

## Sifat Foto-Kimia Kompleks Molibdenum Ditiolena

(Photo-Chemical Properties of Molybdenum Dithiolene)

MARK LEE WUN FUI, LORNA JEFFERY MINGGU & MOHAMMAD B. KASSIM\*

### ABSTRAK

Faktor yang perlu diberi perhatian bagi bahan pemeka foto yang baik adalah keamatan serapan dan kedudukan serapan spektrum elektronik dalam julat cahaya nampak, keupayaan redoks dan kestabilan-fotonya. Kompleks molibdenum ditiolena dengan formula am  $[MoTp^*(NO)(L)]$  dengan  $Tp^* = tris(3,5-dimetilpirazolil)hidroborat$  dan  $L = toluena-3,4-ditiolat (L_1)$ ;  $1,2-benzenaditiolat (L_2)$ ;  $3,6-dikloro-1,2-benzenaditiolat (L_3)$  didapati mempunyai sifat-sifat kimia dan fizik yang diperlukan untuk dijadikan sebagai anod pemeka-foto-elektron untuk sel foto-elektrokimia penguraian molekul air kepada hidrogen dan oksigen. Kompleks Mo-ditiolena yang disintesis daripada prekursor  $[MoTp^*(NO)(I)_2]$  dan sebatian ditiol dengan kehadiran  $Et_3N$  sebagai agen penurunan dan penyahprotonan telah dicari dengan menggunakan kaedah analisis mikro unsur CHNS, spektroskopi IR, ultra-lembahyung dan cahaya nampak (UV-Vis), dan elektrokimia. Puncak penyerapan UV-Vis ( $\lambda_{max} / nm$ ) dikesan pada 321-331, 369-372, 576-589 dan 736-741 nm. Sifat keaktifan foto-kimia dan foto-fizik turut dikaji bagi menentukan kesesuaiannya sebagai bahan pemeka foto bagi sel foto-elektrokimia. Ujian kestabilan-foto menunjukkan tiada berlaku penguraian terhadap ketiga-tiga kompleks tersebut selepas sinaran cahaya selama 24 jam.

Kata kunci: Bahan pemeka foto; kestabilan-foto; molibdenum ditiolena

### ABSTRACT

The important factors for a good photosensitizer are intensity and position of the spectral absorption in visible region, redox potentials and photo-stability. Molybdenum dithiolene complexes with a general formula  $[MoTp^*(NO)(L)]$  where  $Tp^* = tris(3,5-dimethylpyrazolyl)hydroborate$  and  $L = toluene-3,4-dithiolate (L_1)$ ;  $1,2-benzenedithiolate (L_2)$ ;  $3,6-dichloro-1,2-benzenedithiolate (L_3)$  were found to exhibit the required chemical and physical properties as an anode for photo-electron-sensitizer to generation hydrogen and oxygen via water splitting in photo-electrochemical cell. Mo-dithiolene complexes were synthesized from the precursor  $[MoTp^*(NO)(I)_2]$  and dithiol compound in the presence of  $Et_3N$  as reducing and deprotonating agents. These complexes were characterised by micro-elemental analysis for CHNS, infrared and UV-Vis spectroscopy, and electrochemical analysis. UV-Vis absorption peaks were detected at 321-331, 369-372, 576-589, 736-741 nm ( $\lambda_{max} / nm$ ). The photo-chemical and photo-physical reactivities were studied to determine the suitability of these complexes as photosensitizers in photo-electrochemical cells. The photo-stability test showed no significant degradation of the complexes after 24 h of light illumination.

Keywords: molybdenum dithiolene; photosensitizer; photo-stability

### PENGENALAN

Penyelidikan ini menjurus kepada kajian penghasilan bahan pemeka foto yang baik dan sesuai untuk digunakan dalam sel foto-elektrokimia. Kajian tentang bahan pemeka foto yang digunakan dalam sel foto-kimia terus dilakukan sejak penemuan penguraian molekul air oleh  $TiO_2$  (Fujishima & Honda 1972). Aplikasi sel foto-elektrokimia dalam bidang sumber tenaga boleh diperbaharui bagi menggantikan sumber bahan api fosil yang kian dicari-cari. Selain itu, teknologi ini adalah mesra alam kerana air digunakan sebagai sumber untuk menjanakan gas hidrogen (sumber tenaga boleh diperbaharui) dan gas oksigen (hasil sampingan tindak balas) adalah tidak mencemarkan alam sekitar.

Bahan pemeka foto dapat meningkatkan kecekapan sel foto-elektrokimia dengan meningkatkan julat serapan tenaga suria sehingga menjangkau ke kawasan cahaya nampak. Dengan kata lain, kompleks yang dihasilkan dalam kajian ini bertindak sebagai bahan pemeka foto (photosensitizer) bagi meningkatkan kemampuan sel foto-elektrokimia yang menggunakan semikonduktor untuk menjerap foton daripada cahaya. Berdasarkan kajian lepas, kompleks ditiolena tungsten telah dilaporkan berpotensi digunakan sebagai bahan pemeka foto (Falaras et al. 1995; Katakis et al. 1992; Lyris et al. 1997). Memandangkan sifat kimia W dan Mo adalah hampir sama, (Greenwood & Earnshaw 1984) maka kompleks molibdenum ditiolena juga dijangka mempunyai potensi yang sama seperti kompleks tungsten ditiolena.

Hasrat untuk mendapatkan kompleks pemeka cahaya ini dimungkinkan dengan penggunaan moiety {MoTp\*(NO)}; dengan Tp\* = tris(3,5-dimetilpirazol-1-il)hidroborat yang mempunyai kesan sterik yang tinggi untuk menstabilkan kompleks. Ligan NO yang hadir dalam moiety ini juga memainkan peranannya untuk memperkayakan sifat elektrokimia kompleks (McCleverty & Ward 1998). Selain itu, penggunaan ligan ditiolena dalam kompleks dijangka meningkatkan kestabilan struktur resonans disebabkan penyahsetempatan elektron yang berlaku dalam ligan dan logam. Tambahan pula, ia mampu mengalami proses redoks berbalik secara lengkap dan yang lebih menarik, kompleks ditiolena adalah stabil terhadap suhu dan proses foto-kimia (Mueller et al. 1991).

Kajian elektrokimia, spektroskopi dan kestabilan-foto tiga analog kompleks molibdenum ditiolena ini telah dilakukan untuk menilai kesesuaian sebagai bahan pemeka foto bagi sel foto-elektrokimia untuk penjanaaan gas hidrogen.

#### KAEDAH UJI KAJI

Penyelidikan ini melibatkan tindak balas yang sensitif terhadap kelembapan dan kandungan oksigen dalam udara kerana ia akan mengganggu tindak balas kimia dan kestabilan produk yang terhasil. Semua eksperimen dijalankan di bawah aliran gas nitrogen dengan teknik saluran *Schlenk*. Toluena, asetonitril dan trietilamina dikeringkan dengan CaH<sub>2</sub>. Sikloheksana, diklorometana dan *n*-pentana digunakan terus daripada pembekal dan hanya disalurkan gas nitrogen sebelum digunakan untuk mengeluarkan gas oksigen terlarut.

Kalium tris(3,5-dimetilpirazolil)boronhidrida (KTP\*), [MoTp\*(NO)(CO)<sub>2</sub>], [MoTp\*(NO)(I)<sub>2</sub>] dan kompleks [MoTp\*(NO)(L)] telah disintesis berdasarkan kaedah yang telah dilaporkan (Alobaidi et al. 1989; Joshi et al. 2002; McCleverty et al. 1976; Wlodarczyk et al. 1997). Ligan toluena-3,4-ditiol (H<sub>2</sub>L<sub>1</sub>), 1,2-benzenaditiol (H<sub>2</sub>L<sub>2</sub>), 3,6-dikloro-1,2-benzenaditiol (H<sub>2</sub>L<sub>3</sub>) diperolehi daripada Aldrich dan digunakan terus tanpa penulenan atau pengeringan.

Kromatografi lapisan nipis (TLC) dilakukan di atas kepingan gel silika 60 F254 manakala kromatografi turus dilakukan dalam turus kaca berliang yang diisi dengan gel silika (Merck, bersaiz 0.063-0.200 mm). Spektroskopi IR (4000-400 cm<sup>-1</sup>) dicerap dengan menggunakan spektrofotometer Perkin Elmer Paragon 500. Spektroskopi UV-Vis dicerap dengan UV-1650 PC SHIMADZU manakala Fision EA 1108 digunakan untuk analisis mikro unsur CHNS. Sifat redoks produk dikaji dengan kaedah votometri berkitar dengan menggunakan potentiostat Voltlab PGZ402. Sel yang digunakan terdiri daripada elektrod kerja platinum, wayar platinum sebagai elektrod pelengkap dan elektrod rujukan Ag/AgCl. Keupayaan redoks [MoTp\*(NO)(L<sub>1</sub>)] (ML<sub>1</sub>), [MoTp\*(NO)(L<sub>2</sub>)] (ML<sub>2</sub>) dan [MoTp\*(NO)(L<sub>3</sub>)] (ML<sub>3</sub>) dengan kepekatan 1 mM direkodkan di dalam CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> yang digelembungkan gas nitrogen serta mengandungi elektrolit 0.1 M [(n-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>4</sub>N]PF<sub>6</sub>.

MoTp\*(NO)(I)<sub>2</sub> (0.2 g, 0.29 mmol) dan H<sub>2</sub>L<sub>1</sub> (0.05 g, 0.32 mmol) dilarutkan dengan 50 mL toluena kering di dalam kelalang bulat berleher dua (100 mL). Campuran dipanaskan (~80°C) sebelum ditambah Et<sub>3</sub>N (0.4 mL, 2.2 mmol) kering secara perlahan-lahan sambil dikacau. Campuran larutan bertukar daripada kekuningan kepada biru tua. Campuran tindak balas direflukskan selama 16 jam dan tindak balas dipantau dengan TLC menggunakan sistem pelarut CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/sikloheksana (1:3). Setelah dibiarkan sejuk, pelarut disuling keluar sehingga 1/3 isipadu asal dan ditambah dengan *n*-pentana. Mendak berwarna ungu tua dikumpulkan dengan penurasan *Büchner* dan dibersihkan dengan *n*-pentana. Mendakan ini dituliskan lagi dengan kromatografi turus, menggunakan sistem pelarut CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/sikloheksana (1:1). Hasil (ML<sub>1</sub>) yang diperolehi dicirikan dengan teknik spektroskopi FTIR, UV-Vis dan analisis mikro unsur CHNS. Kaedah sintesis ML<sub>2</sub> dan ML<sub>3</sub> adalah sama seperti ML<sub>1</sub>, namun, nisbah stoikiometri bahan pemula yang digunakan adalah berbeza iaitu, ML<sub>2</sub>: MoTp\*(NO)(I)<sub>2</sub> (0.38 g, 0.56 mmol) dan H<sub>2</sub>L<sub>2</sub> (0.1 g, 0.7 mmol) dan ML<sub>3</sub>: MoTp\*(NO)(I)<sub>2</sub> (0.35g, 0.52 mmol) ditambahkan kepada H<sub>2</sub>L<sub>3</sub> (0.15g, 0.7 mmol). Jadual 1 menunjukkan data pencirian struktur kompleks yang dihasilkan.

JADUAL 1. Data pencirian struktur kompleks ML<sub>1</sub>, ML<sub>2</sub> dan ML<sub>3</sub>

	IR (cm <sup>-1</sup> )		UV-Vis, λ/nm (ε/L mol <sup>-1</sup> cm <sup>-1</sup> )				CHNS (Nilai teori, %)			
	ν(NO)	ν(BH)	λ <sub>1</sub>	λ <sub>2</sub>	λ <sub>3</sub>	λ <sub>4</sub>	C	H	N	S
ML <sub>1</sub>	1658	2542	736 (2913)	589 (5714)	370 (3740)	321 (6240)	49.55 (49.54)	4.73 (5.48)	13.90 (14.65)	9.42 (9.58)
ML <sub>2</sub>	1671	2550	736 (2772)	581 (6357)	369 (5840)	321 (6053)	47.72 (46.77)	5.07 (5.02)	15.05 (16.04)	11.72 (10.50)
ML <sub>3</sub>	1674	2552	741 (1553)	576 (5053)	372 (2968)	331 (3924)	42.89 (43.69)	3.79 (4.41)	12.52 (13.81)	10.44 (9.03)

Ujian kestabilan foto dilakukan untuk menentukan kestabilan  $ML_1$ ,  $ML_2$  dan  $ML_3$  terhadap sinaran cahaya dengan menggunakan spektrofotometer UV-Vis. Eksperimen ini dijalankan di dalam larutan aseton:air (70:30), yang mengandungi sampel sebanyak  $\sim 0.1$  mM di bawah aliran gas nitrogen. Air telah disuling tiga kali dan aseton yang digunakan adalah gred spektroskopik (Fluka). Dua keadaan eksperimen dijalankan: (a) tanpa campuran metil viologen ( $MV^{2+}$ ) dan (b) dengan kehadiran  $MV^{2+}$ . Lampu xenon (70 watt) dengan panjang gelombang 400 nm digunakan sebagai sumber cahaya dan penyinaran berlangsung selama 24 jam. Spektrum serapan elektronik sampel dicatatkan pada beberapa sela masa tertentu.

## HASIL DAN PERBINCANGAN

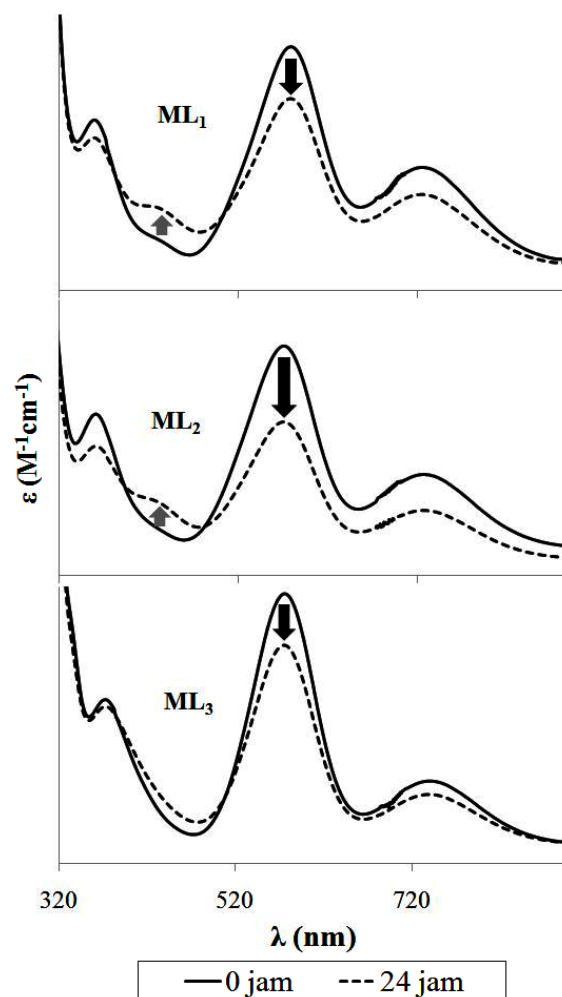
### VOLTAMETRI BERKITAR (CV)

Sifat redoks bagi  $ML_1$ ,  $ML_2$  dan  $ML_3$  dikaji dengan voltametri berkitar (CV). Ketiga-tiga  $ML_1$ ,  $ML_2$  dan  $ML_3$  menunjukkan satu proses penurunan berbalik dengan pemisahan puncak-puncak,  $\Delta E$  antara 109 – 110 mV. Nilai keupayaan penurunan,  $\Delta E_{1/2}$  bagi  $ML_2$  ialah -909 mV ( $I_{pa}/I_{pc} = 1.08$ ),  $ML_3$  ialah -772 mV ( $I_{pa}/I_{pc} = 1.11$ ) dan nilai keupayaan  $ML_1$  adalah paling anodik iaitu -931 mV berdasarkan elektrod rujukan Ag/AgCl. Dengan ini, kecenderungan kompleks untuk menjalani proses penurunan dalam turutan menurun adalah  $ML_3 > ML_2 > ML_1$ . Nilai keupayaan,  $\Delta E_{1/2}$  sangat dipengaruhi oleh sifat kumpulan penukarganti ligan ditiolena. Corak turutan seperti ini pernah dilaporkan, misalnya, semakin tinggi sifat kekuatan penarikan elektron bagi sesuatu ligan, maka semakin tinggi kecenderungan kompleks untuk menerima elektron luaran (Falaras et al. 1995).

Frekuensi regangan  $\nu(\text{NO})$  dapat digunakan sebagai penunjuk ketumpatan elektron bagi logam pusat (Alobaidi et al. 1987). Nilai regangan  $\nu(\text{NO})$  berada dalam julat  $1674 \text{ cm}^{-1}$  hingga  $1658 \text{ cm}^{-1}$ , semakin tinggi kekuatan penarikan elektron ligan ditiolena, maka semakin tinggi nilai regangan  $\nu(\text{NO})$ . Kompleks  $ML_3$  memiliki dua kumpulan penukarganti Cl pada ligan ditiolena dan sifat penarikan elektron ini mengurangkan ketumpatan elektron pada logam pusat lalu mengurangkan berlakunya pendermaan elektron kebelakang  $\text{Mo} \rightarrow \text{NO} (d\pi \rightarrow p\pi)$ . Sehubungan itu, meningkatkan kecenderungan penerimaan elektron luaran untuk menjalani penurunan  $\text{Mo}^{2+}/\text{Mo}^+$ . Manakala,  $ML_1$  memiliki kumpulan penderma elektron iaitu metil yang meningkatkan ketumpatan elektron pada logam pusat serta meningkatkan kecenderungan pendermaan elektron kebelakang berlaku dan seterusnya populasi elektron orbital  $\pi^*$  NO juga meningkat. Ini menyebabkan penurunan tertib ikatan bagi NO.

### ANALISIS KESTABILAN FOTO

Bahan pemeka foto seharusnya stabil di bawah pelbagai keadaan dan tidak mudah terurai atau sensitif terhadap tindak balas kimia apabila disinarkan cahaya. Penggunaan



RAJAH 1. Spektrum UV-Vis kompleks dengan kehadiran  $MV^{2+}$ , pada masa sinaran cahaya: 0 jam dan 24 jam

$MV^{2+}$  adalah sebagai penerima elektron yang melengkapi sistem pemisahan air. Spektrum UV-Vis bagi semua kompleks menunjukkan suatu puncak penyerapan molar yang tinggi dan lebar ( $\lambda_{\text{maks}} = 574\text{--}589 \text{ nm}$ ). Perbincangan seterusnya akan merujuk kepada puncak ini.

Dengan kehadiran  $MV^{2+}$ , keserapan molar bagi  $ML_1$ ,  $ML_2$  dan  $ML_3$  berkurangan secara perlahan pada awal pendedahan dan menjadi lebih cepat selepas 8 jam. Selepas 24 jam perbezaan keserapan molar bagi semua kompleks (30 – 44%) didapati lebih tinggi berbanding dengan keserapan molar kompleks tanpa kehadiran  $MV^{2+}$  (23 – 35%) (Rajah 1 dan Jadual 2). Secara keseluruhannya kompleks  $ML_1$  adalah paling stabil dalam kedua-dua keadaan kajian. Penurunan keserapan molar adalah disebabkan oleh pengoksidaan kompleks kerana bertindak balas dengan gas oksigen yang terhasil dari penguraian molekul air. Kehadiran  $MV^{2+}$  akan meningkatkan kadar penguraian molekul air kepada  $\text{H}_2$  dan  $\text{O}_2$ , walau bagaimanapun, oksigen yang terhasil, jika tidak diasingkan akan bertindak balas dengan kompleks dengan kehadiran cahaya dan ini menyumbang kepada penguraian kompleks pemeka foto (Katakis et al. 1992).

JADUAL 2. Peratusan pengurangan penyerapan molar

Kompleks	Kepekatan ( $10^{-4}$ M)	MV <sup>2+</sup> ( $10^{-2}$ M)	$\epsilon_1^a$ (%)	$\epsilon_2^b$ (%)
ML <sub>1</sub>	1.00	1.01	23.15	30.69
ML <sub>2</sub>	0.99	1.03	25.13	44.01
ML <sub>3</sub>	1.01	1.04	35.11	37.35

<sup>a</sup> Peratusan pengurangan penyerapan molar: Tanpa MV<sup>2+</sup>

<sup>b</sup> Peratusan pengurangan penyerapan molar: Dengan kehadiran MV<sup>2+</sup>

Kestabilan kompleks juga boleh diperlihatkan menerusi perubahan warna larutan daripada warna biru tua ke biru-kekuningan pudar. Selain itu, kemunculan puncak penyerapan molar yang baru ( $\lambda_{\text{maks}} = 432\text{-}588$  nm) diperhatikan dalam spektrum UV-Vis bagi kompleks ML<sub>1</sub> dan ML<sub>2</sub> (Rajah 1). Keadaan ini mungkin disebabkan oleh tindak balas yang berlaku pada gelang benzena ligan ditiolena. Kereaktifan gelang benzena ligan ditiolena dipengaruhi oleh kumpulan penukarganti yang terikat padanya. Kompleks ML<sub>3</sub> memiliki dua atom Cl, manakala kompleks ML<sub>1</sub> memiliki satu kumpulan metil. Kedua-dua kumpulan ini adalah bersifat sebagai pengarah *orto* dan *para*, namun Cl juga bersifat penyahaktifan manakala metil mengaktifkan gelang benzena. Oleh itu, tindak balas elektrofilik mungkin berlaku pada gelang benzena bagi ligan ditiolena ML<sub>1</sub> dan menyumbang kepada kemunculan puncak serapan baru. Walau bagaimanapun, fenomena ini tidak secara langsung mempengaruhi kestabilan-foto. Titik isobestik tidak berubah untuk ketiga-tiga kompleks semasa pendedahan kepada cahaya dan ini menggambarkan bahawa tiada perubahan total terhadap struktur molekul berlaku semasa ujian kestabilan foto berlangsung.

#### KESIMPULAN

[MoTp\*NO(ditiolena)] menunjukkan keupayaan redoks yang berbalik dan kebolehan penyerapan elektronik dalam julat cahaya nampak serta memiliki kestabilan yang tinggi terhadap sinaran cahaya. Disamping itu, kestabilan tersebut boleh dikawal dengan menggunakan kumpulan penukarganti pada ligan ditiolena. Kajian menunjukkan kompleks ML<sub>1</sub> adalah paling stabil berbanding kompleks ML<sub>2</sub> dan ML<sub>3</sub>. Data yang diperoleh menunjukkan bahawa kompleks [MoTp\*NO(ditiolena)] adalah berpotensi sebagai bahan pemeka foto dalam sel foto-elektrokimia.

#### PENGHARGAAN

Penghargaan kepada UKM bagi geran penyelidikan UKM-GUP-BTT-07-30-190 kerana membiayai kajian ini serta UKM-OUP-TK-16-73/2010 & 2011 bagi cuti sabbatical MBKassim.

#### RUJUKAN

- Alobaidi, N., Chaudhury, M., Clague, D., Jones, C.J. & Pearson, J.C., McCleverty, J.A. & Salam S.S. 1987. Monometallic, homo- and hetero-bimetallic complexes based on redox active tris(3,5-dimethylpyrazolyl)borato-molybdenum and -tungsten nitrosyls. Part 4. The effects of ligating atom type on the reduction potentials of monometallic complexes. *Journal of the Chemical Society, Dalton Transactions* (7): 1733-1736.
- Alobaidi, N., Jones, C.J. & McCleverty, J.A. 1989. Chelate complexes containing the {Mo(NO)HB(3,5-Me<sub>2</sub>C<sub>3</sub>N<sub>2</sub>H<sub>3</sub>)} moiety and an example of a pyrazole substitution reaction involving the HB(3,5-Me<sub>2</sub>C<sub>3</sub>N<sub>2</sub>H<sub>3</sub>) ligand. *Polyhedron* 8: 1033-1037.
- Falaras, P., Mitsopoulou, C.A., Argyropoulos, D., Lyris, E., Psaroudakis, N., Vrachnou, E. & Katakis, D. 1995. Synthesis, cyclic voltammetric and electrospray mass spectrometric studies of a series of tris-substituted 1,2-dithiolene complexes of tungsten and molybdenum. *Inorganic Chemistry* 34: 4536-4542.
- Fujishima, A. & Honda, K. 1972. Electrochemical photolysis of water at a semiconductor electrode. *Nature* 238 : 37-38.
- Greenwood, N.N. & Earnshaw, A. 1984. *The Chemistry of the Elements* Oxford, UK: Pergamon Press.
- Joshi, H.K., Inscore, F.E., Schirlin, J.T., Dhawan, I.K., Carducci, M.D., Bill, T.G. & Enemark, J.H. 2002. Six-coordinate molybdenum nitrosyls with a single ene-1,2 -dithiolate ligand. *Inorganica Chimica Acta* 337: 275- 286.
- Katakis, D., Mitsopoulou, C. & Konstantatos, J. 1992. Photocatalytic splitting of water. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry* 68: 375-388.
- Lyris, E., Argyropoulos, D., Mitsopoulou, C.A., Katakis, D. & Vrachnou, E. 1997. New catalyst in the photo-oxidation of water. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry* 108: 51-54.
- McCleverty, J.A., Seddon, D., Bailey, N.A. & Walker, N.W. 1976. The chemistry of cyclopentadienyl and related nitrosyl complexes of molybdenum. Part V. Dihalogenonitrosyl[tris(pyrazolyl)borato]molybdenum complexes, their alcoholysis, and the crystal structure of chloronitrosylisopropoxo[tris(4-chloro-3,5-dimethylpyrazolyl)borato]molybdenum. *Journal of the Chemical Society, Dalton Transactions* (10): 898-908.
- McCleverty, J.A. & Ward, M.D. 1998. The role of bridging ligands in controlling electronic and magnetic properties in polynuclear complexes. *Accounts of Chemical Research* 31: 842-851.

Mueller-Westerhoff U.T., Vance, B. & Yoon, D.L. 1991. The synthesis of dithiolenes dye with strong near-IR absorption. *Tetrahedron* 47(6): 909-932.

Wlodarczyk, A., Maher, J.P., Coles, S., Hibbs, D.E., Hursthouse, M.H.B., Abdul Malik & K.M. 1997. Oxo-bridged binuclear molybdenum nitrosyl halides: structural and redox studies, mixed-valence behavior, and characterisation of mononuclear hydroxo precursors. *Journal of Chemical Society, Dalton Transaction* (15): 2597-2606.

Pusat Pengajian Sains Kimia dan Teknologi Makanan  
Fakulti Sains dan Teknologi  
Universiti Kebangsaan Malaysia  
43600 UKM Bangi, Selangor D.E.  
Malaysia

\*Pengarang untuk surat-menyurat; email: mbkassim@ukm.my

Diserahkan: 29 Jun 2011

Diterima: 2 November 2011