



Sintesis dan Karakterisasi Senyawa Kompleks Kloropentaaminakobalt(III) Klorida

Ameliana Surya Kartika*, Jesicha Dwi Fitria

Universitas Negeri Malang, Jl. Semarang No. 5 Malang, Jawa Timur, Indonesia

*Corresponding author, email: ameliana.surya.2103326@students.um.ac.id

Paper received: 3-6-2023; accepted: 15-6-2023; published: 30-6-2023

Abstract

In this research of synthesis and characterization of chloropentaaminocobalt(III) chloride complex compounds, the aim was to determine the synthesis method of chloropentaaminocobalt(III) chloride complex compounds. The synthesis of chloropentaaminocobalt(III) chloride complex compounds involves the reaction between chloride ions and pentaaminocobalt(III) chloride. The synthesis begins with the mixing of ammonium chloride with concentrated ammonium followed by the addition of anhydrous cobalt chloride, 30% hydrogen peroxide, and concentrated hydrochloric acid. The synthesized compound was qualitatively tested, including qualitative tests for chloride ions, electrical conductivity, and characterization using powder XRD. The synthesis resulted in chloropentaaminocobalt(III) chloride as purple powder with a mass of 0.504 grams and a yield of 23.943%. The qualitative test for chloride ions using AgNO_3 produced a white precipitate of AgCl , indicating that the complex is ionic due to the presence of Cl^- anion. Electrical conductivity measurement yielded a conductivity value of 680 μS . The conductivity value of the synthesized complex approached the conductivity value of $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, indicating that this complex tends to be ionic. Characterization using powder XRD resulted in twenty peaks, with the highest FoM value of 0.7272 corresponding to $\text{C}_6\text{C}_{14}\text{O}_2$ rather than $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$. This indicates that the chloropentaaminocobalt(III) chloride complex was not successfully synthesized.

Keywords: *synthesis of complex; cobalt; chloropentaaminocobalt(III) chloride*

Abstrak

Pada penelitian sintesis dan karakterisasi senyawa kompleks kloropentaaminakobalt(III) klorida, bertujuan untuk mengetahui cara sintesis senyawa kompleks kloropentaaminakobalt(III) klorida. Sintesis senyawa kompleks kloropentaaminakobalt(III) klorida melibatkan reaksi antara ion klorida dengan pentaaminakobalt(III) klorida. Sintesis dimulai dengan pencampuran amonium klorida dengan amonium pekat diikuti penambahan kobalt klorida anhidrat, hidrogen peroksida 30%, dan asam klorida pekat. Senyawa hasil sintesis dilakukan uji kualitatif meliputi uji kualitatif ion klorida, uji daya hantar listrik, dan karakterisasi menggunakan XRD serbuk. Diperoleh hasil sintesis kloropentaaminakobalt(III) klorida berupa serbuk berwarna ungu dengan massa 0,504 gram dan memiliki rendemen sebesar 23,943%. Hasil uji kualitatif ion klorida menggunakan AgNO_3 menghasilkan endapan putih AgCl . Menunjukkan bahwa kompleks bersifat ionik karena mengandung anion Cl^- . Pengukuran daya hantar listrik juga telah dilakukan, dan menghasilkan nilai konduktivitas sebesar 680 μS . Nilai nilai konduktivitas kompleks hasil sintesis mendekati nilai konduktivitas dengan $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, menunjukkan bahwa kompleks ini cenderung bersifat ionik. Dari hasil karakterisasi dengan XRD serbuk diperoleh dua puluh puncak dengan nilai FoM yang paling tinggi sebesar 0,7272 adalah $\text{C}_6\text{C}_{14}\text{O}_2$ bukan $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$. Hal ini menunjukkan bahwa kompleks kloropentaaminakobalt(III) klorida tidak berhasil disintesis.

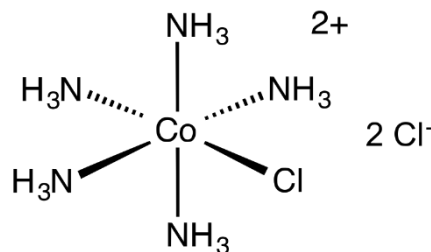
Kata kunci: sintesis kompleks; kobalt; kloropentaaminakobalt(III) klorida

1. Introduction

Senyawa kompleks adalah gabungan senyawa dari sebuah ion logam pusat dan satu atau lebih ligan yang memberikan pasangan elektron bebasnya kepada ion logam pusat. Ion logam pusat ini biasanya berasal dari unsur transisi dan mampu menerima pasangan elektron bebas dari ligan. Penyerahan pasangan elektron oleh ligan pada ion logam pusat menghasilkan ikatan kovalen koordinasi, sehingga senyawa kompleks sering disebut juga senyawa koordinasi. Jumlah ikatan kovalen koordinasi antara ion pusat dan ligan dalam suatu senyawa kompleks disebut sebagai bilangan koordinasi. Senyawa kompleks memiliki beragam bilangan koordinasi dan struktur, mulai dari dua hingga dua belas, dengan struktur seperti linear, tetrahedral, segi empat planar, trigonal bipirimidial, dan oktahedral. Biasanya, senyawa kompleks memiliki bilangan koordinasi enam dan struktur umum oktahedral (Huheey & James, 1993).

Senyawa kompleks memegang peran penting dalam kehidupan manusia karena berbagai aplikasinya di berbagai bidang seperti kesehatan, farmasi, industri, dan lingkungan. Contohnya senyawa kompleks kobalt yang telah banyak digunakan sebagai katalis, agen penghambat pertumbuhan kanker, dan fungsi lainnya (Cotton & Wilkinson, 1989). Senyawa kompleks dapat dibuat dengan mencampurkan larutan ion logam dan ligan dalam pelarut yang sesuai untuk melarutkan keduanya, baik dengan atau tanpa pemanasan pada suhu tertentu (Sariyanto & Lanjar, 2010).

Sintesis senyawa kompleks Kloropentaaminakobalt(III) Klorida ini melibatkan reaksi antara ion klorida dengan pentaaminakobalt(III) klorida. Dalam hal ini pentaaminakobalt(III) klorida atau $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$ berperan sebagai prekursor yang menyediakan ion logam pusat yaitu kobalt(III) yang terikat pada lima ligan amonia dan satu ligan klorida. Proses tersebut didasarkan pada prinsip substitusi ligan, dimana ligan yang terdapat dalam kompleks awal digantikan oleh ligan yang baru dari senyawa lain, dalam sintesis ini yaitu ion klorida. Reaksi tersebut dilakukan dalam pelarut tertentu yang sesuai dengan larutnya senyawa-senyawa reaktan dan produk. Selama reaksi ion klorida menggantikan ligan amonia pada kompleks pentaaminakobalt(III) dan membentuk senyawa kompleks baru yaitu kloropentaaminakobalt(III) klorida $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$ (Sariyanto & Lanjar, 2010).



Gambar 1. Struktur $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$

Proses ini memerlukan kondisi reaksi yang tepat seperti suhu dan keberadaan katalis untuk mencapai hasil yang maksimal. Hasil akhir yang akan didapatkan yaitu pembentukan senyawa baru dengan struktur dan sifat yang berbeda dari senyawa awal yang dapat diisolasi dan dimurnikan untuk analisis lebih lanjut seperti analisis karakterisasi. Karakterisasi tersebut bertujuan untuk mengetahui formula dan karakteristik senyawa kompleks yang meliputi spektrum XRD.

X-Ray Diffraction (XRD) merupakan teknik analisis untuk mengidentifikasi fase kristal pada suatu bahan dengan menggunakan parameter struktur kisi dan ukuran partikel. XRD

dapat memberikan 11 informasi mengenai struktur material dan nilai sudut kristal. XRD juga bekerja dengan cara difraksi sinar-X yang dihamburkan oleh sudut kristal bahan yang dianalisis (Shallman & Bilshop, 2000).

2. Method

Alat dan Bahan

Pada percobaan ini, peralatan yang digunakan antara lain yaitu: magnetic stirrer hot plate (*IKA C-MAG HS 7*), beaker glass 100 mL, termometer, pipet tetes, kertas saring, cawan penguapan, kaca arloji, penangas es, dan corong Buchner. Bahan-bahan yang diperlukan adalah NH_4Cl , NH_3 pekat, $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 30% hidrogen peroksida (H_2O_2), HCl pekat, etanol 95%, dan aquades. Senyawa kompleks hasil sintesis dikarakterisasi dengan XRD serbuk (Rigaku Miniflex 600, Cu $\text{K}\alpha$ dengan detektor D/teX ultra1-D yang dioperasikan pada 40 kV dan 15 mA).

Sintesis Senyawa Kompleks

Di dalam lemari asam, sebanyak 1 gram NH_4Cl ditambahkan ke dalam 6 mL larutan NH_3 pekat pada beaker glass 100 mL. Dilakukan pengadukan menggunakan magnetic stirrer sambil ditambahkan 2 g $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ke dalam larutan amonium klorida tersebut. Kemudian 1,6 mL H_2O_2 30% ditambahkan tetes demi tetes. Setelahnya, dengan pengadukan yang masih terus-menerus dilakukan, ditambahkan HCl pekat sebanyak 6 mL. Larutan dipanaskan hingga 60°C dengan sesekali pengadukan dan dipertahankan suhu antara 55°C dan 65°C selama 15 menit (Williams et al., 1989).

Setelah proses pemanasan selesai, ditambahkan 5 mL aquades ke dalam larutan dan dibiarkan dingin hingga suhu kamar. Kemudian, dilakukan penyaringan menggunakan corong Buchner. Dicuci produk yang dihasilkan dengan 1,5 mL aquades dingin sebanyak 3 kali dan dengan 1,5 mL etanol 95% sebanyak dua kali. Dipindahkan produk yang dihasilkan ke cawan penguapan dan dibiarkan kering dalam suhu ruang selama satu minggu (Williams et al., 1989).

Karakterisasi Senyawa Kompleks Hasil Sintesis

Karakterisasi terhadap senyawa kompleks hasil sintesis meliputi penentuan hasil analisis menggunakan XRD serbuk, penentuan rendemen hasil sintesis, uji kualitatif ion klorida, dan pengukuran daya hantar listrik (DHL).

3. Results and Discussion

Sintesis Senyawa Kompleks

Pada proses sintesis senyawa kompleks kobalt dilakukan dengan beberapa langkah dan sebagian besar proses dilakukan dalam lemari asam. Langkah-langkah ini diawali dengan penambahan padatan garam NH_4Cl sebanyak 1,018 gram ke dalam 6 mL larutan NH_3 pekat pada beaker glass 100 mL yang bertujuan untuk membentuk larutan amonium klorida dan meningkatkan NH_3 sebagai ligan. Selanjutnya, penambahan $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ sebanyak 2,031 gram ke dalam larutan amonium klorida dilakukan dengan pengadukan menggunakan magnetic stirrer. Langkah tersebut bertujuan untuk membentuk senyawa kompleks kloropentaaminakobalt(III) klorida, dimana kompleks ini terbentuk melalui reaksi antara ion kobalt(III) (Co^{3+}) dari $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dan ligan amonium (NH_4^+) dari larutan amonium klorida.

Proses pengadukan berfungsi untuk memastikan homogenitas campuran dan memungkinkan terbentuknya senyawa kompleks dengan baik. Proses ini merupakan bagian penting dari senyawa kompleks kobalt dan memastikan kesuksesan reaksi yang dihasilkan.

Proses pembentukan senyawa kompleks ini juga melibatkan langkah-langkah yang memerlukan penambahan larutan H_2O_2 30% dan HCl pekat. Larutan H_2O_2 30% sebanyak 1,6 mL ditambahkan tetes demi tetes ke dalam larutan berwarna coklat tersebut. Penambahan larutan H_2O_2 30% ini bertujuan untuk memberikan oksigen tambahan dalam reaksi, sehingga dapat membentuk senyawa kompleks yang lebih stabil. Dalam reaksi ini larutan H_2O_2 berperan sebagai oksidator. Setelah penambahan larutan H_2O_2 , dilakukan penambahan HCl pekat sebanyak 6 mL yang bertujuan untuk menetralkan larutan dan mengatur pH. Pada langkah ini dihasilkan larutan berwarna ungu yang menunjukkan terbentuknya senyawa kompleks yang diinginkan (Tershansy et al., 2005).

Proses pemanasan hingga 60°C dan dipertahankan suhu antara 55°C dan 65°C selama 15 menit bertujuan untuk meningkatkan laju reaksi dan mengoptimalkan pembentukan senyawa kompleks. Proses ini diawali dengan pemanasan larutan yang sebelumnya berwarna ungu menjadi berwarna biru. Perubahan warna selama proses pemanasan ini melibatkan reaksi redoks. Reaksi redoks yang mungkin terjadi yaitu reaksi antara ion kobalt (III) dan ion H_2O_2 yang berperan sebagai oksidator dalam reaksi ini. Dalam kondisi panas, reaksi redoks dapat menyebabkan terjadinya perubahan oksidasi pada ion kobalt(III) menjadi ion kobalt(IV), yang kemungkinan memiliki warna biru (Hermawati et al., 2016).

Penambahan 5 mL aquades setelah proses pemanasan bertujuan untuk menghentikan reaksi dan mengamati perubahan warna dari biru kembali menjadi ungu. Larutan yang sebelumnya berwarna biru ini, setelah dalam kondisi dingin kembali berwarna ungu. Hal ini disebabkan oleh proses reduksi ion kobalt (IV) menjadi ion kobalt (III). Proses reduksi ini dapat menyebabkan terbentuknya kembali senyawa kompleks kloropentaaminakobalt(III) klorida dalam bentuk yang lebih stabil, ditandai dengan perubahan warna larutan menjadi ungu.

Proses sintesis senyawa kompleks kobalt dengan ligan amonium dan klorida menghasilkan produk yang memiliki warna ungu, yang kemudian melalui beberapa tahap pemisahan dan pemurnian. Proses tersebut dilakukan dengan penyaringan menggunakan corong Buchner untuk memisahkan produk berupa padatan dari larutan. Selanjutnya proses pencucian produk yang dihasilkan dengan aquades dan etanol 95% bertujuan untuk menghilangkan sisa-sisa larutan dan kontaminan yang terdapat dalam produk. Pada tahap ini dapat meningkatkan kemurnian produk yang dihasilkan (Saria et al., 2012). Produk yang dihasilkan dipindahkan ke dalam cawan penguapan untuk dikeringkan selama satu minggu pada suhu ruang. Pengeringan tersebut bertujuan untuk menghilangkan sisa pelarut dan memastikan produk benar-benar kering sebelum digunakan. Sintesis senyawa kompleks kobalt dengan ligan amonium dan klorida yang merupakan ligan monodentat ini membentuk senyawa kompleks yang berwarna ungu.

Karakterisasi Senyawa Kompleks Hasil Sintesis

Karakterisasi senyawa kompleks hasil sintesis meliputi penentuan rendemen hasil sintesis, uji kualitatif ion klorida, uji daya hantar listrik (DHL), dan karakterisasi dengan XRD

serbuk. Kristal senyawa kompleks yang telah diperoleh ditimbang dan dihitung persentase hasil sintesis, didapatkan hasil persentase rendemen sebesar 23,943%.

Kemudian uji kualitatif ion klorida dilakukan untuk memverifikasi keberadaan anion klorida dalam kompleks yang dihasilkan. Tahap ini merupakan bagian dari proses analisis untuk memastikan komposisi senyawa kompleks yang terbentuk. Uji kualitatif ini dilakukan menggunakan larutan AgNO_3 dimana keberadaan ion klorida ditandai dengan terbentuknya endapan putih AgCl . Metode ini penting dilakukan untuk memastikan keberadaan anion klorida dalam senyawa kompleks. Produk kompleks $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$ dalam jumlah yang sedikit dilarutkan dalam aquades dan diteteskan dengan larutan AgNO_3 untuk menguji keberadaan ion klorida. Hasil uji kualitatif ion klorida positif mengandung anion klorida yang dibuktikan dengan terbentuknya endapan putih AgCl . Reaksi kimia yang terjadi sebagai berikut:



Adanya endapan putih tersebut menunjukkan bahwa kompleks bersifat ionik karena mengandung anion Cl^- .

Pengukuran daya hantar listrik atau konduktivitas listrik merupakan metode penting untuk menentukan sifat suatu senyawa kimia, terutama dalam klasifikasi sebagai senyawa ionik atau non-ionik. Pengukuran ini dilakukan untuk menentukan kemampuan suatu senyawa dalam menghantarkan listrik. Sifat konduktivitas dapat memberikan indikasi apakah senyawa bersifat ionik atau non-ionik. Hasil pengukuran ditunjukkan pada Tabel 1. Data pengukuran ini mengindikasikan bahwa sampel kompleks $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$ diprediksikan sebagai senyawa ionik karena nilai konduktivitasnya mendekati nilai konduktivitas garamnya yaitu $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. Kesamaan nilai konduktivitas antara kompleks $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$ dengan garam $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ menunjukkan bahwa kompleks tersebut memiliki sifat ionik. Adanya ion kobalt yang dikelilingi oleh ligan amonium (NH_3) dan ion klorida (Cl^-) dapat berpengaruh terhadap kemampuan kompleks untuk membawa muatan listrik. Dengan demikian, kompleks $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$ dapat diprediksi sebagai senyawa ionik berdasarkan hasil pengukuran konduktivitas listriknya.

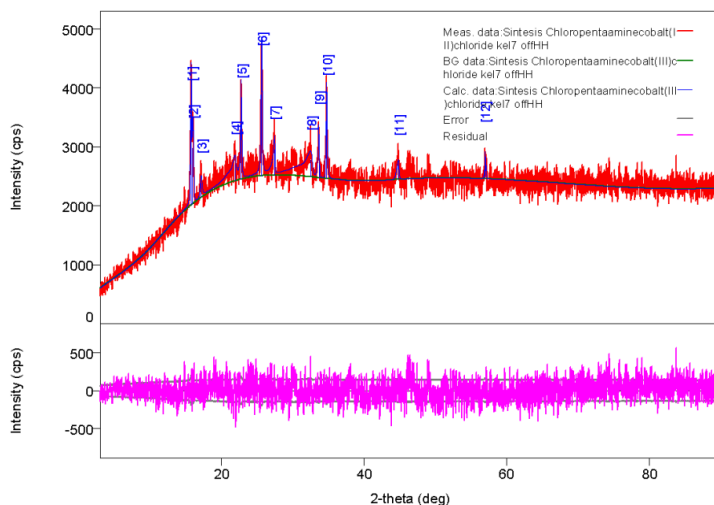
Tabel 1. Data Daya Hantar Listrik

Senyawa	Konduktivitas Listrik (μS) dalam konsentrasi 1,00 mg/mL pada sampel
NH_4Cl	2,78
$\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	836
Sampel	680

Karakterisasi XRD Senyawa Kompleks Hasil Sintesis

Karakterisasi hasil sintesis dilakukan menggunakan XRD serbuk (*Powder X-ray Diffraction*) untuk menganalisis struktur kristal dari senyawa kompleks yang terbentuk. Dari analisis dapat diperoleh informasi tentang struktur kristalografi, komposisi kimia, dan sifat

fisiknya (Kusyanto, 2017). Analisis pola XRD pada senyawa kompleks hasil sintesis menunjukkan berbagai jenis serapan yang ditunjukkan pada Gambar 1.



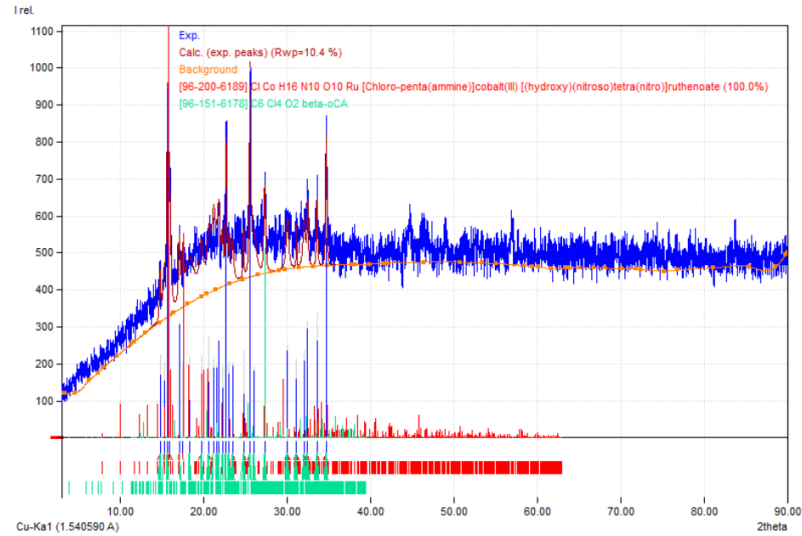
Gambar 2. Difraktogram XRD hasil sintesis $[Co(NH_3)_5Cl]Cl_2$

Pada **Gambar 2.** menunjukkan pola XRD dari hasil sintesis senyawa kompleks dengan 12 puncak yang hasilnya ditampilkan dalam **Tabel 2.**

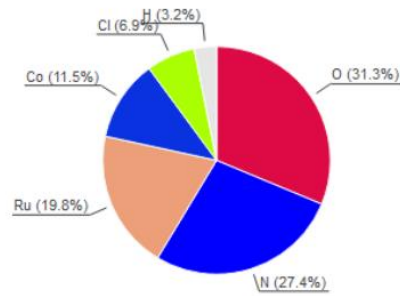
Tabel 2. Daftar puncak hasil XRD

No.	2-theta (deg)	d (ang.)	Height (cps)	FWHM (deg)
1	15.747(11)	5.623(4)	1599(115)	0.139(14)
2	15.97(2)	5.547(8)	937(88)	0.25(5)
3	17.15(4)	5.165(12)	241(45)	0.26(5)
4	21.91(5)	4.053(9)	273(48)	0.72(15)
5	22.779(15)	3.901(2)	1207(100)	0.13(2)
6	25.637(19)	3.472(2)	1691(119)	0.163(19)
7	27.42(5)	3.250(6)	433(60)	0.26(8)
8	32.50(3)	2.752(3)	287(49)	1.31(19)
9	33.663(11)	2.6602(8)	733(78)	0.10(3)
10	34.760(13)	2.5788(10)	1234(101)	0.153(16)
11	44.80(3)	2.0215(13)	230(44)	0.37(9)
12	56.937(10)	1.6160(3)	445(61)	0.09(3)

Data difraktogram yang diperoleh dari pengukuran XRD dilakukan analisis lebih lanjut dengan software Match. Difraktogram hasil program Match senyawa kompleks dapat dilihat pada **Gambar 3.**



Gambar 3. Hasil analisis menggunakan software Match



Gambar 4. Elemental Composition (Weight %)

Berdasarkan analisis difraktogram dengan menggunakan software Match ini tidak diperoleh sintesis kloropentaaminakobalt(III) klorida, namun diduga terdapat senyawa kompleks kloropentaaminakobalt(III)hidroksi dan juga senyawa lainnya seperti yang terdapat pada lampiran hasil. Dalam analisis XRD pada software Match ini juga didapatkan unsur lain selain yang terkandung dalam kompleks $[\text{Co}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{Cl}_2$ yang ditunjukkan pada **Gambar 4**. Adanya senyawa lain dan unsur lain yaitu dapat disebabkan karena adanya kontaminan dari luar dan dapat disebabkan reaksi penambahan H_2O_2 yang belum bereaksi sempurna. Dengan demikian, karakteristik menggunakan XRD serbuk sangatlah penting dalam memahami struktur dan sifat fisik dari senyawa kompleks yang telah disintesis.

4. Conclusion

Dari percobaan Sintesis dan Karakterisasi Kloropentaaminakobalt(III) Klorida yang telah dilakukan, menghasilkan serbuk berwarna ungu. Massa kloropentaaminakobalt(III) klorida diperoleh 0,504 gram dan persentase rendemen sebesar 23,943% dengan nilai konduktivitas sebesar 680 μS . Adanya ion Cl^- pada senyawa kompleks kloropentaaminakobalt(III) klorida berhasil dibuktikan dari reaksi dengan AgNO_3 yang menghasilkan endapan putih. Namun, berdasarkan hasil karakterisasi XRD sintesis senyawa kompleks tidak berhasil dilakukan.

Acknowledgment

Semua penulis menyampaikan terima kasih kepada (1) Husni Wahyu Wijaya, Ph.D dan Danar, M.Sc selaku dosen pengampu perkuliahan Praktikum Sintesis Anorganik (Genap 2023/2024) dan (2) Dr. Yessi Permana dan Siti Hartinah Qurbayni (Yessi Lab, Kimia, ITB) yang memfasilitasi karakterisasi sampel hasil sintesis.

References

- Cotton, F. ., & Wilkinson, G. (1989). *Kimia Anorganik Dasar*. UI Press.
- Hermawati, E. S., Suhartana, S., & Taslimah, T. (2016). Sintesis dan Karakterisasi Senyawa Kompleks Zn(II)-8-Hidroksikuinolin. *Jurnal Kimia Sains Dan Aplikasi*, 19(3), 94–98. <https://doi.org/10.14710/jksa.19.3.94-98>
- Huheey, & James, E. (1993). *Inorganic Chemistry:Principles of Structure and Reactivity* (4th ed.). Harper Collins College Publishers.
- Kusyanto, A. dan K. H. S. (2017). Sintesis Dan Karakterisasi Senyawa Kompleks Anion Trifluorometanasulfonat Synthesis and Characterization of Iron (Iii) Complex With 1 , 10-Phenanthroline Ligand and Trifluoromethanesulfonate Anion Complex With 1 , 10-Phenanthroline Ligand. *Kimia Dasar*, 6(1), 51–58.
- Saria, Y., Saria, Y., Lucyanti, L., Hidayati, N., & Lesbani, A. (2012). Sintesis Senyawa Kompleks Kobalt dengan Asetilasetonato. *Jurnal Penelitian Sains*, 15(3), 2012. <http://ejurnal.mipa.unsri.ac.id/index.php/jps/article/view/107>
- Sariyanto, & Lanjar. (2010). *Sintesis dan Karakterisasi Kompleks Kromium (III) dengan Benzokain*. Universitas Sebelas Maret.
- Shallman, R. ., & Bilshop, R. . (2000). *Metalurgi Fisik Modern dan Rekayasa Material*. Erlangga.
- Tershansy, M. ., Goforth, A. ., Smith, M. ., Peterson, & Loye, H. C. . (2005). Tris(1,10-phenanthroline) cobalt(II) triiodide. *Acta Crystallographica Section E*, 61, 1680–1681.
- Williams, G. M., Olmsted, J., & Breksa, A. P. (1989). Coordination Complexes of Cobalt. *Journal of Chemical Education*, 66(12), 1043–1045.