).

Pendekatan yang digunakan dalam simulasi komputer adalah suatu metode perhitungan energi potensial secara eksak pada sistem yang berisi  $N$  partikel ke dalam suatu suku yang melibatkan molekul pasangan, *triplets*, ..., *N-tuplets*.

$$V(1,2,3\dots N) = \sum_i \sum_{j>i} V_2(i,j) + \sum_i \sum_{j>i} \sum_{k>j>i} V_3(i,j,k) + \dots \dots \dots (2.2)$$

indeks  $i,j,k,\dots$  adalah jumlah molekul dalam sistem. Suku pertama dalam persamaan ( $V_2$ ) merupakan potensial pasangan yang menggambarkan interaksi pasangan molekul. Suku ini memberikan kontribusi terbesar dalam penentuan energi potensial  $V$ . Suku ( $V_3$ ) merupakan *three-body potential* yang merupakan energi fraksi karena polarisasi dan tolakan sterik. Kontribusinya dalam penentuan energi potensial  $V$ , terutama di dalam cairan berharga positif yaitu sekitar 10–15% dari total energi. Suku ( $V_4$ ) dan seterusnya memberikan kontribusi yang kecil bila dibandingkan dengan suku pertama dan kedua. Asumsi bahwa energi interaksi sama dengan  $\sum V_2(i,j)$  dikenal sebagai pendekatan aditivitas potensial pasangan (*pairwise additive*) dan suku yang tersisa dari deret persamaan sering disebut dengan koreksi non aditif (Ethica, 2002).

Keberhasilan dari penggunaan energi potensial pasangan dalam simulasi ditandai dengan adanya kesesuaian antara data simulasi komputer dengan data eksperimen. Namun apabila tidak tercapai kesesuaian maka diperlukan faktor koreksi yang disebut *three-body potential*.



Gambar 1. Perbandingan energi interaksi pasangan  $\text{Co}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$  dengan dan tanpa koreksi *three-body potential* (Ethica, 2000)

2.2.1 Potensial pasangan.

Potensial pasangan merupakan komponen terpenting dalam penentuan energi potensial intermolekuler. Potensial pasangan yang menggambarkan energi interaksi antara dua partikel, diperoleh melalui persamaan :

$$V_2(i, j) = E(i, j) - (E(i) + E(j)) \dots\dots\dots(2.3)$$

$V_2(i, j)$  merupakan potensial pasangan,  $E(i, j)$  merupakan energi sistem pasangan dan  $E(i)$  serta  $E(j)$  merupakan energi partikel individu.

Bentuk fungsi umum yang digunakan dalam simulasi komputer untuk interaksi antar molekul non polar tak bermuatan adalah potensial Lennard-Jones yang dikombinasi dengan energi Coulomb untuk menggambarkan interaksi ion-ion dan ion-dipol (Ethica, 2002).

$$V_2(i, j) = \sum_{a \in i} \sum_{b \in j} \frac{q_a q_b}{r_{ab}} + \frac{A_{ab}}{r_{ab}^{12}} - \frac{B_{ab}}{r_{ab}^6} \dots\dots\dots(2.4)$$

$A_{ab}$  dan  $B_{ab}$  adalah parameter teroptimasi yang menggambarkan interaksi antara perbedaan *situs*. Keduanya ditentukan sedemikian rupa agar menghasilkan data



energi secara teoritis atau eksperimen.  $r_{ab}^{-12}$  atau sering dinyatakan sebagai  $\exp(-r_{ab})$  menggambarkan tolakan antar partikel dalam jarak dekat. Ketika awan elektron di sekitar atom mulai tumpang tindih, energi sistem naik.  $r_{ab}^{-6}$  menggambarkan tarikan. Suku ini diambil dari gaya van der Waals, interaksi dipol-dipol, muatan multipol serta gaya London.  $\frac{(q_a q_b)}{r_{ab}}$  adalah gaya Coulomb yang menggambarkan interaksi intermolekuler pada jarak panjang dan interaksi muatan-muatan (Ethica, 2002).

### 2.2.2 *Three-body potential.*

Suatu sistem cairan maupun interaksi ionik valensi tinggi memerlukan *many-body potential* terutama *three-body potential* untuk menggambarkan interaksi yang terjadi.

$$V_3(i, j, k) = E(i, j, k) - [E(i) + E(j) + E(k)] - \sum V_2(i, j) \dots\dots\dots(2.5)$$

$V_3(i, j, k)$  adalah potensial badan tiga dan  $E(i, j, k)$  adalah energi sistem badan tiga (Ethica, 2002).

## 2.3 *Metode Simulasi Monte Carlo*

Metode MC adalah metode yang berdasarkan pada prinsip probabilitas dengan melakukan pengambilan sampel *stochastic*. Pengambilan sampel ini dilakukan dengan konfigurasi acak yang diolah dengan operasi aritmatika dan logika bilangan terbatas. Metode ini menjadi berkembang seiring dengan perkembangan komputer yang pesat. Permasalahan kajian badan banyak yang

dulu mengalami stagnasi menjadi berkembang sejak dikaji oleh Metropolis dan kawan-kawan yang menghasilkan metode MC Metropolis.

### 2.3.1 Metode Metropolis.

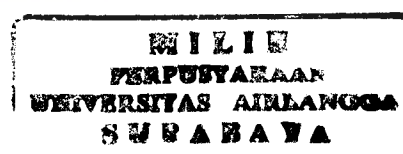
Pada metode MC Metropolis, pemilihan konfigurasi dilakukan secara acak. Konfigurasi yang berpengaruh kecil pada hasil fungsi rata-rata akan diabaikan sehingga dapat mempercepat prosedur.

Dalam simulasi MC, konfigurasi dihasilkan oleh pergerakan acak dari atom atau molekul tunggal sehingga energi yang dihasilkan akan dihitung dengan fungsi energi potensial. Sejumlah konfigurasi dapat diterima jika energinya lebih rendah dari keadaan awal. Konfigurasi yang diterima ini akan menjadi keadaan awal untuk konfigurasi selanjutnya (Metropolis et.al, 1953).

Secara umum, metode MC bertujuan untuk menghasilkan suatu lintasan acak pada ruang fasa sampel secara statistik. Lintasan adalah suatu rangkaian titik-titik ruang fasa yang diikuti oleh sistem sepanjang waktu evaluasi sistem. Titik-titik fasa ini adalah konfigurasi-konfigurasi yang didistribusikan berdasarkan kerapatan probabilitasnya. Sehingga metode MC menggunakan teknik sampling untuk menyelesaikan integral multidimensi yang melibatkan integral konfigurasi  $Z(N,V,T)$  (Metropolis et.al, 1953).

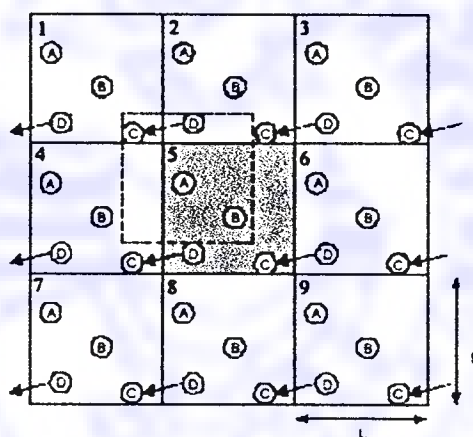
### 2.3.2 Kondisi batas berulang.

Untuk menggambarkan perilaku pelarut dalam simulasi seringkali diperlukan penjelasan yang detail. Fungsi distribusi radial (*Radial Distribution Function-RDF*) dari pelarut menunjukkan probabilitas untuk menemukan suatu molekul yang terpisah pada jarak tertentu dari molekul lain (Leach, 1996).



Apabila kita menginginkan untuk mengamati reaksi dari *RDF* pada molekul terlarut atau efek pergerakan molekul terlarut pada pelarut, diperlukan suatu metode yang tidak memerlukan representasi nyata dari molekul pelarut pada simulasi yaitu metode kondisi batas berulang (*Periodic Boundary conditions*).

Dengan metode kondisi batas berulang, dimungkinkan melakukan simulasi dengan jumlah partikel yang relatif kecil. Partikel tersebut tetap mengalami gaya-gaya sebagaimana jika partikel tersebut dalam fasa ruah. Jumlah partikel yang kecil tersebut lalu direplikasi ke segala arah untuk memberikan suatu deret periodik (Leach, 1996). Kotak dua dimensi ditunjukkan pada Gambar 2.

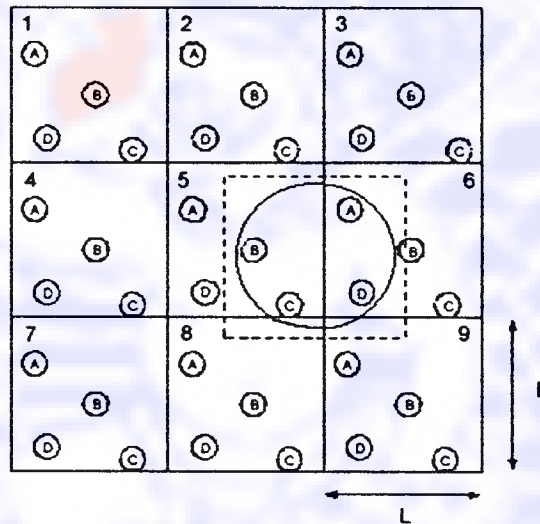


Gambar 2. Kondisi batas berulang sistem dua dimensi (Leach, 1996)

### 2.3.3 Aturan bayangan terdekat.

Salah satu kendalanya adalah perhitungan energi non ikatan sangat menyita waktu. Jumlah suku non ikatan yang perlu dievaluasi meningkat sesuai kuadrat jumlah atom, disebut order  $N^2$ . Perhitungan interaksi non ikatan dilakukan di antara setiap pasangan atom dalam sistem.

Cara yang paling umum untuk memperlakukan interaksi non ikatan adalah dengan menggunakan batas non ikatan yaitu dengan menerapkan suatu aturan bayangan terkecil. Dalam aturan bayangan terkecil, setiap atom hanya ‘melihat’ paling banyak satu bayangan setiap atom lain dalam sistem. Bayangan tersebut diulang secara tak hingga dengan metode batas berulang. Energi non ikatan dihitung dengan atom terdekat atau bayangannya (Leach, 1996) seperti yang terlihat pada Gambar 3.



Gambar 3. Aturan bayangan terkecil sistem dua dimensi (Leach, 1996)

Hal yang perlu diperhatikan adalah ukuran kotak dan interaksi pada jarak *cut-off*. Jika ukuran kotak kurang dari dua kali jarak *cut-off* maka suatu molekul dapat berinteraksi dengan lebih dari satu molekul atau tidak lagi memenuhi aturan bayangan terkecil. Jarak *cut-off* yang umum digunakan antara 8 – 10 Å yang merupakan representasi dari interaksi van der Waals. Namun pada jarak 8 – 10 Å, energi elektrostatik masih ada, sehingga dapat menyebabkan kesalahan sehingga biasanya jarak *cut-off* dipakai 6 Å (Arindah, 2000).

## 2.4 Tahapan Simulasi *Monte Carlo*

Tahapan simulasi MC dibagi menjadi beberapa langkah. Pertama, penyusunan konfigurasi awal sistem, kemudian penyetimbangan sistem sehingga sistem mengalami perubahan dari konfigurasi awal sampai terbentuk kesetimbangan geometris. Sifat struktural dan termodinamika sistem terus dipantau sampai terbentuk sistem yang setimbang. Dan selanjutnya dilakukan pengambilan sampel sekaligus perhitungan sifat sistem (Barroroh, 2003).

### 2.4.1 Penyusunan konfigurasi awal.

Metode umum untuk menyusun konfigurasi awal adalah dengan menempatkan sejumlah molekul secara acak sehingga didapatkan kerapatan cairan pada temperatur simulasi. Kekurangan metode ini adalah dapat menghasilkan tumpang tindih partikel yang bersifat interaksi energi tinggi sehingga diperlukan waktu yang cukup lama untuk mencapai kesetimbangan. Untuk mengatasinya perlu dimasukkan kriteria tertentu untuk jarak dekat antar partikel yang masih diijinkan (Barroroh, 2003).

Metode lain yaitu konfigurasi diperoleh secara eksperimental dengan kristalografi sinar X atau *Nuclear Magnetic Resonance-NMR*. Koordinat dari beberapa molekul pelarut didapat dari kristalografi sinar X kemudian perlu ditambah molekul pelarut lain agar kerapatan pelarut sesuai.

Konfigurasi awal dapat juga dipilih dari salah satu kisi kristal. Kisi yang paling umum adalah kisi kubus pusat muka (*face center cubic – fcc*). Struktur ini mengandung  $4M^3$  titik ( $M = 2, 3, 4, \dots$ ). Dengan dasar ini, simulasi biasanya

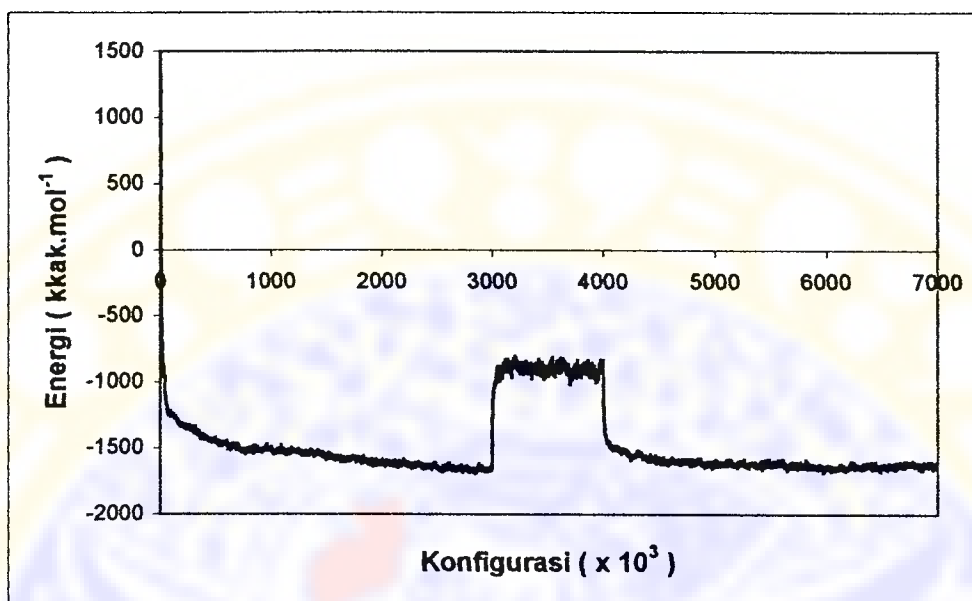
menggunakan jumlah atom atau molekul 108, 256, 525, 784 dan seterusnya (Barroroh, 2003).

#### **2.4.2 Pencapaian kesetimbangan.**

Pencapaian kesetimbangan terjadi pada saat konfigurasi awal sampai sistem berada dalam keadaan setimbang. Proses ini terus berlangsung sampai nilai dari sifat yang dikontrol menjadi stabil. Sifat sistem yang dikontrol umumnya adalah energi, suhu, dan tekanan.

Ada beberapa cara untuk mengontrol kesetimbangan. Yang paling umum adalah mengamati fluktuasi nilai energi selama simulasi berlangsung. Parameter kontrol yang lain adalah fungsi distribusi radial, tekanan, parameter yang berhubungan dengan translasi dan rotasi, dan kuadrat rata-rata pergantian molekul dari posisi awalnya (Barroroh, 2003).

Simulasi dimulai dengan konfigurasi acak sehingga memerlukan sejumlah besar konfigurasi untuk mencapai tahap kesetimbangan. Pencapaian kesetimbangan bergantung pada konfigurasi awal dan algoritma yang dipakai untuk proses pergantian partikel dan komposisi sistem. Setiap konfigurasi akan dicatat energi sistemnya, lalu dibuat grafik energi sistem sebagai sumbu Y dan konfigurasi sebagai sumbu x seperti terlihat pada Gambar 4.



Gambar 4. Fluktuasi energi sistem sebagai parameter kontrol kesetimbangan sistem (Barroroh, 2003)

Suatu sistem dikatakan setimbang apabila fluktuasi energi sistemnya relatif tetap. Kesetimbangan yang didapatkan belum tentu merupakan kesetimbangan sistem. Untuk itu perlu diuji apakah kesetimbangan yang didapat layak untuk dijadikan sebagai kesetimbangan sistem sehingga dapat diambil sampelnya.

Seperti terlihat pada Gambar 4, saat dilakukan simulasi energi sistem akan turun. Pada saat mencapai 1.000.000 konfigurasi, fluktuasi energinya relatif tetap. Hal ini berarti sistem telah berada dalam keadaan setimbang. Pengujian kesetimbangan sistem terjadi saat konfigurasi mencapai 3.000.000. Pada keadaan itu temperatur dinaikkan sehingga energi sistem naik dengan drastis. Lalu suhu dikembalikan ke keadaan semula sehingga energi sistem turun kembali dan mencapai kesetimbangan. Terlihat bahwa fluktuasi energinya relatif tetap dan sama dengan energi sebelum pemanasan. Ini berarti sistem telah benar-benar setimbang dan layak untuk dilakukan pengambilan sampel.

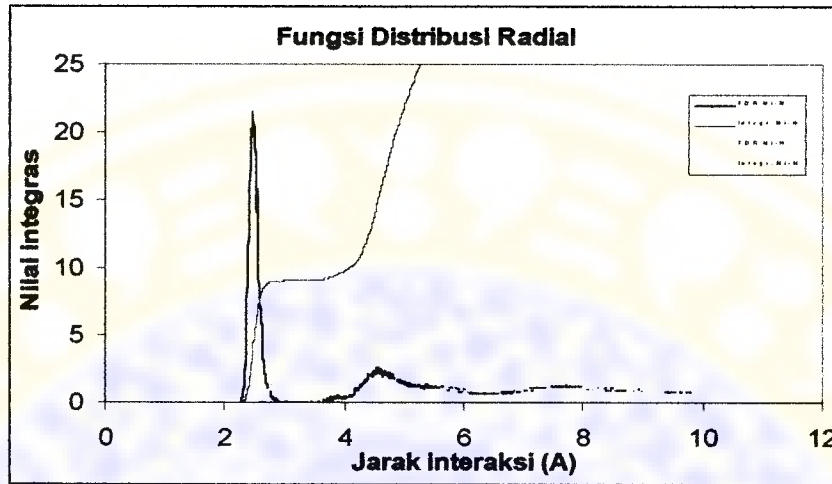
### 2.4.3 Penarikan sampel.

Sifat-sifat suatu sistem dapat diperoleh apabila fasa konfigurasi yang representatif dari sistem tersebut diketahui. Kerepresentatifan sampel dapat diperoleh dalam dua keadaan yaitu (1) pengambilan jumlah sampel yang mencukupi, karena rata-ratanya mendekati sifat yang sebenarnya jika jumlah sampel mendekati tak terhingga, (2) penarikan sampel ruang fasa konfigurasi dilakukan setelah sistem dalam keadaan setimbang. Dasar pemikirannya adalah sifat-sifat sistem sebenarnya merupakan rata-rata waktu dari pengukuran sifat sistem pada setiap saat. Selama penarikan sampel, sifat sistem seperti energi dihitung dan pada interval yang teratur konfigurasi sistem (koordinat atomik) direkam untuk nantinya dianalisis (Barroroh, 2003).

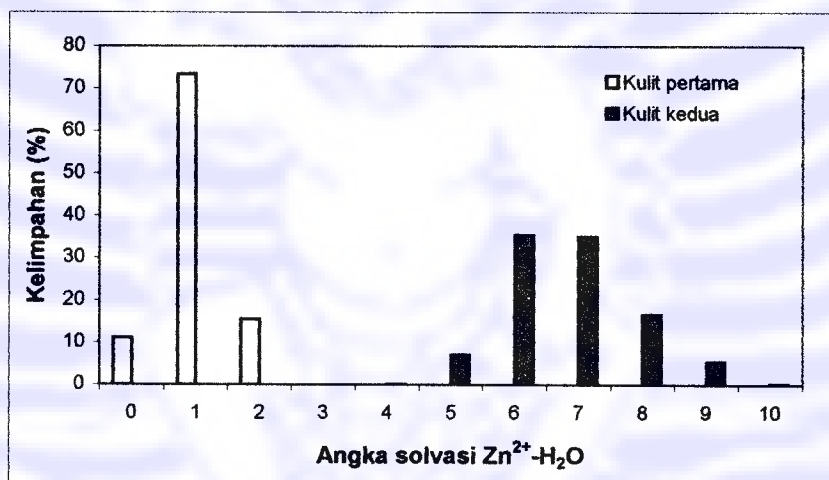
### 2.4.4 Analisis hasil simulasi.

Hasil simulasi dianalisis dengan menggunakan program *MC Simulation Analyzing* yang termodifikasi disesuaikan dengan sistem, sesuai jumlah spesi dan persamaan fungsi potensial pasangan yang terlibat. Hasilnya adalah distribusi radial dari interaksi  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$ ,  $\text{H}_2\text{O} - \text{NH}_3$ ; distribusi sudut ikatan  $\text{N} - \text{Ni}^{2+} - \text{N}$ ,  $\text{O} - \text{Ni}^{2+} - \text{O}$ ,  $\text{N} - \text{Ni}^{2+} - \text{O}$ ; dan distribusi angka solvasi dari molekul  $\text{NH}_3$  dan  $\text{H}_2\text{O}$  yang mengelilingi  $\text{Ni}^{2+}$ .





Gambar 5. Fungsi distribusi radial  $\text{Ni}^{2+}\text{-N}$  dan  $\text{Ni}^{2+}\text{-H}$  dari  $\text{NH}_3$  (Qurrachman, 2005)



Gambar 6. Distribusi bilangan koordinasi hasil simulasi MC dengan koreksi *three-body potential* (Barroroh, 2003)

## 2.5 Simulasi *Monte Carlo* untuk Beberapa Logam Transisi

Simulasi MC dapat memberikan bilangan koordinasi senyawa baik golongan utama maupun logam transisi. Beberapa ilmuwan telah melakukan

simulasi MC untuk menghitung bilangan koordinasi. untuk ion  $Zn^{2+}$  berjumlah 6 (Yongyos et.al, 1991).

Untuk ion divalen dalam air menggunakan metode MC dengan menggunakan potensial pasangan menghasilkan kesalahan karena mengabaikan fungsi *three-body potential* atau lebih, terutama untuk logam transisi seperti  $Fe^{2+}$ ,  $Ni^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$  dan  $Cu^{2+}$  (Bounds, 1985; Lafont et.al, 1987). Kontribusi *three-body potential* telah banyak menyempurnakan kesesuaian struktur solvasi antara pendekatan teoritis dengan eksperimen. Hal tersebut ditunjukkan pada Tabel 2.2

**Tabel 2.2** Perbandingan bilangan koordinasi hasil simulasi dengan menggunakan potensial pasangan ( $V_2$ ) dan potensial pasangan yang menyertakan *three-body potential* ( $V_2+V_3$ )

Sistem	$n_{V_2}$	$n_{V_2} + n_{V_3}$	Referensi
$Zn^{2+}$ -air	8	6	Marini et al., 1996
$Zn^{2+}$ -amonia	9	6	Hannongbua et al., 1992
$Cu^{2+}$ -amonia	8	6	Pranowo dan Rode, 1999
$Na^+$ -amonia	9	8	Hannongbua dan Rode, 1997
$Mg^{2+}$ -amonia	8	6	Hannongbua dan Rode, 1997
$Co^{2+}$ -amonia	8	6	Kusumawardani, 2002
$Co^{2+}$ -air	8	6	Ethica, 2002
$Zn^{2+}$ -air-amonia	8	6	Barroroh, 2003
$Ni^{2+}$ -air	8	6	Inada et. al, 2002
$Ni^{2+}$ -amonia	9	-	Qurrachman, 2005

## **BAB III**

### **METODE PENELITIAN**

#### **3.1 Tempat Penelitian**

Penelitian ini dilaksanakan di rumah peneliti, Jl. Simo Gunung Kramat Barat IIIa/14a Surabaya.

#### **3.2 Alat dan Bahan Penelitian**

##### **3.2.1 Alat penelitian.**

Penelitian ini adalah penelitian bidang kimia komputasi sehingga dibutuhkan alat bantu untuk menyelesaikan perhitungan yang sangat rumit sehingga otak manusia sangat terbatas untuk menyelesaikannya. Peralatan yang digunakan ada dua jenis.

i. Perangkat keras.

Perangkat keras komputer yang digunakan adalah sebuah *Personal Computer* (PC) dengan spesifikasi : *Central Proccesing Unit* (CPU) Pentium III dengan memori 256 Mb dan *hard disk* 19 Gb.

ii. Perangkat lunak.

1. *Monte Carlo* (MC) *Simulation L.1.2* (Rode dan Heinze, 1995) yang merupakan perangkat lunak untuk tahap simulasi dengan modifikasi yang disesuaikan dengan sistem simulasi, yaitu  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O} - \text{NH}_3$ . Dalam MC *Simulation* terdapat beberapa sub-program yang penting diantaranya :

- a. *file s.f*, sebagai program utama,
  - b. *file SuSi.in* untuk menentukan sistem simulasi,
  - c. *File STEP.f* untuk mendapatkan konfigurasi dalam simulasi.
  - d. *file RDVUP.f* untuk menghasilkan *Update Density Radial Vector*, RDV dan RDF,
  - e. *file CIL.f*, untuk memasukkan potensial pasangan,
  - f. *file TBC.f*, untuk memasukkan *three-body potential*,
  - g. *file MC99* yang merupakan *file* hasil kompilasi dari program MC99.
2. *MC Simulation Analyzing* (Texler, 1995) untuk tahap analisis dari hasil simulasi yang dimodifikasi sesuai sistem simulasi.
  3. Linux Red Hat ver. 9.0 *Operating System* sebagai sistem operasi untuk menjalankan dua perangkat lunak di atas.

### 3.2.2 Bahan penelitian.

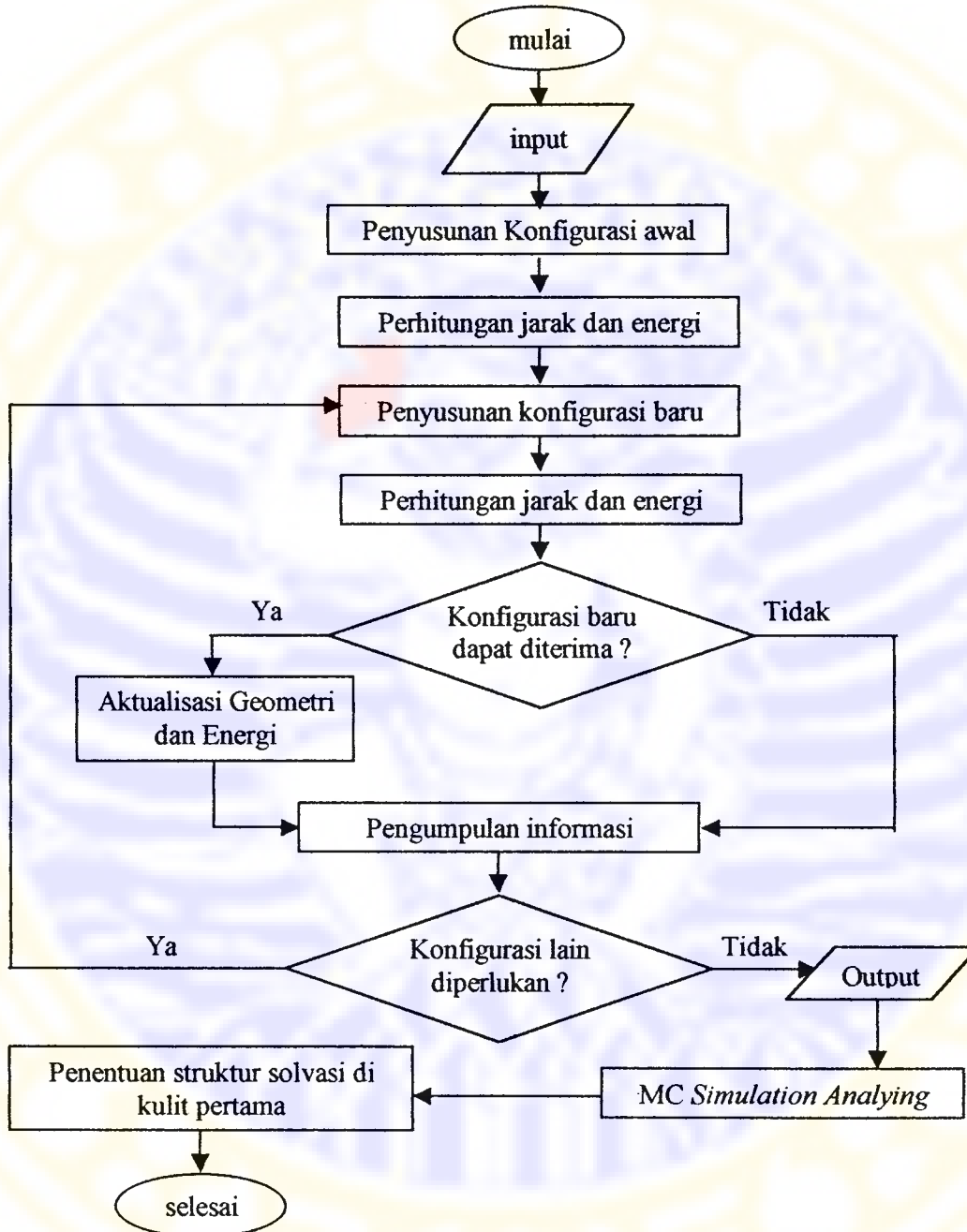
Bahan penelitian yang digunakan tergantung dari sistem simulasi. Untuk sistem Ni – H<sub>2</sub>O – NH<sub>3</sub>, diperlukan lima fungsi potensial pasangan seperti yang disajikan dalam Tabel 3.1.

**Tabel 3.1** Fungsi potensial interaksi yang diperlukan untuk simulasi MC ion Ni<sup>2+</sup> dalam amonia pekat

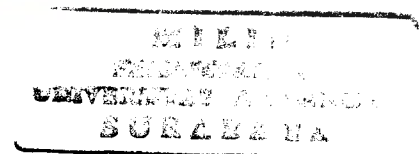
Potensial interaksi	Literatur	Keterangan
H <sub>2</sub> O – H <sub>2</sub> O	Jansco, <i>et. al</i> (1985)	Lampiran 1
NH <sub>3</sub> – NH <sub>3</sub>	Hannongbua, <i>et. al</i> (1992)	Lampiran 1
Ni <sup>2+</sup> – H <sub>2</sub> O	Inada, <i>et. al</i> (2002)	Lampiran 2
Ni <sup>2+</sup> – NH <sub>3</sub>	Schwenk (2004)	Lampiran 2
H <sub>2</sub> O – NH <sub>3</sub>	Tanabe dan Rode (1988)	Lampiran 3

### 3.3 Prosedur Penelitian

#### 3.3.1 Diagram alir penelitian.



Gambar 7 Diagram alir penelitian



### 3.3.2 Tahapan simulasi.

Simulasi  $\text{Ni}^{2+}$  dilakukan pada variasi konsentrasi amonia-air 49,76%; 59,72%; 69,67%; dan 79,62%. Jumlah partikel yang diperlukan pada tiap-tiap konsentrasi untuk menjalankan simulasi MC tercantum pada Tabel 3.2 di bawah ini.

**Tabel 3.2** Jumlah partikel untuk simulasi MC ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam amonia pekat

Konsentrasi (%)	Jumlah partikel		
	$\text{Ni}^{2+}$	$\text{H}_2\text{O}$	$\text{NH}_3$
49,76	1	105	105
59,72	1	84	126
69,67	1	63	147
79,62	1	42	168

Untuk semua variasi konsentrasi diperlukan lima potensial pasangan seperti yang tertulis pada Tabel 3.1. Selama simulasi, variabel yang tidak berubah adalah jumlah partikel (N), kotak simulasi (V) dan suhu (T) sehingga simulasi mengikuti NVT tetap. Tahap dalam penelitian ini dibagi menjadi dua bagian yaitu:

1. simulasi MC
2. analisis hasil simulasi MC

#### 3.3.2.1 Tahap simulasi *Monte Carlo*.

Simulasi MC dalam penelitian ini dilakukan berdasarkan metode Metropolis. Sebelum menjalankan simulasi, yang perlu dilakukan yaitu menyiapkan masukan (*input*) simulasi yaitu dengan menyiapkan *file input*.

- a. Melakukan modifikasi *file SuSi.in* sesuai sistem simulasi yang berisi 211 spesies yaitu 1 ion  $\text{Ni}^{2+}$ , 210 molekul  $\text{NH}_3$  dan  $\text{H}_2\text{O}$  dengan jumlah  $\text{NH}_3$  dan  $\text{H}_2\text{O}$  disesuaikan dengan Tabel 3.2, temperatur sistem (293,15 K), densitas sistem yang disesuaikan dengan konsentrasi.
- b. Melakukan modifikasi *file s.f*, yaitu  $\text{SSN}(\text{ISPE1})=\text{M}(+\text{n})$  diganti  $\text{Ni}(++)$  dan  $\text{AMW}(\text{ISPE1}) = 65,38$  diganti  $\text{BM}_{\text{Ni}(++)} = 58,69$
- c. Melakukan modifikasi *file CIL.f* dengan memasukkan fungsi potensial pasangan masing-masing interaksi yang diambil dari literatur yaitu potensial pasangan  $\text{Ni}^{2+}-\text{H}_2\text{O}$  (Inada *et al.*, 2002),  $\text{Ni}^{2+}-\text{NH}_3$  (Schwenk, 2004), potensial pasangan  $\text{H}_2\text{O}-\text{H}_2\text{O}$  (Jansco *et al.*, 1985), potensial pasangan  $\text{NH}_3-\text{NH}_3$ , (Hannongbua, *et. al*, 1992) dan potensial pasangan  $\text{H}_2\text{O}-\text{NH}_3$  (Tanabe dan Rode 1988)
- d. Melakukan modifikasi *file RDVUP.f* dengan mengganti Zn menjadi Ni
- e. Mengcompile program MC99 dengan perintah `make`. Hasil kompilasi adalah *file* MC99.

Setelah mendapatkan *file* MC99, simulasi MC siap untuk dilakukan. Dalam simulasi MC, ada 3 tahapan yang perlu dilakukan sebelum dilakukan pengambilan contoh yaitu tahap inisiasi, tahap pemanasan (*heating*), dan tahap pendinginan (*cooling*). Ketiga tahapan ini penting dilakukan untuk mendapatkan kondisi sistem dengan kesetimbangan yang mantap, sehingga pada tahap pengambilan sampel diperoleh data-data yang mewakili kondisi yang sebenarnya.

Pada ketiga tahapan diperlukan sebuah direktori khusus (*folder*) yang terpisah. Hal ini dilakukan agar tidak terjadi kerancuan data hasil simulasi. Dalam

penelitian ini dibuat tiga direktori masing-masing direktori inisiasi untuk tahap inisiasi, heating untuk tahap pemanasan dan cooling untuk tahap pendinginan. Hal ini dapat dilakukan dengan mengetik perintah : **mkdir\_<nama direktori>** ↵

Untuk melakukan tahapan inisiasi, dilakukan langkah-langkah sebagai berikut.

1. Memindahkan *file MC99, Start.Config* dan *SuSi.in* ke direktori *inisiasi* yang baru saja dibuat.
2. Memodifikasi *file SuSi.in* yaitu dengan mengubah nilai  $RSC = 0$  menjadi  $RSC = 1$ .
3. Menjalankan program MC99, dengan mengetik : **./MC99** ↵
4. Untuk melihat jalannya simulasi dapat dilakukan dengan mengetik : **tail\_–f\_Energies.2b** ↵

Tahap pemanasan (*heating*) dilakukan untuk menguji kemantapan kesetimbangan sistem. Tahapan pemanasan dilakukan dengan langkah-langkah sebagai berikut.

1. Memindahkan *file MC99, Start.Config* dan *SuSi.in* dari direktori *inisiasi* ke direktori *heating*.
2. Melakukan modifikasi pada *file SuSi.in* yaitu dengan menaikkan temperatur sistem dari suhu 293,15 menjadi 500 dan memperkecil jumlah konfigurasi dari MAXCON 3.000.000 menjadi MAXCON 1.000.000
3. Menjalankan program MC99 dengan mengetik : **./MC99** ↵
4. Untuk melihat jalannya simulasi dapat dilakukan dengan mengetik : **tail\_–f\_Energies.2b** ↵



Pada tahap pendinginan (*cooling*) dapat ditentukan apakah kondisi kesetimbangan sistem benar-benar mantap. Sistem benar-benar diyakini setimbang jika energi hasil dari tahap pendinginan nilainya relatif sama dengan tahap inisiasi. Langkah-langkah yang perlu dilakukan pada tahap pendinginan adalah sebagai berikut.

1. Memindahkan *file MC99*, *Start.Config* dan *SuSi.in* dari direktori *heating* ke direktori *cooling*.
2. Melakukan modifikasi pada *file SuSi.in* yaitu dengan menurunkan kembali temperatur sistem dari suhu 500 menjadi 293,15 dan memperbesar jumlah konfigurasi dari MAXCON 1.000.000 menjadi MAXCON 3.000.000
3. Menjalankan program MC99 dengan mengetik : `./MC99 ↵`
4. Untuk melihat jalannya simulasi dapat dilakukan dengan mengetik : `tail -f_Energies.2b ↵`

Tahapan terakhir dari simulasi MC adalah tahap pengambilan sampel. Hal yang penting dilakukan dalam tahap pengambilan sampel adalah sebagai berikut.

1. Membuat direktori khusus untuk sampling dengan mengetik : `mkdir_<nama direktori> ↵`.
2. Memindahkan *file MC99*, *Start.Config* dan *SuSi.in* dari direktori *cooling* ke direktori khusus untuk sampling.
3. Melakukan modifikasi pada *file SuSi.in* yaitu dengan mengubah RRAC = 0,5 menjadi RRAC = 0,0 dan WHIS = 0 menjadi WHIS = 2.
4. Menjalankan program MC99 dengan mengetik : `./MC99 ↵`

5. Untuk melihat jalannya simulasi dapat dilakukan dengan mengetik : **tail -f\_Energies.2b** ↵

### 3.3.2.2 Tahap analisis hasil simulasi *Monte Carlo*.

Hasil simulasi yang perlu diperhatikan adalah adalah fungsi distribusi radial (*Radial Distribution Function - RDF*) yang merupakan jarak antar spesi yang saling berinteraksi. Data jarak ini merupakan masukan (*input*) untuk program *MC Simulation Analyzing*. Selain itu diperlukan pula *file History.SuSi*. *File-file* yang berisi FDR yang perlu diperhatikan adalah sebagai berikut.

- RDF.1-O.1-O yang berisi data jarak interaksi O – O dari dua molekul H<sub>2</sub>O.
- RDF.2-Ni.1-O yang berisi data jarak interaksi Ni<sup>2+</sup> – O dari molekul H<sub>2</sub>O.
- RDF.2-Ni.4-N yang berisi data jarak interaksi Ni<sup>2+</sup> – N dari molekul NH<sub>3</sub>.
- RDF.4-N.4-N yang berisi data jarak interaksi N – N dari dua molekul NH<sub>3</sub>.
- RDF.4-N.1-O yang berisi data jarak interaksi N – O dari molekul NH<sub>3</sub> dan H<sub>2</sub>O.

Analisis hasil simulasi MC diperlukan untuk mendapatkan distribusi angka solvasi dari Ni<sup>2+</sup> – H<sub>2</sub>O dan Ni<sup>2+</sup> – NH<sub>3</sub> serta distribusi sudut H<sub>2</sub>O – Ni<sup>2+</sup> – OH<sub>2</sub>, H<sub>3</sub>N – Ni<sup>2+</sup> – NH<sub>3</sub> dan H<sub>2</sub>O – Ni<sup>2+</sup> – NH<sub>3</sub>. Hal yang perlu dilakukan pada analisis hasil simulasi MC adalah sebagai berikut.

- Membuat direktori khusus untuk analisis dengan cara mengetik :  
**mkdir <nama\_direktori>** ↵
- Memindahkan *file* History.SuSi dari direktori *Sampling* ke direktori *Analisis*.
- Modifikasi *file* program utama analisis yaitu *file analisisNiNH3.c* sesuai sistem simulasi.

1. Mendefinisikan sistem simulasi dengan mengisi jumlah spesi interaksi.
  - a. Pada `#define NR_H2O` diisi jumlah molekul H<sub>2</sub>O yang diperlukan untuk simulasi MC.
  - b. Pada `#define NR_NH3` diisi jumlah molekul NH<sub>3</sub> pada simulasi MC.
  - c. Pada `#define NR_Cu` diisi 1 sesuai jumlah molekul Ni pada simulasi MC. Dalam program ini, spesi Ni diwakili oleh spesi Cu.
2. Memodifikasi proses kontrol evaluasi (*controlling evaluation processes*) diantaranya `evcd_1_M1_M2`, `evcd_2_M1_M2` untuk distribusi bilangan koordinasi kulit pertama dan kulit kedua, `evad_1_M1_M2_M3`, `evad_2_M1_M2_M3` untuk distribusi sudut kulit pertama dan kedua, `eve2_1_M1_M2`, `eve2_2_M1_M2` untuk distribusi *pair energy*, `evect2_1_M1`, `evect2_2_M1` untuk energi *cluster* 2 badan disesuaikan dengan sistem. Perubahan yang dilakukan antara lain mengisi angka 1 untuk mengaktifkan kontrol evaluasi dan angka 0 untuk mendeaktifkan kontrol.
  - a. Mengisi nilai `#define evcd_1_Cu_H2O` dengan angka 1
  - b. Mengisi nilai `#define evcd_1_Cu_NH3` dengan angka 1
  - c. Mengisi nilai `#define evcd_2_Cu_H2O` dengan angka 1
  - d. Mengisi nilai `#define evcd_2_Cu_NH3` dengan angka 1
  - e. Mengisi nilai `#define evad_1_H2O_Cu_H2O` dengan angka 1
  - f. Mengisi nilai `#define evad_2_H2O_Cu_H2O` dengan angka 1
  - g. Mengisi nilai `#define evad_1_H2O_Cu_NH3` dengan angka 1

- i. Mengisi nilai `#define evad_1_NH3_Cu_NH3` dengan angka 1
  - j. Mengisi nilai `#define evad_2_NH3_Cu_NH3` dengan angka 1
  - k. Mengisi nilai `#define eve2_1_H2O_H2O` dengan angka 1
  - l. Mengisi nilai `#define eve2_2_H2O_H2O` dengan angka 1
  - m. Mengisi nilai `#define eve2_1_H2O_NH3` dengan angka 1
  - n. Mengisi nilai `#define eve2_2_H2O_NH3` dengan angka 1
  - o. Mengisi nilai `#define eve2_1_H2O_Cu` dengan angka 1
  - p. Mengisi nilai `#define eve2_2_H2O_Cu` dengan angka 1
  - q. Mengisi nilai `#define eve2_1_NH3_NH3` dengan angka 1
  - r. Mengisi nilai `#define eve2_2_NH3_NH3` dengan angka 1
  - s. Mengisi nilai `#define eve2_1_NH3_Cu` dengan angka 1
  - t. Mengisi nilai `#define eve2_2_NH3_Cu` dengan angka 1
3. Mengisi jarak minimum untuk kulit pertama dan kulit kedua dari data fungsi distribusi radial hasil simulasi.
- a. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2\text{O}$  di kulit pertama pada `#define r1_H2O_H2O`
  - b. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{H}_2\text{O} - \text{NH}_3$  di kulit pertama pada `#define r1_H2O_NH3`
  - c. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{H}_2\text{O} - \text{Ni}^{2+}$  di kulit pertama pada `#define r1_H2O_Cu`
  - d. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{NH}_3 - \text{NH}_3$  di kulit pertama pada `#define r1_NH3_NH3`

- e. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{NH}_3 - \text{Ni}^{2+}$  di kulit pertama pada  
#define r1\_NH3\_Cu
  - f. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2\text{O}$  di kulit kedua pada  
#define r2\_H2O\_H2O
  - g. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{H}_2\text{O} - \text{NH}_3$  di kulit kedua pada  
#define r2\_H2O\_NH3
  - h. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{H}_2\text{O} - \text{Ni}^{2+}$  di kulit kedua pada  
#define r2\_H2O\_Cu
  - i. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{NH}_3 - \text{NH}_3$  di kulit kedua pada  
#define r2\_NH3\_NH3
  - j. Mengisi jarak interaksi molekul  $\text{NH}_3 - \text{Ni}^{2+}$  di kulit kedua pada  
#define r2\_NH3\_Cu
4. Mengubah berat molekul spesi yang berinteraksi antara lain pada #define M\_Cu diisikan berat molekul Ni yaitu 58,16.
  5. Mengisi potensial spesi yang berinteraksi yaitu pada POT06 untuk potensial  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$  dan POT36 untuk potensial  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$ .
- iv. Melakukan *compile file analisisNiNH3.c* dengan mengetik perintah :  
cc -lm analisisNiNH3.c -o <nama\_file\_hasil\_kompilasi> ↵.
  - v. Melakukan *running* untuk analisis dengan cara mengetik  
./<nama\_file\_hasil\_kompilasi> ↵.

Analisis hasil simulasi menghasilkan:

- a. fungsi distribusi radial yang merupakan fungsi yang menyatakan kebolehjadian ditemukannya atom yang mengelilingi atom pusat dalam ruang *spheris*,
- b. fungsi distribusi energi interaksi pasangan, merupakan fungsi yang menyatakan energi interaksi antara atom pusat dengan atom yang mengelilingi,
- c. fungsi distribusi sudut ikatan, merupakan fungsi yang menyatakan posisi antara atom yang satu dengan atom yang lain yang mengelilingi atom pusat dan,
- d. fungsi distribusi angka solvasi, merupakan fungsi yang menyatakan jumlah atom yang dapat diikat oleh atom pusat.

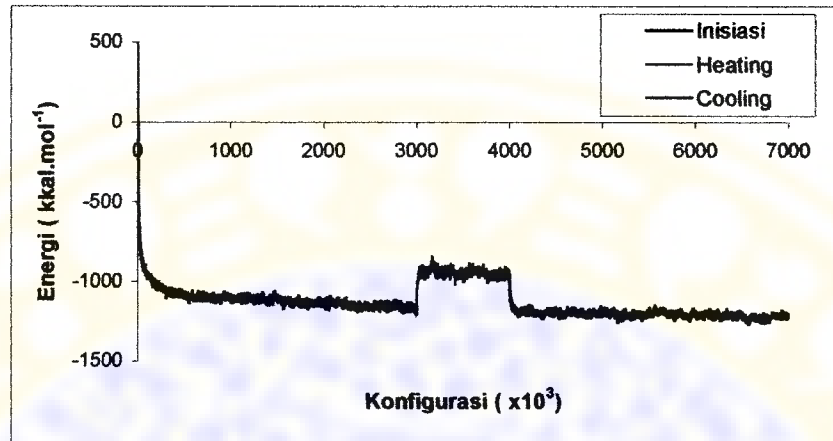
## BAB IV

### HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 4.1 Simulasi Monte Carlo ion $\text{Ni}^{2+}$ dalam Larutan Amonia Pekat

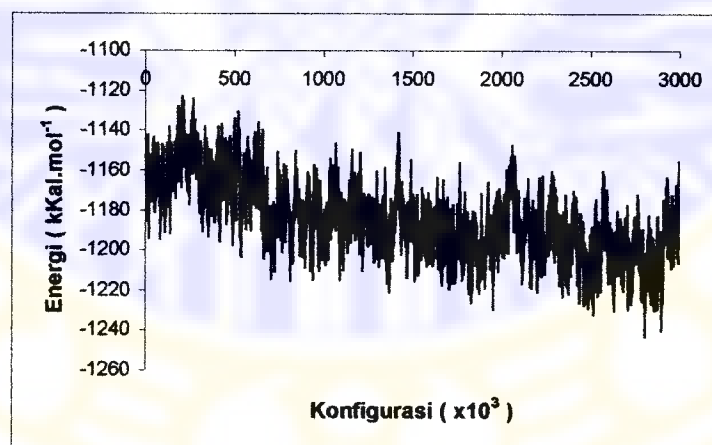
Simulasi MC dalam penelitian ini dilakukan pada suatu kotak simulasi yang berbentuk kubus dengan sistemnya adalah  $\text{Ni}^{2+}$  dalam campuran amonia-air dengan variasi konsentrasi yaitu : 49,76%; 59,72%; 69,67%; dan 79,62%. Jumlah masing-masing spesi seperti yang terlihat pada Tabel 3.6. Simulasi dilakukan pada suhu 293,15 K. Ekstrapolasi pada data eksperimen didapatkan panjang kotak simulasi sebesar 19,201266 Å.

Dalam simulasi MC konfigurasi dibuat secara acak, namun tetap mengacu pada penggunaan prinsip Metropolis sehingga setiap konfigurasi yang akan dibuat akan cenderung untuk mendekati kesetimbangan. Hal ini mempunyai konsekuensi yaitu dibutuhkan jumlah konfigurasi yang cukup banyak. Kondisi setimbang diperoleh apabila energi sistem sudah tidak menampakkan kecenderungan perubahan dan terlihat cukup stabil. Pada awal simulasi, tampak energi sistem bernilai positif dan secara perlahan turun hingga mencapai angka negatif. Penurunan energi sistem akan mencapai titik terendah dan kemudian akan terus stabil dalam arti fluktuasi energi hanya terjadi dalam interval yang sempit atau dapat dikatakan sistem telah mencapai kesetimbangan. Hal ini tampak jelas pada Gambar 8. Kesetimbangan telah dapat dicapai setelah pergerakan mencapai 3.000.000 konfigurasi.



Gambar 8 Fluktuasi energi simulasi MC  $\text{Ni}^{2+}$  dalam amonia 79,62%.

Langkah selanjutnya dalam simulasi MC adalah pemanasan sistem pada suhu 500 K. Hal ini dilakukan untuk menguji kemantapan kondisi kesetimbangan. Kesetimbangan yang mantap dicapai apabila fluktuasi energi sistem pada tahap pendinginan cenderung tetap atau relatif kecil. Setelah didapatkan sistem yang setimbang, langkah selanjutnya adalah penarikan sifat-sifat sistem yang diinginkan dengan cara pengambilan sampel sejumlah 3.000.000 konfigurasi. Pada Gambar 9, pengambilan sampel dilakukan pada kisaran energi  $-1.110$  sampai  $-1.200 \text{ kKcal.mol}^{-1}$ .



Gambar 9. Profil energi sistem saat simulasi MC tahap pengambilan sampel



## 4.2 Analisis Hasil Simulasi

Hasil dari simulasi MC dengan sistem 1 ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam 210 campuran amonia dan air pada konsentrasi 49,76%; 59,72%; 69,67%; dan 79,62% dengan temperatur 293,15 K dapat dianalisis dari fungsi distribusi radial, distribusi angka solvasi, dan distribusi sudut.

### 4.2.1 Analisis fungsi distribusi radial.

Fungsi distribusi radial merupakan jarak antar spesi yang berinteraksi. Dari simulasi MC dihasilkan beberapa fungsi distribusi radial sebagai berikut.

- a. RDF.1-CoM.1-CoM: jarak interaksi antara pusat massa dua  $\text{H}_2\text{O}$ .
- b. RDF.1-O.1-O: jarak interaksi antara atom O dari dua  $\text{H}_2\text{O}$ .
- c. RDF.2-Ni.1-CoM: jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan pusat massa molekul  $\text{H}_2\text{O}$ .
- d. RDF.2-Ni.1-O: jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom O dari  $\text{H}_2\text{O}$ .
- e. RDF.2-Ni.4-CoM: jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan pusat massa  $\text{NH}_3$ .
- f. RDF.2-Ni.4-N: jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dari  $\text{NH}_3$ .
- g. RDF.4-CoM.1-CoM: jarak interaksi pusat massa  $\text{NH}_3$  dan pusat massa  $\text{H}_2\text{O}$ .
- h. RDF.4-CoM.4-CoM: jarak interaksi pusat massa dua molekul  $\text{NH}_3$ .
- i. RDF.4-N.1-O: jarak interaksi atom N dari  $\text{NH}_3$  dan atom O dari  $\text{H}_2\text{O}$ .
- j. RDF.4-N.4-N: jarak interaksi dua atom N dari  $\text{NH}_3$ .
- k. RDFs.1-1O.1-2H: jarak interaksi atom O dan H dari  $\text{H}_2\text{O}$ .
- l. RDFs.1-1O.4-3H: jarak interaksi atom O dari  $\text{H}_2\text{O}$  dan H dari  $\text{NH}_3$ .
- m. RDFs.1-2H.1-2H: jarak interaksi dua atom H dari  $\text{H}_2\text{O}$ .
- n. RDFs.2-1Ni.1-2H: jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom H dari  $\text{H}_2\text{O}$ .
- o. RDFs.2-1Ni.4-3H: jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom H dari  $\text{NH}_3$ .

- p. RDFs.4-1N.1-2H : jarak interaksi atom N dari  $\text{NH}_3$  dan atom H dari  $\text{H}_2\text{O}$ .
- q. RDFs.4-1N.4-3H : jarak interaksi atom N dan H dari  $\text{NH}_3$ .
- r. RDFs.4-3H.1-2H : jarak interaksi atom H dari  $\text{NH}_3$  dan atom H dari  $\text{H}_2\text{O}$ .
- s. RDFs.4-3H.4-3H : jarak interaksi dua atom H dari  $\text{NH}_3$ .

Dari sekian banyak data fungsi distribusi radial, hanya 4 fungsi distribusi radial yang digunakan untuk menganalisis struktur.

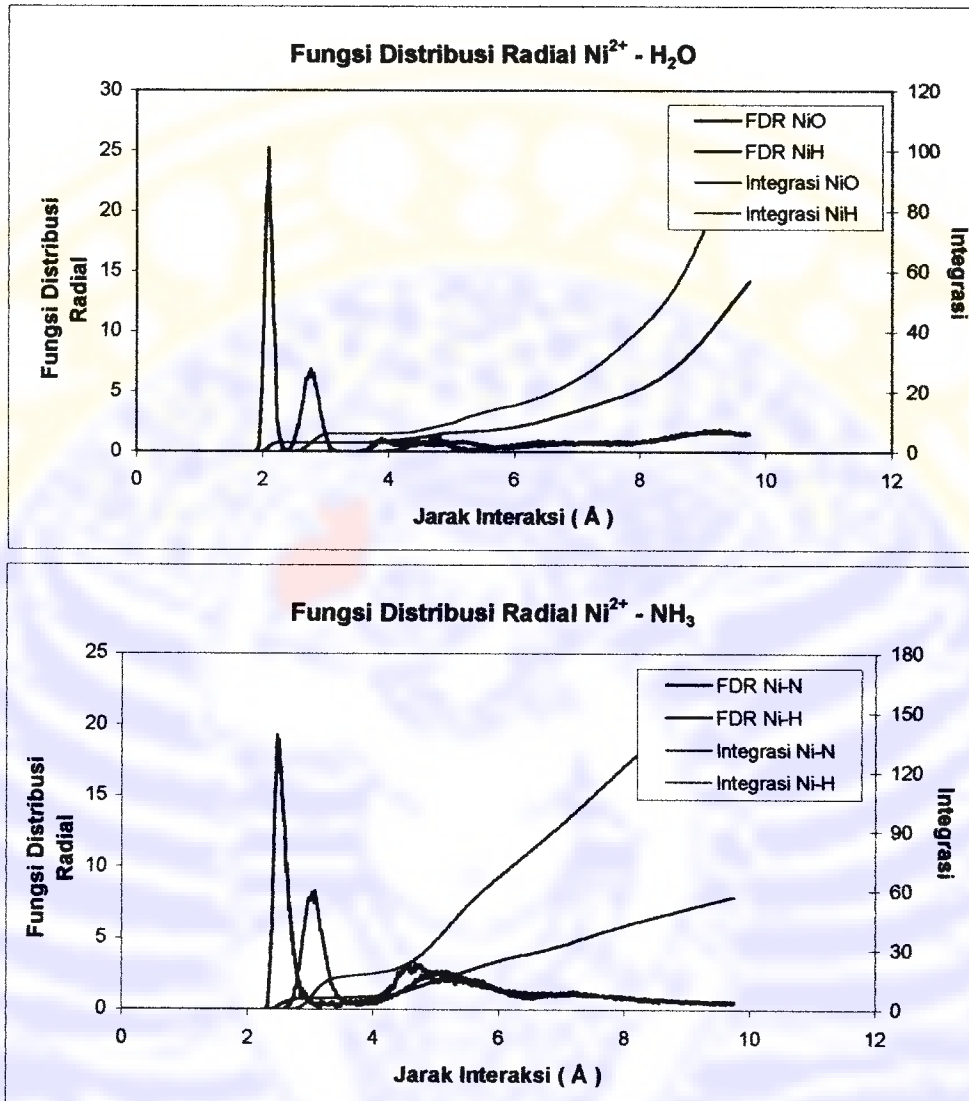
1. RDF.2-Ni.4-N
2. RDF.2-Ni.1-O
3. RDFs.2-1Ni.1-2H
4. RDFs.2-1Ni.4-3H

Data fungsi distribusi radial yang lain digunakan untuk melengkapi analisis sehingga akan didapatkan struktur yang lebih akurat dan tepat.

Berdasarkan RDF.2-Ni.1-O dan RDFs.2-1Ni.1-2H dapat dianalisis mengenai jarak interaksi antara ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom O dan H dari  $\text{H}_2\text{O}$ . RDF.2-Ni.4-N dan RDFs.2-1Ni.4-3H diperlukan untuk menganalisis jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dan H dari  $\text{NH}_3$ .

Pada amonia 49,76%, jarak antara ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom O dan H dari  $\text{H}_2\text{O}$  di kulit pertama adalah sebesar 2,076 Å dan 2,760 Å. Di kulit kedua, sebesar 4,752 Å dan 5,112 Å.

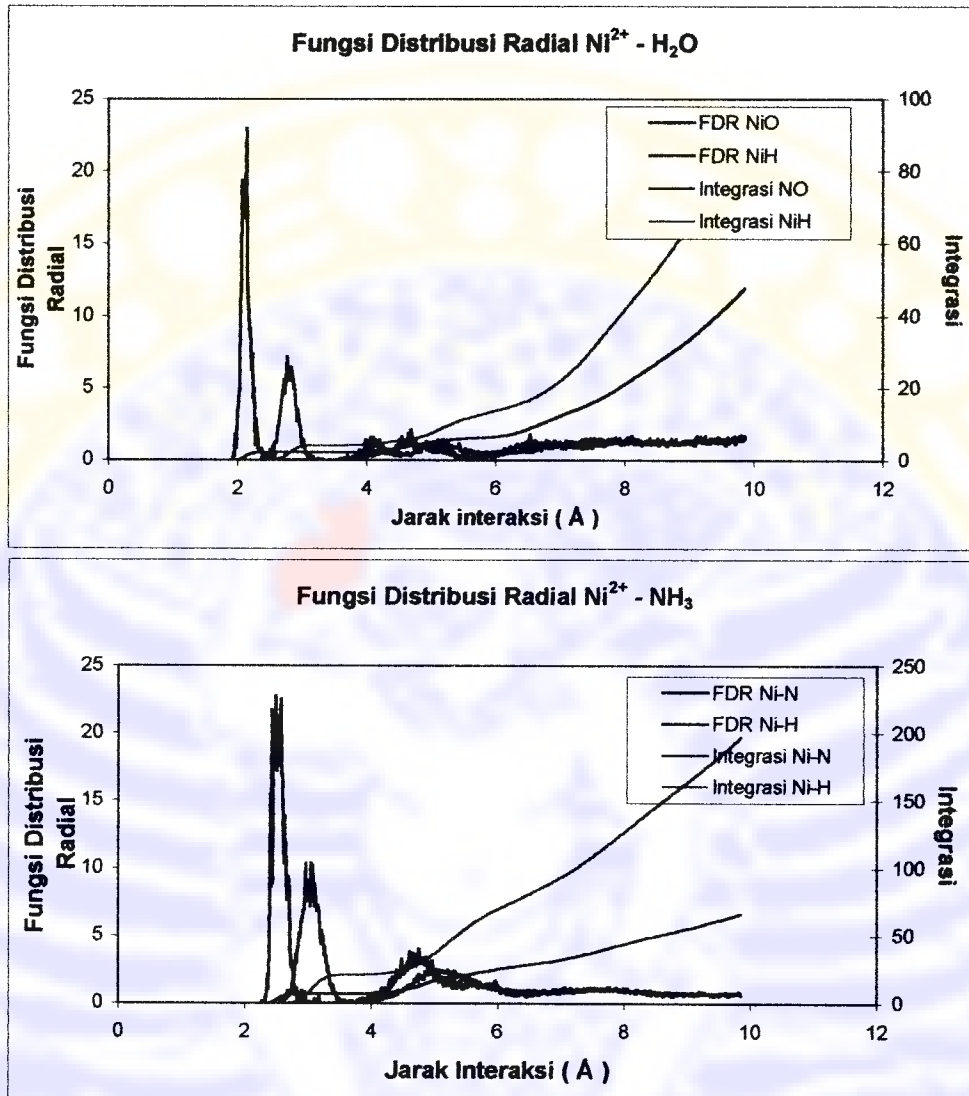
Jarak ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dan H dari  $\text{NH}_3$  di kulit pertama sebesar 2,460 Å dan 3,072 Å. Di kulit kedua, sebesar 4,680 Å dan 5,160 Å. Hal ini dapat dilihat pada Gambar 10 dibawah ini:



Gambar 10 Fungsi distribusi radial pada konsentrasi amonia 49,76%

Pada amonia 59,72%, jarak antara ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom O dan H dari  $\text{H}_2\text{O}$  di kulit pertama adalah sebesar 2,136 Å dan 2,760 Å. Jarak antara ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom O dan H dari  $\text{H}_2\text{O}$  di kulit kedua adalah sebesar 4,644 Å dan 5,100 Å.

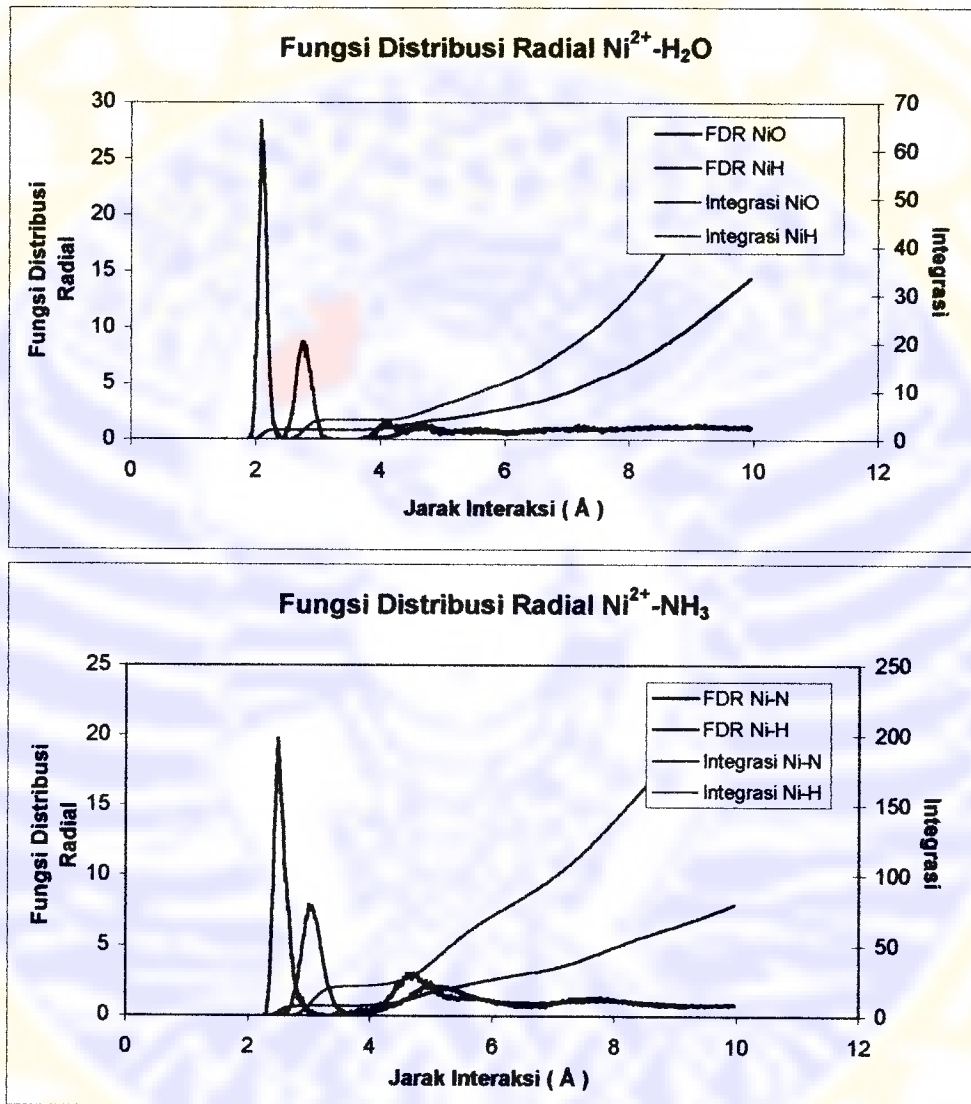
Jarak ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dan H dari  $\text{NH}_3$  di kulit pertama sebesar 2,484 Å dan 3,048 Å. Di kulit kedua, jarak ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dan H dari  $\text{NH}_3$  sebesar 4,752 Å dan 5,112 Å. Hal ini seperti yang tersaji pada Gambar 11.



Gambar 11 Fungsi distribusi radial pada konsentrasi amonia 59,72%

Pada amonia 69,67% yang ditunjukkan pada Gambar 12 jarak antara ion Ni<sup>2+</sup> dengan atom O dan H dari H<sub>2</sub>O di kulit pertama adalah sebesar 2,088 Å dan 2,748 Å. Jarak ion Ni<sup>2+</sup> dengan atom O dan H dari H<sub>2</sub>O di kulit kedua adalah sebesar 4,608 Å dan 5,064 Å.

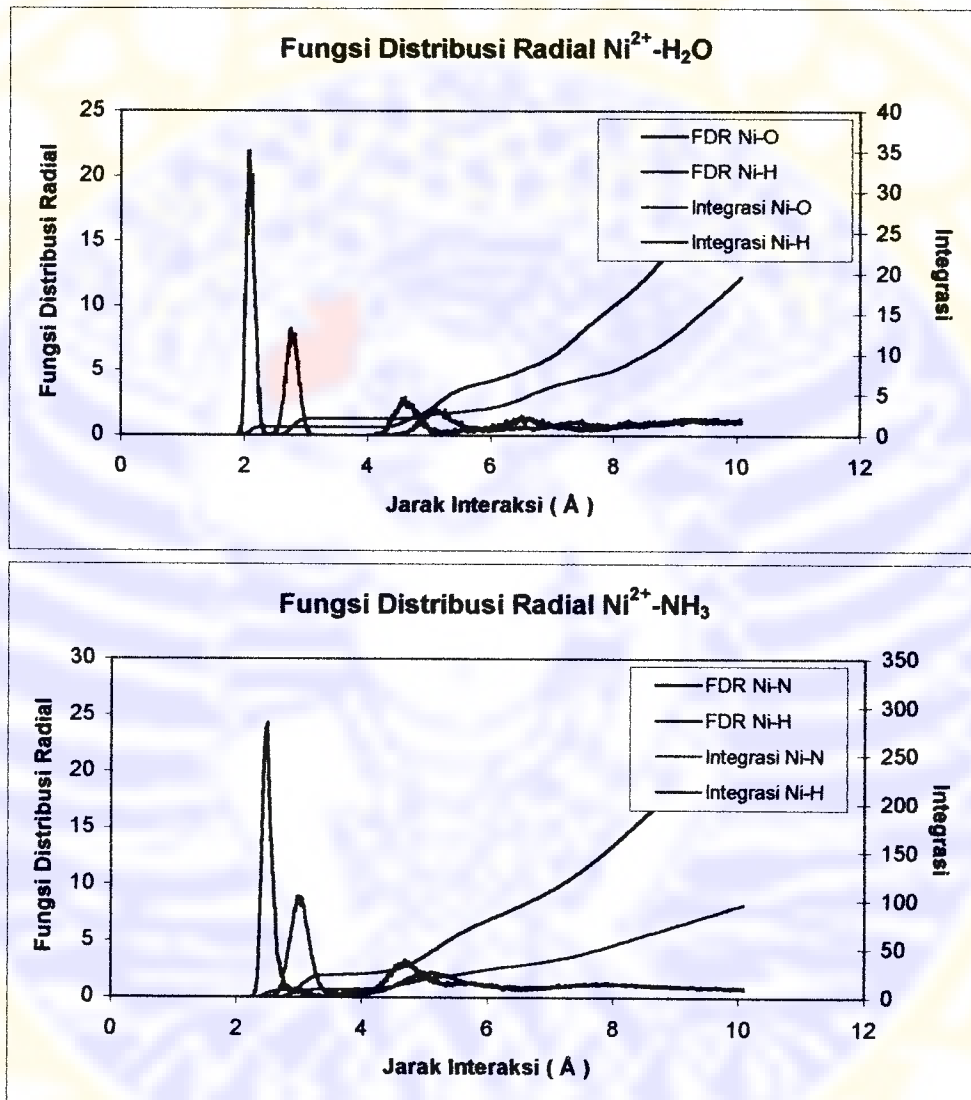
Jarak ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dan H dari  $\text{NH}_3$  di kulit pertama seperti terlihat pada Gambar 12 sebesar 2,484 Å dan 2,988 Å. Di kulit kedua, jarak ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dan H dari  $\text{NH}_3$  sebesar 4,728 Å dan 5,040 Å.



Gambar 12 Fungsi distribusi radial pada konsentrasi amonia 69,67%

Pada amonia 79,62%, seperti yang tersaji di Gambar 13 jarak antara ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom O dan H dari  $\text{H}_2\text{O}$  di kulit pertama adalah sebesar 2,076 Å dan 2,760 Å. Di kulit kedua sebesar 4,608 Å dan 5,100 Å.

Jarak ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dan H dari  $\text{NH}_3$  di kulit pertama adalah sebesar 2,484Å dan 2,988Å. Jarak ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan atom N dan H dari  $\text{NH}_3$  di kulit kedua adalah sebesar 4,728Å dan 5,148Å.



Gambar 13 Fungsi distribusi radial pada konsentrasi amonia 79,62%

Data selengkapnya mengenai jarak interaksi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan molekul  $\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{NH}_3$  dapat dilihat pada Tabel 4.1 di bawah ini.

**Tabel 4.1** Jarak interaksi  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$  di kulit pertama dan kedua

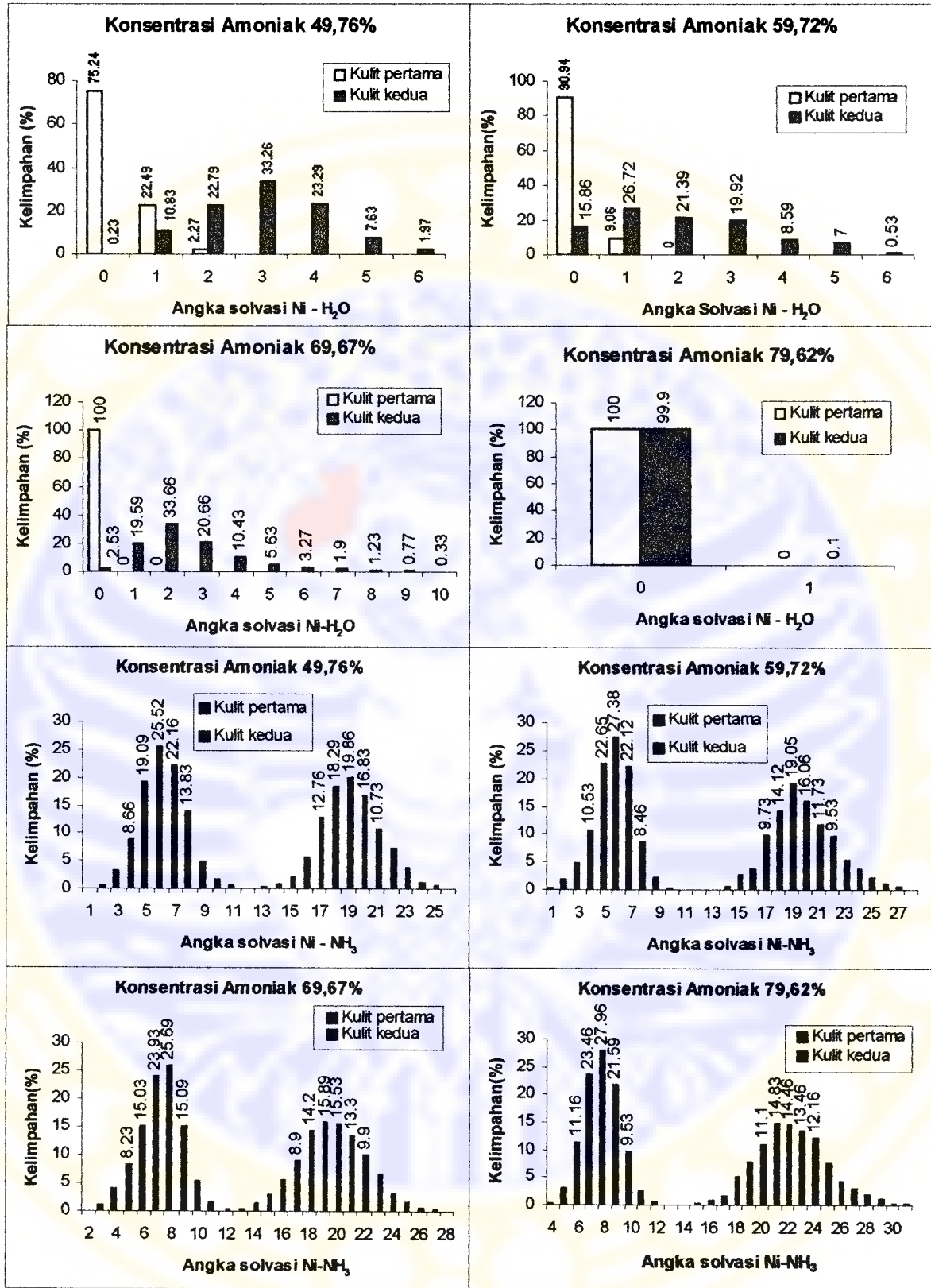
Interaksi	Jarak Interaksi (Å) $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$ dan $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$							
	49,76 %		59,72 %		69,67 %		79,62 %	
	Kulit 1	Kulit 2	Kulit 1	Kulit 2	Kulit 1	Kulit 2	Kulit 1	Kulit 2
Ni - $\text{H}_2\text{O}$								
O	2,076	4,680	2,136	4,644	2,088	4,608	2,076	4,608
H	2,760	5,112	2,760	5,100	2,748	5,064	2,760	5,100
Ni - $\text{NH}_3$								
N	2,460	4,680	2,484	4,752	2,484	4,728	2,484	4,728
H	3,072	5,160	3,048	5,112	2,988	5,040	2,988	5,148

#### 4.2.2 Analisis distribusi angka solvasi.

Angka solvasi pada interaksi  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$  tanpa melibatkan potensial badan tiga menghasilkan nilai sebesar 8 (Inada et.al, 2002), sementara untuk interaksi  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$  menghasilkan nilai sebesar 9 (Qurrachman, 2005). Pada penelitian ini, dengan memperlakukan 1 ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam pelarut campuran  $\text{NH}_3$  dan  $\text{H}_2\text{O}$  dengan berbagai konsentrasi yaitu  $\text{NH}_3$  49,76%;  $\text{NH}_3$  59,72%;  $\text{NH}_3$  69,67%; dan  $\text{NH}_3$  79,62% dihasilkan bilangan koordinasi seperti yang terlihat pada Tabel 4.2, Gambar 14.

**Tabel 4.2** Distribusi angka solvasi Ni -  $\text{H}_2\text{O}$  dan Ni -  $\text{NH}_3$  di kulit pertama dan kedua hasil analisis MC.

Spesi	Angka solvasi							
	49,76%		59,72%		69,67%		79,62%	
	Kulit 1	Kulit 2	Kulit 1	Kulit 2	Kulit 1	Kulit 2	Kulit 1	Kulit 2
Ni - $\text{H}_2\text{O}$	0	3	0	1	0	2	0	0
Ni - $\text{NH}_3$	6	19	6	19	8	19	8	21



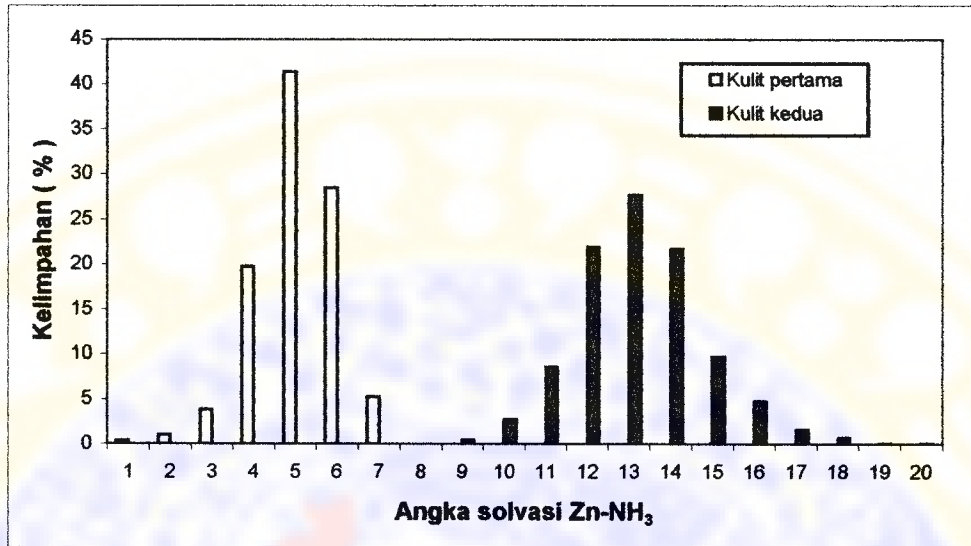
Gambar 14 Distribusi angka solvasi Ni<sup>2+</sup> – H<sub>2</sub>O dan Ni<sup>2+</sup> – NH<sub>3</sub> hasil analisis MC



Dari penelitian ini, diketahui bahwa pada konsentrasi amonia di atas 50% belum ada molekul H<sub>2</sub>O yang mensolvasi ion Ni<sup>2+</sup> pada kulit pertama. Hal ini diketahui dari Gambar 14 yang menunjukkan angka solvasi Ni-H<sub>2</sub>O bernilai 0 dengan kelimpahan 75,24% (49,76%); 90,94% (59,72%); 100% (69,67%) dan 100% (79,62%). Di kulit kedua, jumlah air yang mensolvasi ion Ni<sup>2+</sup> juga sangat kecil yaitu 3 (33,66%) pada konsentrasi amonia 49,76%; 1 (26,72%) pada konsentrasi amonia 59,72%; 2 (33,66%) pada konsentrasi amonia 69,67% dan 0 (99,90%) pada konsentrasi amonia 79,62%.

Angka solvasi untuk interaksi Ni - NH<sub>3</sub> di kulit pertama adalah 6 (25,52%) pada konsentrasi amonia 49,76%; 6 (27,38%) pada konsentrasi amonia 59,72%; 8 (25,69%) pada konsentrasi amonia 69,67% dan 8 (27,96%) pada konsentrasi amonia 79,62%.

Selain angka solvasi Ni - NH<sub>3</sub> yang tertulis pada Tabel 4.2, ada beberapa angka solvasi dengan kelimpahan yang cukup tinggi dan adanya tumpang tindih angka solvasi di kulit pertama dan kulit kedua mengindikasikan kemudahan terjadinya pertukaran ligan dari kulit pertama dan kulit kedua. Hal ini menunjukkan kurang stabilnya ikatan antara Ni - NH<sub>3</sub>. Kekurangan tersebut dapat dikurangi dengan menyertakan *three-body potential* sebagai *input* simulasi MC. Dengan adanya *three-body potential* akan mengurangi kuatnya interaksi tarikan potensial pasangan ion Ni<sup>2+</sup> terhadap ligan, seperti yang ditunjukkan pada hasil simulasi Zn<sup>2+</sup> dalam campuran amonia - air pada Gambar 15.



Gambar 15. Distribusi angka solvasi  $Zn^{2+} - NH_3$  (Barroroh, 2003)

Dengan penyertaan potensial badan tiga, batas angka solvasi pada kulit pertama dan kulit kedua terlihat dengan jelas. Selain itu diharapkan didapat satu angka solvasi dengan kelimpahan yang cukup tinggi.

#### 4.2.3 Analisis distribusi sudut.

Distribusi sudut merupakan hasil simulasi yang berisi sudut antar spesi yang berinteraksi. Pada sistem ion  $Ni^{2+}$  dalam campuran amonia – air didapatkan tiga distribusi sudut, yaitu distribusi sudut  $H_2O - Ni^{2+} - OH_2$ , sudut  $H_2O - Ni^{2+} - NH_3$  dan sudut  $H_3N - Ni^{2+} - NH_3$ .

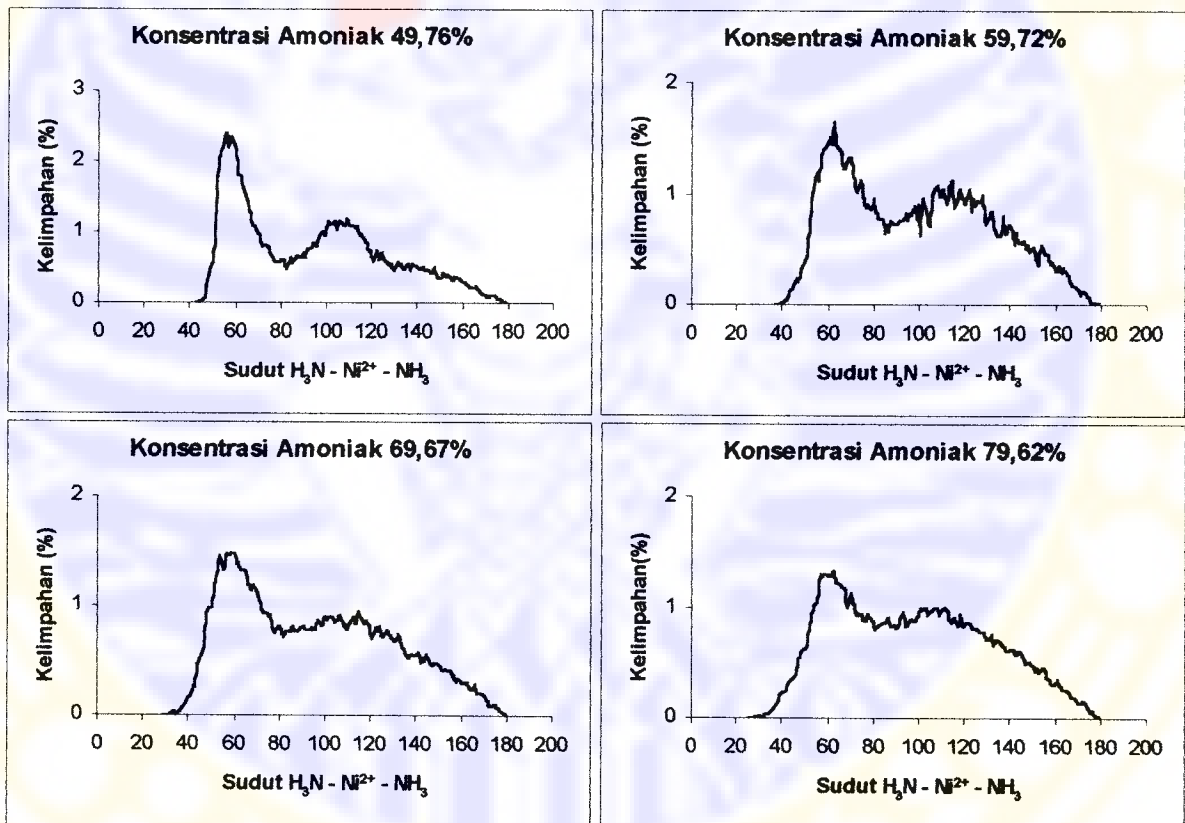
Analisis distribusi sudut diperlukan untuk memperkirakan struktur statis dari interaksi ion  $Ni^{2+}$  dalam pelarut amonia – air di kulit pertama. Dari 4 variasi konsentrasi didapatkan dua puncak yang hampir sama yaitu pada sekitar  $60^\circ$  dan  $110^\circ$ . Dari data ini, dapat diperkirakan dengan kuat bahwa sudut antara  $H_3N -$

$\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$  adalah sebesar  $60^\circ$  dan  $110^\circ$ . Hasil analisis distribusi sudut  $\text{H}_3\text{N} - \text{Ni}^{2+}$

$- \text{NH}_3$  dapat dilihat pada Tabel 4.3 dan Gambar 16.

**Tabel 4.3** Distribusi sudut  $\text{H}_3\text{N} - \text{Ni} - \text{NH}_3$  di kulit pertama hasil analisis MC.

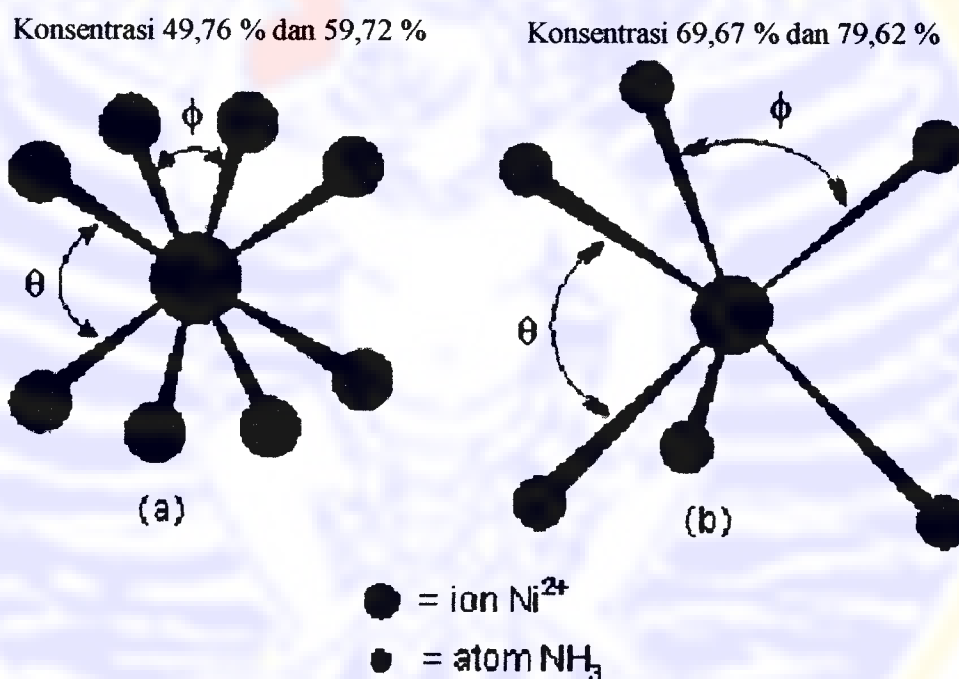
Konsentrasi	Sudut ( $^\circ$ )	
	$\phi$	$\theta$
49,76 %	56	109
59,72%	63	113
69,67%	57	115
79,62%	63	111



**Gambar 16** Fungsi distribusi sudut  $\text{H}_3\text{N} - \text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$  hasil analisis MC

### 4.3 Struktur Statis Ion $\text{Ni}^{2+}$ dalam Amonia Pekat

Dari beberapa variasi konsentrasi amonia dalam air yang dilakukan dalam penelitian ini, didapatkan 2 bilangan koordinasi yaitu 6 dan 8. Berdasarkan analisis distribusi sudut, dapat diperkirakan untuk ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan bilangan koordinasi 8 strukturnya adalah segiempat antipiramida. Sedangkan untuk ion  $\text{Ni}^{2+}$  dengan bilangan koordinasi 6, strukturnya adalah segitiga antipiramida. Untuk lebih jelasnya dapat dilihat pada Gambar 17 di bawah ini.



Gambar 17 Struktur  $\text{Ni}^{2+}$  dalam amonia pekat (a) Segiempat antipiramida (b) Segitiga antipiramida

Pada konsentrasi  $\text{NH}_3$  79,62% dan 69,67%, jumlah molekul yang mensolvasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  sebesar 8 buah. Pada konsentrasi yang lebih rendah, yaitu  $\text{NH}_3$  59,72% dan 49,76%, jumlah ligan yang mensolvasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  berkurang

menjadi 6. Hal ini dikarenakan pada konsentrasi 79,62% dan 69,67%, jumlah molekul H<sub>2</sub>O yang terdapat dalam sistem simulasi terlalu sedikit sehingga dibandingkan dengan jumlah molekul H<sub>2</sub>O pada konsentrasi NH<sub>3</sub> 59,72% dan 49,76%. Dengan bertambahnya molekul H<sub>2</sub>O akan mengurangi energi tarikan ion Ni<sup>2+</sup> pada molekul NH<sub>3</sub>, karena atom O mempunyai keelektronegatifan lebih besar daripada atom N. Hal ini menciptakan sebuah halangan ruang bagi molekul NH<sub>3</sub> yang akan mensolvasi ion Ni<sup>2+</sup> sehingga mengurangi jumlah molekul NH<sub>3</sub> yang mensolvasi ion Ni<sup>2+</sup>.

## BAB V

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 5.1 Kesimpulan

Simulasi *Monte Carlo* ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam amonia pekat dengan variasi konsentrasi 49,76%, 59,72%, 69,67% dan 72,62% telah dilakukan pada suhu 293,15 K pada kotak simulasi dengan panjang 19.201266 Å dan densitas sistem yang disesuaikan dengan konsentrasi. Dari hasil simulasi dan analisis MC dapat disimpulkan sebagai berikut.

1. Pada kulit solvasi pertama ion  $\text{Ni}^{2+}$  dikelilingi oleh 6 molekul  $\text{NH}_3$  pada konsentrasi 49,76% dan 59,72%; serta 8 molekul  $\text{NH}_3$  pada konsentrasi 69,67% dan 79,62%. Molekul  $\text{H}_2\text{O}$  tidak mensolvasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  konsentrasi diatas 49,76%. Pada kulit solvasi kedua ion  $\text{Ni}^{2+}$  dikelilingi oleh molekul  $\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{NH}_3$  berturut-turut sebanyak 3 dan 18; 1 dan 19, 2 dan 19 serta 0 dan 21 pada konsentrasi 49,76%, 59,72%, 69,67% dan 72,62%.
2. Terdapat perbedaan struktur solvasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam amonia pekat yaitu segitiga antipiramida untuk konsentrasi 49,76% dan 59,72% serta segiempat antipiramida untuk konsentrasi 69,67% dan 79,62%.

#### 5.2 Saran

Berdasarkan metode difraksi sinar X dan *Extended X-ray Absorption Fine Structure-EXAFS* (Ohtaki dan Radnai, 1993), bilangan koordinasi ion  $\text{Ni}^{2+}$  sebesar 6. Adanya ketidaksesuaian hasil simulasi MC dengan metode eksperimen

disebabkan oleh penggunaan potensial pasangan sebagai *input*. Ketidaksesuaian ini dapat dikoreksi dengan menyertakan potensial badan banyak (*many body potential*) atau setidaknya potensial badan tiga untuk mendapatkan hasil yang lebih sempurna.

## DAFTAR PUSTAKA

- Arindah, T., 2000, *Penentuan Struktur Solvasi Ion Ni<sup>2+</sup> di dalam Air dengan Metoda Monte Carlo*, Tesis, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, Indonesia
- Armunanto, R., 2000, *Simulasi Monte Carlo Sistem Co<sup>2+</sup> – H<sub>2</sub>O*, Tesis, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, Indonesia
- Barroroh, H., 2003, *Simulasi Monte Carlo Sistem Zn<sup>2+</sup> dalam Campuran Amoniak-Air*, Tesis, Jurusan Kimia, FMIPA UGM, Yogyakarta.
- Bounds, D.G., 1985, *Mol.Phys.*, 54, 1335
- Camunite, R.; Licheri, G.; Piccaluga, G.; Pinna, G.; 1977, *Chem. Phys.Lett.*, 47, 275
- Ethica, S. N., 2002, *Simulasi Monte Carlo Co(II) dalam Air Melibatkan Potensial Badan Tiga*, Tesis, Jurusan Kimia, FMIPA UGM, Yogyakarta.
- Ferrario, M., Haughney, M.H., Mc. Donald, I.R., Klein, M.L., 1990, *J.Chem.Phys.*, 93, 5156
- Hannongbua, S., 1998, **On the Solvation of Lithium Ion in Liquid Ammonia : Monte Carlo Simulation with a Three Body Potential**, *Chem. Phys.Lett.*, 188, 633
- Hannongbua, S., Kerdcharoen, T., and Rode, B.M., 1992, **Zinc(II) in Liquid Ammonia : Intermolecular Potential Including 3-Body Terms and Monte Carlo Simulation**, *J.Chem.Phys.*, 96, 6945
- Hannongbua, S., Rode, B.M., 1997, **The Role of Non-additive Effect in the First Solvation Shell of Na(I) and Mg(II) in Liquid Ammonia: Monte Carlo Studies Including Three Body Corrections**, *J.Chem.Phys.*, 106, 6076
- Inada Y.; Mohammed A.M.; Loeffler H.H.; Rode B.M., 2002, **Hydration Structure And Water Exchange Reaction Of Nickel (II) Ion: Classical And QM/MM Simulations**, *J. Phys. Chem., A.*, 106, 6783-6791.
- Inada, Y.; Hagashi, H.; Sugimoto, K.; Funahashi, S., 1999, **Solvation Structure Of Mg(II), Fe(II), Co(II), Ni(II), Zn(II) And Ga(III) Ions In Methanol, Ethanol, Dimethyl Sulfoxide An Trimethyl Phosphat As Study By EXAFS**, *J.Phys.Chem.*, 103, 1401-1406



- Jansco, G., Heinzinger, K., Bopp, P., 1985, *Molecular Dynamics Study of the Effect of Pressure on Aqueous NaCl Solution*, *Z.Naturforsch* 40a, 1235.
- Kihara, T., 1978, *Intermolecular Force*, John Wiley and Sons, Chichester
- Kistenmacher, H., Popkie, H., Clementi, E., 1974, **Study of The Structure of Molecular Complexes. VIII. Small Cluster of Water Molecules Surrounding  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{F}^-$ , and  $\text{Cl}^-$  Ions**, *J.Chem.Phys.*, 61, 799-815
- Kusumawardani, C., 2002, *Solvasi Ion  $\text{Co}^{2+}$  Dalam Amoniak Cair Dengan Menyertakan Koreksi Badan Tiga*, Tesis, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, Indonesia
- Lafont, A.G.; Lluch, J.M.; Oliva, A.; Bertran, J., 1987, *J.Chem.Phys.*, 111, 2319
- Leach, A. R., 1996, *Molecular Modelling*, Longman Singapore Publishers Ltd., Singapore
- Marcus, Y., 1977, *Introduction to Liquid State Chemistry*, John Wiley & Sons, Chichester
- Marini, G., Texler, N. R., Rode, B. M., 1996, **Monte Carlo Simulation Of Zn(II) In Water Including Three Body Effect**, *J.Chem.Phys.*, 100, 6808-6813
- Metropolis, N., Rosenbluth, A.W., Rosenbluth, M.N., Teller, A.H., Teller, E., 1953, **Equation of State Calculations by Fast Computing Machines**, *J.Chem.Phys.*, vol.21, n.6, pp. 1087-1092
- Millero, F.J., 1979, *Activity Coefficients in Electrolyte Solution*, Pytkowicz, R.M.(eds.) CRC Press, Boca Raton
- Ohtaki, H.; Radnai, T., 1993, **Structure and Dynamic of Hydrated Ions**, *Chem.Rev.*, 93, 1157
- Okazaki, S., K. Nakanishi and H. Touhara, 1983, **Computer Experiments On Aqueous Solution. I. Monte Carlo Calculation On The Hydration Of Methanol In An Infinitely Dilute Aqueous With A New Water-Methanol Pair Potential**, *J.Chem.Phys.* 78, 454 – 469
- Pranowo, H. D., Rode, B. M., 1999, **Solvation Of  $\text{Cu}^{2+}$  In Liquid Ammonia: Monte Carlo Simulation Including Three-Body Correction Terms**, *J. Phys. Chem., A.*, 103, 11115-111120.
- Pranowo, H. D., Setiaji, A. H., Rode, B. M., 1999,  **$\text{Cu}^+$  In Liquid Ammonia And In Water: Intermolecular Potential And Monte Carlo Simulation**, *J. Phys. Chem. A.*, 103, 11115-111120.

- Pranowo, H.D.; Rode, B.M., 2001, **Preferential Cu<sup>2+</sup> Solvation In Aqueous Ammonia Solution Of Various Concentrations**, *J.Chem.Phys.*, 263, 1-6
- Qurrachman, T., 2005, *Simulasi Monte Carlo untuk penentuan struktur ion Ni<sup>2+</sup> dalam amoniak melibatkan potensial badan dua*, Skripsi, Jurusan Kimia, Universitas Airlangga.
- Rode, B.M., Heinzle, M.G., 1995, *Monte Carlo Simulation L.1.2*, Innsbruck University, Innsbruck
- Schwenk, C., 2004, *Personal Communication*, 5 Desember 2004, Laboratory Inorganic Chemistry, Innsbruck University, Austria
- Tanabe, Y., Rode, B.M., 1988, **Monte Carlo Simulation Of An 18,45 Mol % Aqueous Ammonia Solution**, *J.Chem.Soc.Faraday Trans.*, 84(2), 679
- Tanabe, Y., Rode, B.M., 1988, **Simulation Of Preferential Cation Solvation In Aqueous Ammonia**, *J.Chem.Soc.Faraday Trans.*, (2), 1779 – 1788
- Texler, N.R., 1995, *MC Simulation Analizing Program*, Innsbruck University, Innsbruck
- Texler, N.R.; Rode, B.M., 1995, **Monte Carlo Simulation Of Cu(II) In Water With Three Body Potential**, *J.Chem.Phys.*, 99, 15714
- Tongraar, A., Liedl, K.R., Rode, B.M., 1998, **Born-Oppenheimer Ab-Initio QM/MM Dynamics Simulation Of Na<sup>+</sup> And K<sup>+</sup> In Water; From Structure Making To Structure Breaking Effects**, *J.Phys.Chem., A.*, 102, 10340-10347
- Vaisman, I.I, Berkowitz, M.L., 1992, **Local Structure Order And Molecular Associations In Water-DMSO Mixtures; MD Study**, *J.Am.Chem.Soc.*, 114, 7889 – 7896
- Vizoso, S., Heinzle, M.G., Rode, B.M., 1994, **Hydroxylamine-Water: Intermolecular Potential Function And Simulation Of Hydrated NH<sub>2</sub>OH**, *J.Chem.Soc.Faraday Trans.*, 90, 2337 – 2344
- Yongyos, Y.P.; Kokpol, S.; Rode, B.M., 1991, **Zinc Ion In Water: Intermolecular Potential With Approximate Three Body Correction And Monte Carlo Simulation**, *J.Chem.Phys.*, 156, 403

**Lampiran 1. Potensial interaksi pelarut – pelarut.**

- **Potensial pasangan H<sub>2</sub>O – H<sub>2</sub>O (Jansco *et al*, 1985)**

$$V_{2b} = V_{\text{Coulomb}} + V_{\text{OO}} + V_{\text{OH}} + V_{\text{HH}}$$

$$V_{\text{Coulomb}} = \frac{q_{\text{O}}q_{\text{O}}}{r_{\text{OO}}} + \frac{q_{\text{O}}q_{\text{H}}}{r_{\text{OH}}} + \frac{q_{\text{H}}q_{\text{H}}}{r_{\text{HH}}}$$

$$V_{\text{OO}} = A_1 \left\{ \frac{A_2}{r_{\text{OO}}} + \frac{A_3}{r_{\text{OO}}^4} - A_5 \left[ \exp\left(A_6 (r_{\text{OO}} - A_7)^2\right) + \exp\left(A_8 (r_{\text{OO}} - A_9)^2\right) \right] \right\}$$

$$V_{\text{OH}} = A_1 \left\{ \frac{A_{10}}{r_{\text{OH}}} - A_{11} r_{\text{OH}}^{12} - \frac{A_{13}}{\left[1 + \exp\left(A_{14} (r_{\text{OH}} - A_{15})\right)\right]} - \frac{A_{16}}{\left[1 + \exp\left(A_{17} (r_{\text{OH}} - A_{18})\right)\right]} \right\}$$

$$V_{\text{HH}} = A_1 \left\{ \frac{A_{19}}{r_{\text{HH}}} + \frac{A_{20}}{\left[1 + \exp\left(A_{21} (r_{\text{HH}} - A_{22})\right)\right]} \right\}$$

**Parameter potensial pasangan H<sub>2</sub>O – H<sub>2</sub>O**

$A_1 = 60,2718$	$A_7 = 3,4$	$A_{13} = 9,997$	$A_{19} = 2,509$
$A_2 = 144,629$	$A_8 = -1,5$	$A_{14} = 40,0$	$A_{20} = 100,218$
$A_3 = 26765,047$	$A_9 = 4,5$	$A_{15} = 1,05$	$A_{21} = 29,9$
$A_4 = 8,86$	$A_{10} = -5,019$	$A_{16} = 4,005$	$A_{22} = 1,968$
$A_5 = 0,250$	$A_{11} = 6,237$	$A_{17} = 5,493$	$Q_{\text{O}} = -0,6598$
$A_6 = -4,0$	$A_{12} = 9,2$	$A_{18} = 2,2$	$Q_{\text{H}} = 0,3299$

- **Potensial pasangan NH<sub>3</sub> – NH<sub>3</sub> (Hannongbua *et al*, 1992)**

$$V_{\text{NN}} = \frac{213,74}{r_{\text{NN}}} + \frac{802340,66}{r_{\text{NN}}^{12}} - \frac{195,88}{r_{\text{NN}}^6}$$

$$V_{\text{NH}} = \frac{-71,24}{r_{\text{NH}}} + 0,15007 \left\{ \exp[-4,6(r_{\text{NH}} - 2,4)] - 0,003 \exp[-2,3(r_{\text{NH}} - 2,4)] \right\}$$

$$V_{\text{HH}} = \frac{23,75}{r_{\text{HH}}} + 700,32 \exp(-3,7r) \dots\dots\dots 3.2$$

**Lampiran 2. Potensial interaksi ion – pelarut**

- **Potensial pasangan  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$  (Inada *et al*, 2002).**

$$V_{2b} = \sum_{i=1}^3 \frac{q_{iM}}{r_{iM}} + \frac{A_{iM}}{r_{iM}^5} + \frac{B_{iM}}{r_{iM}^7} + \frac{C_{iM}}{r_{iM}^9} + \frac{D_{iM}}{r_{iM}^{12}}$$

**Parameter potensial pasangan  $\text{Ni}^{2+} - \text{H}_2\text{O}$** 

Atom	q	Parameter			
		A	B	C	D
O	-0,6596	-7577,8512	42716,9883	-70268,4505	52301,7750
H	0,3298	-353,3401	3467,0790	-6549,7630	4909,1439

- **Potensial pasangan  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$  (Schwenk, 2004).**

$$V_{2b} = \sum_{i=1}^4 \left( \frac{A_{iM}}{r_{iM}^4} + \frac{B_{iM}}{r_{iM}^6} + \frac{C_{iM}}{r_{iM}^9} + \frac{D_{iM}}{r_{iM}^{12}} \right) \dots\dots\dots 3.5$$

**Parameter potensial pasangan  $\text{Ni}^{2+} - \text{NH}_3$** 

Atom	Parameter			
	A	B	C	D
Ni – N	-3435,6917013	12532,7930905	16877,8015380	3,609
Ni – H	68,4901091	593,3547056	-1152,0878537	608,7355441

**Lampiran 3. Potensial interaksi campuran pelarut.**

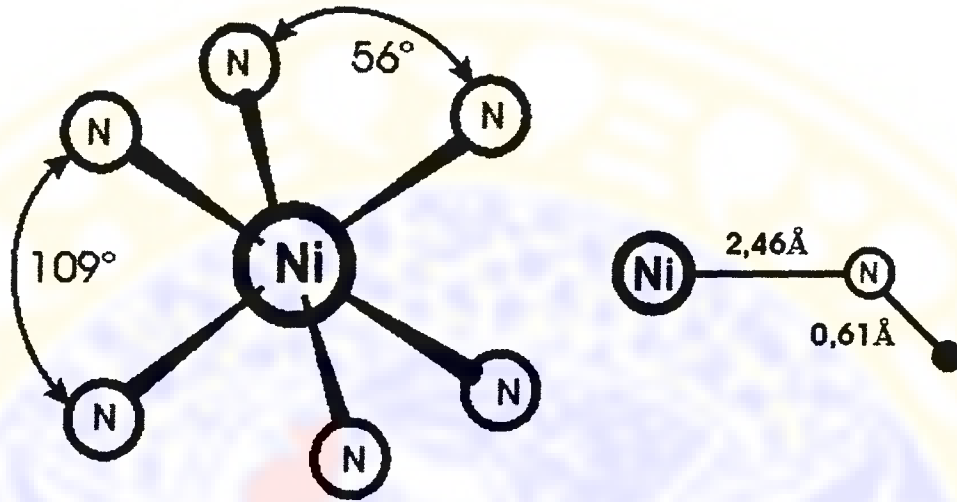
- **Potensial pasangan H<sub>2</sub>O – NH<sub>3</sub> (Tanabe dan Rode, 1988).**

$$V_{2b} = \sum_{i < j} \frac{q_i q_j}{r_{ij}} + \sum_{m < n} [A_{mn} \exp(-B_{mn} r_{mn}) - C_{mn} \exp(-D_{mn} r_{mn})]$$

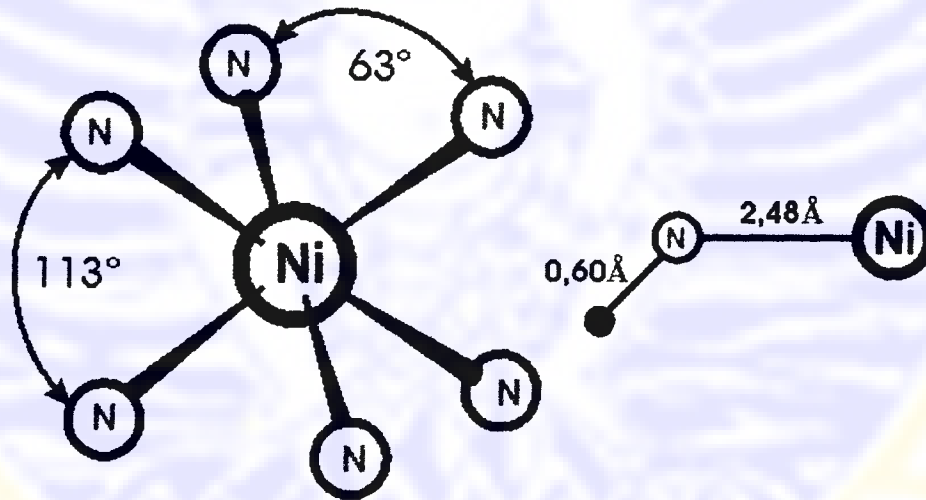
**Parameter potensial pasangan H<sub>2</sub>O – NH<sub>3</sub>**

Pasangan atom NH <sub>3</sub> / H <sub>2</sub> O	Koefisien			
	A	B	C	D
N – O	5805,2	1,2380	0	0
N – H	2552,1	1,3158	1209,1	1,0046
H – O	3488,4	1,4722	1520,8	1,1593
H – H	324,13	1,1622	0	0

Lampiran 4. Struktur statis  $\text{Ni}^{2+}$  segitiga antipiramida

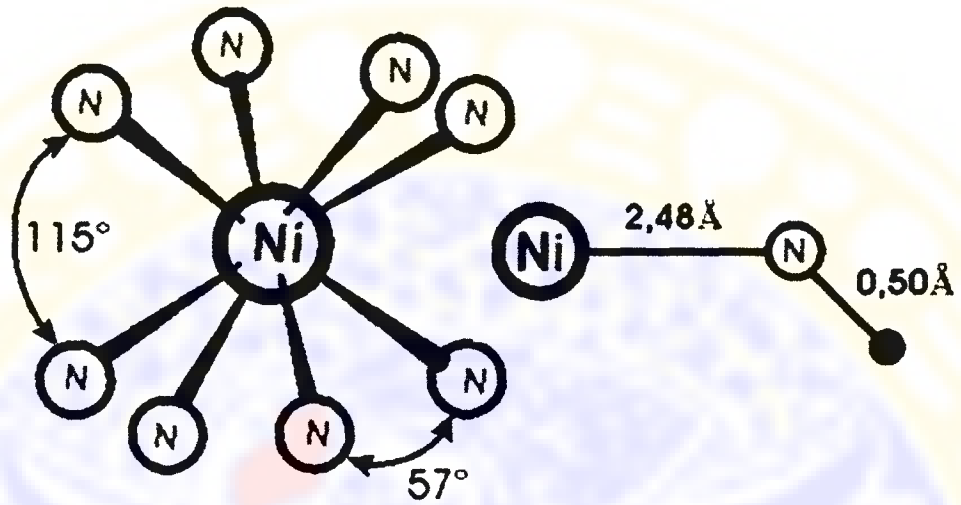


Struktur ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam 49,76% aquo-amoniak

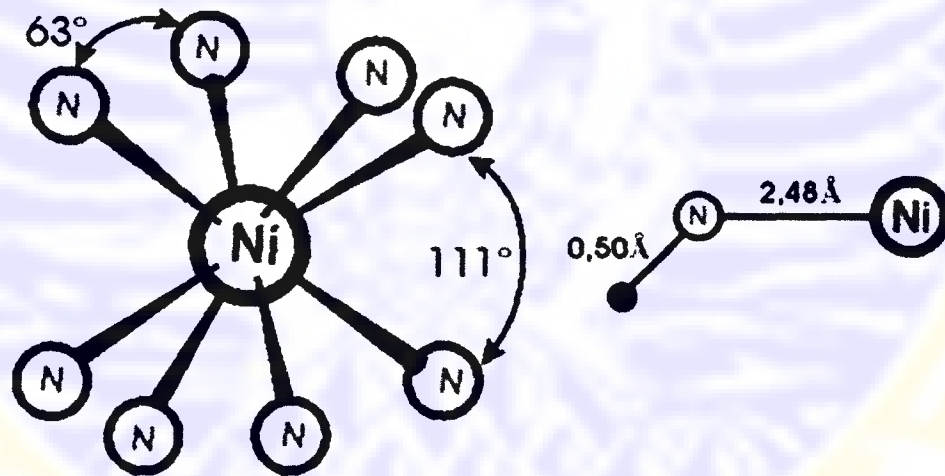


Struktur ion  $\text{Ni}^{2+}$  dalam 59,72% aquo-amoniak

**Lampiran 5. Struktur statis  $Ni^{2+}$  segiempat antipiramida**



Struktur ion  $Ni^{2+}$  dalam 69,67% aquo-amoniak



Struktur ion  $Ni^{2+}$  dalam 79,62% aquo-amoniak

**SENARAI**

Cluster	Sekelompok kecil atom atau molekul
Coupled Cluster	Sistem numerik untuk menjelaskan <i>many-body system</i>
Ensemble	Himpunan probabilitas yang lebih kecil
Fcc	<i>Face Center Cubic</i> – kubus pusat muka
Fitting Kurva	proses aplikasi data pada analisa regresi
MD	<i>Molecular Dynamics</i> – Dinamika molekul
MM	<i>Molecular Mechanics</i> – Mekanika molekul
NMR	<i>Nuclear Magnetic Resonance</i> – Resonansi magnetik inti
Pairwise Additive	Aditifitas potensial pasangan
QM/MM	<i>Quantum Mechanics/Molecular Mechanics</i> – Mekanika kuantum/Mekanika molekul
Spheris	Ruang berbentuk bola
Stochastic	Proses pembagian energi total ke dalam fasa ruah secara merata
XRD	<i>X-Ray Diffraction</i> – Difraksi sinar X