

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL  
INSTITUTO DE QUÍMICA

Thiago Cezar da Silva

**Rotas de encapsulamento via processos sol-gel no  
desenvolvimento de sensores termocrômicos**

Porto Alegre, 2024

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL  
INSTITUTO DE QUÍMICA

Thiago Cezar da Silva

**Rotas de encapsulamento via processos sol-gel no desenvolvimento de  
sensores termocrômicos**

Trabalho de conclusão de curso apresentado junto à atividade de ensino “Trabalho de Conclusão de Curso – QUI” do Curso de Química Bacharelado, como requisito parcial para a obtenção do grau de Bacharel em Química.

Prof. Dr. João Henrique Zimnoch dos Santos

Porto Alegre, 2024

## FICHA CATALOGRÁFICA

### CIP - Catalogação na Publicação

Silva, Thiago Cezar da  
Rotas de encapsulamento via processos sol-gel no  
desenvolvimento de sensores termocrômicos / Thiago  
Cezar da Silva. -- 2024.  
43 f.  
Orientador: João Henrique Zimnoch dos Santos.

Trabalho de conclusão de curso (Graduação) --  
Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Instituto  
de Química, Bacharelado em Química, Porto Alegre,  
BR-RS, 2024.

1. sol-gel. 2. sensores. 3. termocromismo. 4.  
cloreto de cobalto II. I. Santos, João Henrique  
Zimnoch dos, orient. II. Título.

Elaborada pelo Sistema de Geração Automática de Ficha Catalográfica da UFRGS com os dados fornecidos pelo(a) autor(a).

## FOLHA DE APROVAÇÃO

Thiago Cezar da Silva

### **Rotas de encapsulamento via processos sol-gel no desenvolvimento de sensores termocrômicos**

Trabalho de Conclusão de Curso apresentado como requisito parcial à obtenção do título de bacharel em Química do Instituto de Química da Universidade Federal do Rio Grande do Sul.

Orientador: Prof. Dr. João Henrique Zimnoch dos Santos

**Aprovada em:** Porto Alegre, 14 de agosto de 2024.

**BANCA EXAMINADORA:**

Prof. Dr. João Henrique Zimnoch dos Santos – Instituto de Química - UFRGS

---

Nome e titulação do orientador  
Instituição do orientador

Prof. Dra. Silma Alberton Corrêa – Instituto de Química - UFRGS

---

Nome e titulação do membro da banca  
Instituição do membro da banca

Prof. Dra. Leandra Campo – Instituto de Química - UFRGS

---

Nome e titulação do membro da banca  
Instituição do membro da banca

Dedico este trabalho aos meus amados pais que me deram total apoio financeiro e emocional durante todos esses anos , ao meu irmão que é tudo para mim e aos meus colegas e amigos que ajudaram de alguma forma na caminhada até aqui.  
Muito obrigado!

## **AGRADECIMENTOS**

Primeiramente agradeço imensamente aos meus pais pelo apoio financeiro e emocional à minha escolha de trocar de estado para realizar este curso. Agradeço também ao meu orientador Prof. Dr. João Henrique Zimnoch dos Santos pela orientação e paciência na elaboração deste trabalho.

Aos meus colegas de laboratório, em especial, a Cristiane dos Santos por todo acompanhamento e auxílio na parte experimental e teórica.

E por fim, aos meus amigos mais próximos pelo apoio e pelas conversas questões da vida que me permitiram manter uma boa saúde mental, beneficiando indiretamente a realização deste trabalho.

## RESUMO

O trabalho apresenta a avaliação do impacto da rota de síntese no termocromismo de materiais à base de cloreto de cobalto II encapsulados em sílica, utilizando diferentes rotas sol-gel. As propriedades morfológicas foram avaliadas por microscopia eletrônica de varredura, as propriedades texturais por porosimetria de N<sub>2</sub> e as propriedades termocrômicas por meio de um estudo da faixa de temperatura de transição. A análise estrutural foi realizada por espectroscopia no infravermelho com transformada de Fourier. A mudança de cor foi monitorada na faixa de temperatura de 60 a 100 °C. Os espectros de infravermelho de todos os materiais mostraram os picos característicos da inserção do cobalto na matriz de sílica (488 e 655 cm<sup>-1</sup>). As micrografias e os dados obtidos pela porosimetria corroboram a afirmação de que houve encapsulamento do complexo de cobalto. O estudo de termocromismo, juntamente com o software DRS (Color), demonstrou o comportamento reversível dos materiais sintetizados, que trocam de cor em determinadas temperaturas e retornam às suas cores originais quando resfriados. Verificou-se que a rota sintética tem impacto direto no termocromismo do material, em sua morfologia, assim como na temperatura em que a transição ocorre. A rota ácida produziu um material com diferença de cor total de 18,45, com transição em 85 °C e uma superfície recoberta por grânulos de CoCl<sub>2</sub>. O material gerado pela rota básica teve sua transição em 60 °C, com uma diferença de cor de 7,81 e uma superfície recoberta por aglomerados do complexo de cobalto. A rota silicato gerou um material com diferença de cor de 2,54, indicando que a transição não pode ser identificada sem o auxílio de equipamentos; a superfície continha CoCl<sub>2</sub> cristalizado. A rota fluoreto gerou um material com área específica elevada, diferença de cor de 9,41 e uma superfície sem sinais do complexo, o que indica que ele está internalizado.

**Palavras-chave:** sol-gel, termocromismo, cloreto de cobalto, sensores

## ABSTRACT

The work presents an evaluation of the impact of the synthesis route on the thermochromism of materials based on cobalt(II) chloride encapsulated in silica, using different sol-gel routes. Structural properties were assessed by scanning electron microscopy, textural properties by N<sub>2</sub> porosimetry, and thermochromic properties through a study of the temperature transition range. Elemental analysis was conducted by infrared spectroscopy with Fourier transform. Color change was monitored within the temperature range of 60 to 100 °C. The infrared spectra of all materials showed characteristic peaks of cobalt insertion in the silica matrix (488 and 655 cm<sup>-1</sup>). The micrographs and data obtained from porosimetry support the claim that the cobalt complex was encapsulated. The thermochromism study, along with the DRS (Color) software, demonstrated the reversible behavior of the synthesized materials, which change color at specific temperatures and revert to their original colors when cooled. It was found that the synthetic route has a direct impact on the thermochromism of the material, its morphology, as well as the temperature at which the transition occurs. The acidic route produced a material with a total color difference of 18.45, with a transition at 85 °C and a surface covered with CoCl<sub>2</sub> granules. The material generated by the basic route had a transition at 60 °C, a color difference of 7.81, and a surface covered with cobalt complex aggregates. The silicate route produced a material with a color difference of 2.54, indicating that the transition could not be identified without the aid of equipment; the surface contained crystallized CoCl<sub>2</sub>. The fluoride route generated a material with a high specific surface area, a color difference of 9.41, and a surface without signs of the complex, indicating that it is internalized.

**Keywords:** sol-gel, thermochromism, sensors, cobalt chloride



## LISTA DE ABREVIACOES

CIE – Comisso internacional de iluminao

TA – Temperatura ambiente

MEV – Microscopia eletrnica de varredura

FTIR – Infravermelho com transformada de Fourier

ATR – Refletncia total atenuada

TEOS – Tetraetilortossilicato

TMOS – Tetrametilortossilicato

DRS – Espectroscopia de refletncia difusa

BET - Brunauer-Emmett-Teller

BJH - Barrett-Joyner-Halenda

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

ESQUEMA 1 – Condições de Síntese via métodos sol-gel dos sensores encapsulados.....	18
ESQUEMA 2 – Representação tridimensional do Sistema CIELab: $L^*a^*b^*$ e planos de cor $a^*$ e $b^*$ com valor de claridade ( $L^*$ ) constante <sup>7,8</sup> .....	19
FIGURA 1 – Equipamento utilizado no estudo do comportamento termocromico dos materiais.....	22
FIGURA 2 – Amostras a temperatura ambiente (TA) e a 90°C.....	24
FIGURA 3 – Isotermas de adsorção e dessorção de N <sub>2</sub> das amostras RA b e RA.....	28
FIGURA 4 – Isotermas de adsorção e dessorção de N <sub>2</sub> das amostras RB b e RB.....	27
FIGURA 5 – Isotermas de adsorção e dessorção de N <sub>2</sub> das amostras RS b e RS.....	27
FIGURA 6 – Isotermas de adsorção e dessorção de N <sub>2</sub> da amostra RF.....	28
FIGURA 7 – Micrografia obtida por MEV para CoCl <sub>2</sub> .....	30
FIGURA 8 – Micrografia obtida por MEV para RA b, RA, RB b e RB.....	30
FIGURA 9 – Micrografia obtida por MEV para RS b, RS e RF.....	31
FIGURA 10 – Espectros de FTIR e ATR para a amostra RA.....	33
FIGURA 11 – Corte entre 1400 cm <sup>-1</sup> e 400 cm <sup>-1</sup> dos espectros de FTIR e ATR para a amostra RA.....	34
FIGURA 12 – Espectro de FTIR para RA b e RA.....	32
FIGURA 13 – Espectro de FTIR para RF.....	33

## LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Dados de cor e de faixa de temperatura de transição.....	25
Tabela 2 – Tabela com os valores de L, a, b e C para os materiais sintetizados.....	26
Tabela 3 – Tabela contendo os valores de $\Delta C$ , $\Delta L$ e $\Delta E$ .....	26
Tabela 4 – Dados de área específica, diâmetro médio de poro, volume médio de poro e contante C.....	29
Tabela 5 – Dados obtidos por FTIR em modo de transmissão.....	34
Tabela 6 – Razão entre as intensidades dos picos da sílica e do cobalto para os espectros de FTIR e ATR de RA, RB, RS e RF.....	35

## SUMÁRIO

<b>1 INTRODUÇÃO</b> .....	<b>12</b>
<b>2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA</b> .....	<b>13</b>
2.1 SÍNTESE SOL-GEL .....	13
2.2 TERMOCROMISMO .....	14
2.3 EMBALAGENS INTELIGENTES .....	15
<b>3 OBJETIVOS</b> .....	<b>16</b>
3.1 OBJETIVOS ESPECIFICOS .....	16
<b>4 METODOLOGIA</b> .....	<b>17</b>
4.1 REAGENTES .....	17
4.2 SÍNTESE DOS MATERIAIS TERMOCRÔMICOS .....	17
4.2.1 Síntese por rota àcida .....	17
4.2.2 Síntese por rota básica .....	18
4.2.3 Síntese por rota silicato .....	18
4.2.4 Síntese por rota fluoreto .....	18
4.3 CARACTERIZAÇÃO .....	19
4.3.1 Espectroscopia por refletância difusa no UV-Vis .....	19
4.3.2 Espectroscopia molecular no infravermelho .....	21
4.3.3 Porosimetria de N <sub>2</sub> .....	22
4.3.4 Microscopia eletrônica de varredura .....	22
4.4 ESTUDO DO COMPORTAMENTO TERMOCRÔMICO .....	22
<b>5 RESULTADOS E DISCUSSÃO</b> .....	<b>24</b>
5.1 ANÁLISE DE COR .....	24
5.1.1 Ensaio da troca de coloração .....	24
5.1.2 Espectroscopia por Refletância Difusa no UV-VIS .....	25
5.2 ANÁLISE MORFOLÓGICA .....	27
5.2.1 Porosimetria de N <sub>2</sub> .....	27
5.2.2 Microscopia eletrônica de varredura .....	30
5.2.3 Espectroscopia de Infravermelho (FTIR e ATR) .....	33
<b>6 CONCLUSÃO</b> .....	<b>37</b>
<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS</b> .....	<b>39</b>
<b>APÊNDICE A — ESPECTROS DE FTIR DOS MATERIAIS</b> .....	<b>41</b>

## 1 INTRODUÇÃO

Sensores termocrômicos são materiais que alteram sua cor em resposta a mudanças de temperatura e possuem aplicação em diversas áreas, como medicina, processos industriais, sistemas de resfriamento, sistemas de prevenção de superaquecimento e armazenamento de produtos. O mercado de embalagens inteligentes vem crescendo exponencialmente nos últimos anos devido ao aumento da demanda por segurança alimentar, desenvolvimento de novas tecnologias de rastreamento e controle e sustentabilidade.

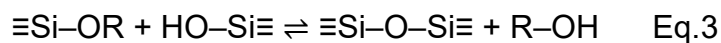
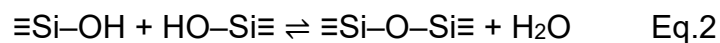
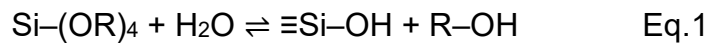
Por ser uma resposta visual, trata-se de um sensor de fácil utilização, que não requer nenhum conhecimento prévio complexo; basta saber a cor inicial, a cor final e a faixa de temperatura em que ocorre a mudança de cor. Trata-se de um dispositivo especialmente útil em embalagens inteligentes, que tem como principal objetivo comunicar-se com o consumidor, trazendo informações sobre a temperatura à qual o produto foi exposto ao longo de sua trajetória, desde a produção até aquele momento.

Neste trabalho, foi investigado o efeito de diferentes rotas sintéticas para o encapsulamento do complexo de cobalto II na matriz de sílica, assim como seu impacto na faixa de temperatura de troca de cor do material. Foi avaliada a aplicação desses sensores de acordo com critérios como faixa de troca de cor, facilidade de identificação da troca de cor e reversibilidade do processo.

## 2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

### 2.1 SÍNTESE SOL-GEL

O método sol-gel é utilizado na síntese de materiais como sílica, vidros, cerâmicas e materiais híbridos, entre outros. O processo inicia-se com a preparação de uma fase sol, que pode ser definida como uma suspensão coloidal na qual partículas com dimensões de aproximadamente 1-1000 nm estão dispersas em uma fase líquida<sup>1,2</sup>. Essa fase pode ser composta por alcóxidos, como tetraetóxido de silício ou tetrametóxido de silício, dissolvidos em um solvente, como água ou etanol. A partir disso, formam-se, através de subsequentes reações de hidrólise e condensação (Equações 1 a 3)<sup>3</sup>, a fase gel, que pode ser definida como uma rede sólida, porosa e contínua que engloba e é rodeada por uma fase líquida. Esta fase líquida pode ser moldada de acordo com a aplicação desejada. Finalmente, passa-se à etapa de secagem do material, para remoção do solvente e obtenção do material sólido desejado, que pode ser sílica, vidro, cerâmica, entre outros<sup>2</sup>.



No entanto, as reações são cineticamente desfavoráveis devido à baixa polaridade da ligação siloxano (Si-O-Si), o que dificulta a ativação necessária para que ocorram de maneira eficiente. Para contornar esse desafio, é comum o uso de catalisadores que aceleram as etapas de hidrólise e condensação. Esses catalisadores são classificados como ácidos ou básicos, dependendo do meio reacional desejado.

Quando um catalisador ácido, como o HCl em solução aquosa, é empregado, o primeiro passo envolve a protonação do grupo siloxano. Esse processo aumenta a reatividade do átomo de silício, tornando-o mais suscetível ao ataque nucleofílico de moléculas de água<sup>3</sup>. Assim, ocorre a hidrólise, resultando na formação de grupos silanol. Uma vez gerados os grupos silanol, eles têm a capacidade de interagir com

outros grupos siloxano, promovendo a condensação. Esse processo não apenas permite a eliminação de água, mas também propaga o crescimento da rede polimérica, resultando em uma estrutura mais complexa e interconectada.

O processo sol-gel também pode ser realizado em meio alcalino, utilizando, por exemplo, NaOH. Nesse contexto, o mecanismo de reação apresenta algumas diferenças significativas em relação ao meio ácido. Inicialmente, ocorre um ataque nucleofílico ao átomo de silício por uma hidroxila ou por um íon  $\equiv\text{Si}-\text{O}^-$ , que foi previamente desprotonado devido às condições do meio reacional. Esse ataque inicia as reações de hidrólise e condensação, levando à formação de uma rede polimérica. Durante esse processo, a condensação dos grupos silanol tende a ocorrer preferencialmente no centro das cadeias, resultando na formação de partículas menores<sup>4,5</sup>.

Outra possibilidade de síntese consiste em utilizar um catalisador básico mais forte, como uma fonte de fluoreto, que pode acelerar a reação. A presença de fluoretos não apenas aumenta a taxa de reação, mas também pode alterar as propriedades físico-químicas dos materiais resultantes. Os fluoretos podem promover interações mais eficientes entre os grupos reativos, possibilitando a formação de redes poliméricas com características distintas, como maior resistência térmica, estabilidade química e, em algumas aplicações, propriedades ópticas melhoradas.

À medida que essas reações se repetem, forma-se uma rede tridimensional que confere propriedades únicas ao material final, essenciais para as aplicações desejadas em diversas áreas, como a fabricação de cerâmicas, revestimentos e materiais nanométricos ou nanoestruturados. Assim, a escolha do catalisador e das condições reacionais desempenha um papel crucial na definição das propriedades finais dos materiais obtidos pelo processo sol-gel<sup>6,7</sup>.

## 2.2 TERMOCROMISMO

Termocromismo é definido pela IUPAC<sup>8</sup> como uma transformação induzida termicamente em uma estrutura molecular ou em um sistema (como uma solução). Essa transformação é termicamente reversível e resulta em uma mudança espectral, geralmente, mas nem sempre, relacionada à cor visível.

## 2.3 EMBALAGENS INTELIGENTES

As embalagens inteligentes têm emergido como uma inovação relevante na indústria de alimentos e bens de consumo, incorporando tecnologias que melhoram a funcionalidade e a experiência do consumidor. As embalagens inteligentes não apenas protegem os produtos, mas também proporcionam informações em tempo real sobre a condição do produto, como temperatura, umidade e prazo de validade. Essa capacidade de monitoramento contribui para a segurança alimentar e a redução de desperdícios<sup>9</sup>.

Diversas tecnologias têm sido integradas às embalagens, incluindo sensores, códigos QR e materiais com memória. A utilização de sensores em embalagens permite a detecção de alterações nas condições ambientais, oferecendo uma resposta rápida para evitar a deterioração dos alimentos.

A interação do consumidor com as embalagens inteligentes é um tema que vem ganhando atenção. Pesquisas sugerem que o uso de tecnologia interativa nas embalagens pode aumentar o engajamento do consumidor, influenciar suas decisões de compra e melhorar a experiência geral com o produto.



### 3 OBJETIVOS

O presente trabalho tem como objetivo avaliar o impacto das rotas de síntese nas propriedades finais do material, como coloração e sensibilidade a temperatura.

#### 3.1 Objetivos específicos

- Correlacionar a natureza da rota de síntese com as propriedades texturais, estruturais e morfológicas dos materiais resultantes
- Avaliar a natureza reversível dos sensores produzidos
- Avaliar a capacidade perceptível das mudanças de cor produzidas em função da rota sol-gel empregada

## 4 METODOLOGIA

### 4.1 REAGENTES

- Ácido clorídrico (HCl) PA – Dinâmica
- Água deionizada
- Álcool etílico (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH) PA – Merck
- Cloreto de Cobalto II – CoCl<sub>2</sub> - Sigma-Aldrich
- Fluoreto de amônio
- Hidróxido de amônio (NH<sub>4</sub>OH) PA – Nuclear
- Hidróxido de sódio (NaOH) PA –Qualitec
- Metassilicato de sódio (Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>) PA – J.T.Baker Chemical Co.
- Tetraetilortossilicato – TEOS (Si (OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>), >98% - SigmaAldrich

### 4.2 SÍNTESE DOS MATERIAIS TERMOCRÔMICOS

A síntese dos materiais termocrômicos foi realizada pelo método sol-gel. Foram utilizados tetraetilortossilicato e metassilicato de sódio como precursores, alternando-se entre catalisadores ácidos e básicos. Todos os produtos obtidos foram secos a 90 °C e pulverizados em um gral de porcelana.

#### 4.2.1 Síntese por rota ácida

A rota ácida consistiu no processo de encapsulamento do cloreto de cobalto II sob catálise ácida. Primeiramente, foram dissolvidos 300 mg de CoCl<sub>2</sub> em 10 mL de tetraetoxissilano (TEOS) durante 10 minutos. Em seguida, foram adicionados 8,6 mL de HCl 0,5 N. A reação foi mantida à temperatura ambiente, sob agitação constante, até completa gelificação, que ocorreu de um dia para o outro. Juntamente, foi realizado um controle branco, sem a adição de CoCl<sub>2</sub>. O material foi denominado “RA” quando continha o cobalto e “RA b” para o controle branco.

#### 4.2.2 Síntese por rota básica

A rota básica foi assistida por catálise básica. Inicialmente, 300 mg de  $\text{CoCl}_2$  foram dissolvidos em 10 mL de TEOS durante 10 minutos. Posteriormente foram adicionados 5 mL de  $\text{NH}_4\text{OH}$  0,2 N. A reação foi mantida sob temperatura ambiente e agitação constante durante a noite. O branco foi realizado nas mesmas condições, porém sem a adição de  $\text{CoCl}_2$ . O material obtido foi denominado “RB” e “RB b” quando contém e quando não contém cobalto respectivamente.

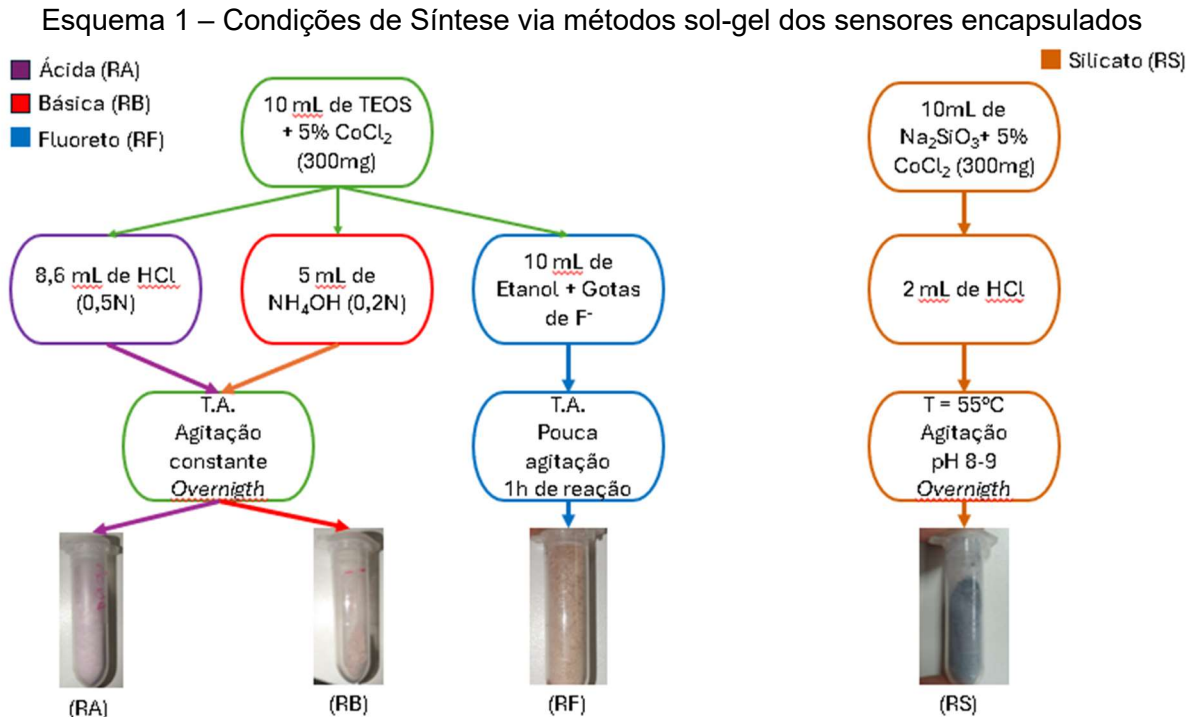
#### 4.2.3 Síntese por rota silicato

A rota silicato<sup>6,7</sup> também empregou uma catálise ácida, porém o precursor de silício foi o silicato de sódio. A primeira etapa consistiu em dissolver 300 mg de  $\text{CoCl}_2$  em 10 mL de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  e, em seguida, foram adicionados 2 mL de HCl. A síntese ocorreu sob temperatura controlada a 55 °C, utilizando um banho de silicone. O pH da reação foi ajustado com NaOH para a faixa entre 8 e 9. Por fim, o material foi mantido sob agitação constante até o dia seguinte. O material branco foi obtido da mesma forma, exceto sem a adição de  $\text{CoCl}_2$ . Foi atribuída a nomenclatura “RS” e “RS b” para o material com e sem o cloreto de cobalto II, respectivamente.

#### 4.2.4 Síntese por rota fluoreto

A rota via fluoreto também utilizou uma catálise básica. No início, foram dissolvidos 300 mg de  $\text{CoCl}_2$  em 10 mL de TEOS; em seguida, adicionou-se 10 mL de etanol e gotas de fluoreto de amônio ( $\text{NH}_4\text{F}$ ). A reação foi mantida à temperatura ambiente e foi levemente agitada logo após a adição do catalisador. Em seguida, foi mantida em repouso, observando-se a gelificação cerca de 1 hora após o término da agitação. Nesta rota, não foi sintetizado um controle branco. A amostra obtida foi nomeada “RF”.

O Esquema 1 apresenta as principais etapas envolvidas na síntese envolvendo as rotas sol-gel aqui empregadas.



### 4.3 CARACTERIZAÇÃO

Os materiais obtidos foram caracterizados pelas técnicas de espectroscopia de infravermelho por transformada de Fourier e por refletância total atenuada, microscopia eletrônica de varredura, espectroscopia de refletância difusa e porosimetria de nitrogênio

#### 4.3.1 Espectroscopia por refletância difusa no UV-Vis

Os materiais foram analisados por refletância difusa no UV-Vis em um espectrofotômetro Varian Cary 100, cobrindo a faixa de comprimento de onda de 200 a 800 nm, no modo de refletância. As amostras na forma de pó foram analisadas diretamente em uma célula de quartzo de 10 mm, utilizando o acessório Varian Labsphere DRA-CA-30, que é empregado para análise de sólidos.

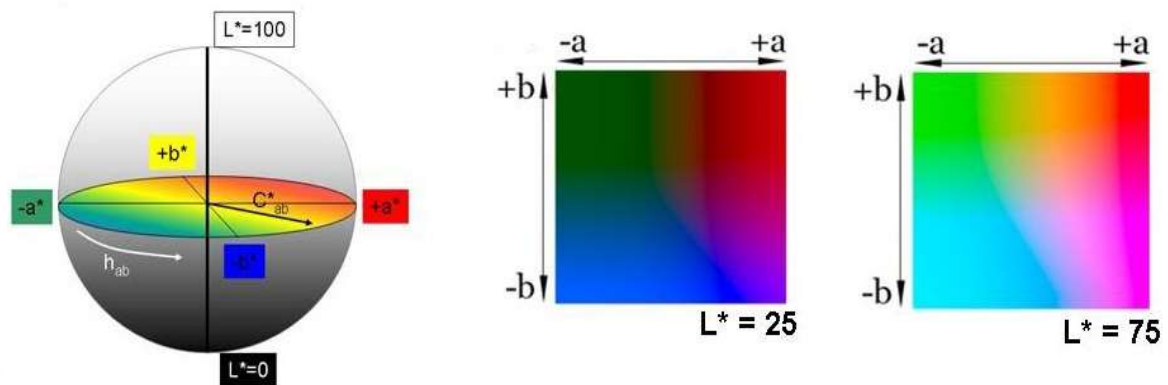
Para a análise de cor, as amostras na forma de pó foram igualmente analisadas diretamente em uma célula de quartzo de 10 mm com o acessório Varian Labsphere

DRA-CA-30, usando refletância difusa em um espectrofotômetro Varian Cary 100, operando na faixa de comprimento de onda de 400 a 700 nm. O sistema CIE (Comissão Internacional de Iluminação)<sup>12,13</sup> foi utilizado para descrever a cor, com os padrões adotados sendo a fonte iluminante (D65) e o observador (2°).

Os valores de leitura obtidos são distribuídos tridimensionalmente em coordenadas colorimétricas por meio de um software específico (Cary Win UV Color®). No espaço psicométrico CIELab, a cor é descrita por luminosidade ( $L^*$ ), coordenada  $a^*$  (conteúdo de vermelho (+) a verde (-)) e coordenada  $b^*$  (conteúdo de amarelo (+) a azul (-)). Alternativamente, podem ser usadas coordenadas cilíndricas de luminosidade ( $L^*$ ), tonalidade ( $h^\circ$ ) e croma ( $C^*$ ).

As coordenadas obtidas para cada amostra são convertidas em valores numéricos e cálculos específicos, fornecendo dados sobre as diferenças de cor de cada material antes e após o aquecimento e em comparação com as diferentes rotas.

Esquema 2 - Representação tridimensional do Sistema CIELab:  $L^*a^*b^*$  e planos de cor  $a^*$  e  $b^*$  com valor de claridade ( $L^*$ ) constante <sup>12,13</sup>.



As equações (4) a (8) definem as coordenadas CIE  $L^*$   $a^*$   $b^*$  e  $L^*$   $C^*$  ângulo Hue conforme Fairchild<sup>14</sup>:

$$L^* = 116 (Y/Y_0)^{1/3} - 16 \quad (\text{luminosidade métrica}) \quad \text{Eq.4}$$

$$a^* = 500 [(X/X_0)^{1/3} - (Y/Y_0)^{1/3}] \quad (\text{eixo vermelho (+) / verde (-)}) \quad \text{Eq.5}$$

$$b^* = 200 [(Y/Y_0)^{1/3} - (Z/Z_0)^{1/3}] \quad (\text{eixo amarelo (+) / azul (-)}) \quad \text{Eq.6}$$

$$C^* = [(a^*)^2 + (b^*)^2]^{1/2} \quad (\text{croma métrica}) \quad \text{Eq.7}$$

$$\text{Hue} = \arctan b^*/a^* \quad (\text{tonalidade métrica}) \quad \text{Eq.8}$$

Para  $X/X_0$ ,  $Y/Y_0$  e  $Z/Z_0 > 0,008856$

As diferenças entre as amostras analisadas e um padrão estabelecido são calculadas conforme as equações (9) a (14).

$$\Delta L^* = L^*_{\text{amostra}} - L^*_{\text{padrão}} \quad \text{Eq.9}$$

$$\Delta a^* = a^*_{\text{amostra}} - a^*_{\text{padrão}} \quad \text{Eq.10}$$

$$\Delta b^* = b^*_{\text{amostra}} - b^*_{\text{padrão}} \quad \text{Eq.11}$$

$$\Delta C^* = C^*_{\text{amostra}} - C^*_{\text{padrão}} \quad \text{Eq.12}$$

$$\Delta E^* = [(\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2]^{1/2} \quad \text{Eq.13}$$

$$\Delta H^* = [(\Delta E^*)^2 - (\Delta L^*)^2 - (\Delta C^*)^2]^{1/2} \quad \text{Eq.14}$$

#### 4.3.2 Espectroscopia molecular no infravermelho

Os espectros de infravermelho foram obtidos no espectrofotômetro Shimadzu FTIR 8300, na faixa de 400 a 4000  $\text{cm}^{-1}$ , com resolução de 4  $\text{cm}^{-1}$ . As amostras foram preparadas por pastilhamento com brometo de potássio, resultando em pastilhas com aproximadamente 2 mm de espessura e 5 mm de diâmetro.

A técnica também foi utilizada para análise por reflexão total atenuada, com um acessório acoplado. Neste caso, os materiais foram inseridos diretamente na forma de pó no equipamento, sob as mesmas condições mencionadas anteriormente. Este modo de análise foi empregado para examinar as espécies moleculares presentes na superfície dos materiais.

### 4.3.3 Porosimetria de N<sub>2</sub>

As isotermas de adsorção e dessorção de nitrogênio (N<sub>2</sub>) foram obtidas no equipamento NOVA 4200e da marca Quantachrome. A amostra passou por um pré-tratamento para desgaseificação e remoção de água e outros contaminantes que pudessem estar adsorvidos. Para isso, a amostra foi submetida a 300°C e vácuo por 3 horas.

A área específica foi determinada pelo método de Brunauer-Emmett-Teller e o diâmetro médio dos poros, assim como sua distribuição, foram determinados pelo método de Barrett-Joyner-Halenda<sup>10,11</sup>.

### 4.3.4 Microscopia eletrônica de varredura

As micrografias foram obtidas no equipamento EVO 50 da marca Zeiss, que utiliza um filamento de tungstênio e opera em tensões de 0,2 kV a 30 kV, com uma resolução nominal de 3 nm.

As amostras em pó foram fixadas em fita de carbono e metalizadas com ouro por meio de pulverização catódica, sendo preparadas pelo menos 2 dias antes da análise e armazenadas protegidas da umidade e do calor. Os registros foram realizados com ampliações de 3000x, 5000x e 10000x.

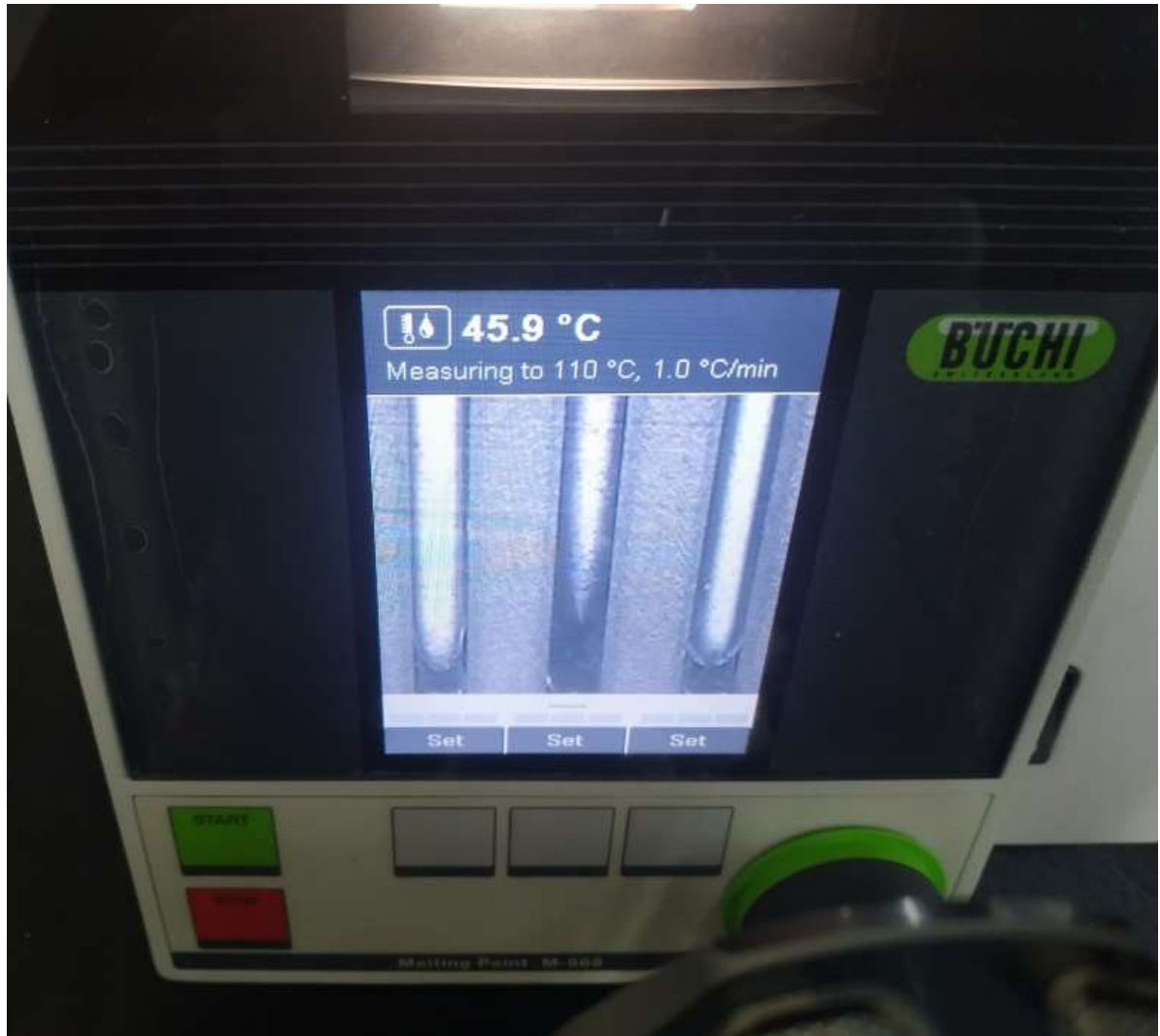
## 4.4 Estudo do comportamento termocrômico

Estudos da variação de cor com a temperatura utilizaram um equipamento de ponto de fusão, devido ao controle preciso da temperatura e da taxa de aquecimento, além da identificação visual da mudança de cor.

Inicialmente, logo após a síntese, durante o processo de secagem das amostras na estufa a 90 °C, já foi observado o comportamento termocrômico dos materiais (Figura 2). Em seguida, foi realizado um estudo para determinar a faixa de troca de cor de cada amostra. Esse estudo foi conduzido no equipamento medidor de ponto de fusão M-565 da marca Buchi. As amostras em pó foram colocadas em tubos capilares selados, que foram inseridos no equipamento. O aquecimento das amostras

foi feito inicialmente a uma taxa de 10 °C por minuto, de 25 a 120 °C, e posteriormente de 60 a 110 °C a uma taxa de 1 °C por minuto.

Figura 1 - Equipamento utilizado no estudo do comportamento termocromico





## 5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

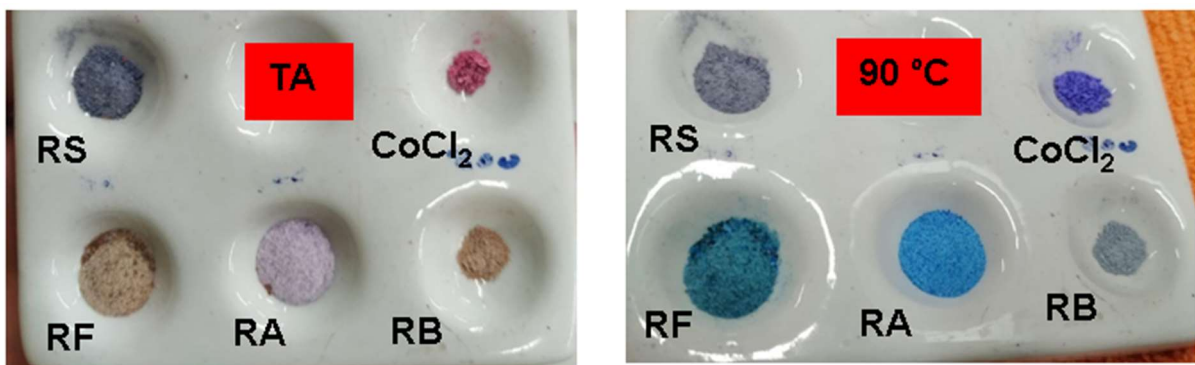
As sílicas sintetizadas pelas diferentes rotas citadas apresentaram propriedades morfológicas variadas sendo necessária a investigação de características como estrutura, cor e encapsulamento do complexo de cobalto.

### 5.1 ANÁLISE DE COR

#### 5.1.1 Ensaio da troca de coloração

No primeiro momento, verificou-se que, ao secar as amostras na estufa a 90 °C, elas mudavam de cor, como mostrado na Figura 2. A placa de porcelana é a mesma em ambas as imagens, com as mesmas amostras, mostradas à temperatura ambiente e a 90 °C, recém-retirada da estufa.

Figura 2 – Amostras a temperatura ambiente (TA) e a 90°C



A faixa de troca de temperatura de cada amostra foi determinada utilizando um equipamento de ponto de fusão. Inicialmente, as amostras foram aquecidas de 0 °C a 100 °C, com uma taxa de aquecimento de 10 °C por minuto. Observou-se que a primeira mudança de cor ocorria em torno de 60 °C. Em seguida, o aquecimento das amostras foi realizado de 50 °C a 110 °C, com uma taxa de aquecimento de 1 °C por minuto, para identificar o ponto em que a mudança de coloração começa e onde ela se encerra, determinando assim a faixa de troca de cor. Com os dados obtidos, foi montada a Tabela 1.

Tabela 1 – Dados de cor de faixa de temperatura de troca

<b>Amostra</b>	<b>Faixa de troca de cor</b>	<b>Cor Inicial / Cor Final</b>
RA	85 – 90 °C	Rosa claro / Azul
RB	60 – 65 °C	Marrom claro / Cinza claro
RS	-	-
RF	70 – 75 °C	Bege / Verde

Podemos observar pela Tabela 1 e pela Figura 3 que as amostras apresentam troca de cores em diferentes faixas de temperatura e perfeitamente visíveis a olho nu com exceção da amostra sintetizada pela rota silicato que não apresentou troca de cor passível de ser claramente identificada.

### 5.1.2 Espectroscopia por Refletância Difusa no UV-VIS

A espectroscopia por refletância difusa no UV-VIS foi utilizada em conjunto com o software Color para transformar os dados dos espectros em informações de cor no sistema CIELab.

As amostras foram avaliadas de acordo com os valores do componente de luminosidade ( $L^*$ ), que varia de 0 (preto) a 100 (branco), e dois componentes cromáticos: o valor  $a^*$  representa a transição de verde (-a) para vermelho (+a), enquanto o valor  $b^*$  representa a transição de azul (-b) para amarelo (+b). O valor de cor total ( $C^*$ ) obtido a partir dos valores de  $a^*$  e  $b^*$  indica a medida de croma (Tabela 2). As amostras foram comparadas entre si a 90 °C e à temperatura ambiente. Foram calculados os valores de diferença de cor  $\Delta C$  e de luminosidade  $\Delta L^*$  com base nos valores de C e L das amostras em ambas as temperaturas, assim como a diferença de cor total  $\Delta E^*$ , com base nos valores de  $\Delta C$  e  $\Delta L^*$  (Tabela 3).

Tabela 2 – Tabela com os valores de L, a, b e C para os materiais sintetizados.

<b>Amostra</b>	<b>L*</b>	<b>a*</b>	<b>b*</b>	<b>C*</b>
<b>CoCl<sub>2</sub></b>	71,34	6,93	3,00	7,56
<b>CoCl<sub>2</sub> - 90°C</b>	74,58	7,90	-3,56	8,68
<b>RA</b>	86,95	7,48	1,69	7,67
<b>RA - 90°C</b>	78,98	-4,09	-10,25	11,05
<b>RB</b>	86,19	4,05	8,13	9,09
<b>RB - 90°C</b>	81,71	0,12	3,08	3,09
<b>RS</b>	77,89	1,33	0,57	1,45
<b>RS - 90°C</b>	75,34	1,28	0,51	1,38
<b>RF</b>	81,67	4,45	9,89	10,85
<b>RF -90°C</b>	73,92	-5,33	0,15	5,34

Tabela 3 – Tabela contendo os valores de  $\Delta C$ ,  $\Delta L$  e  $\Delta E$ .

<b>Amostra</b>	<b><math>\Delta C</math> (dif.Cor)</b>	<b><math>\Delta L</math> (dif.intensidade)</b>	<b><math>\Delta E</math> (dif. Cor total)</b>
<b>CoCl<sub>2</sub></b>			
<b>CoCl<sub>2</sub> - 90°C</b>	1,11	3,26	7,40
<b>RA</b>			
<b>RA - 90°C</b>	3,38	-7,97	18,45
<b>RB</b>			
<b>RB - 90°C</b>	6,00	-4,48	7,81
<b>RS</b>			
<b>RS - 90°C</b>	0,07	-2,54	2,54
<b>RF</b>			
<b>RF -90°C</b>	5,34	-7,75	9,41

Observando os valores de diferença de cor entre as amostras em diferentes temperaturas, podemos inferir que todas elas apresentam variação de cor. A amostra produzida pela rota silicato possui um  $\Delta C$  de 0,07, o que indica uma troca de cor sutil e difícil de ser percebida sem o auxílio desta técnica.

Os valores de diferença de cor total indicam que as trocas de cor mais facilmente identificáveis a olho nu são as das amostras sintetizadas pela rota ácida e pela rota fluoreto, que apresentam  $\Delta L$  altos. Essas amostras correspondem às trocas de cor de rosa para azul e de bege para verde, respectivamente.

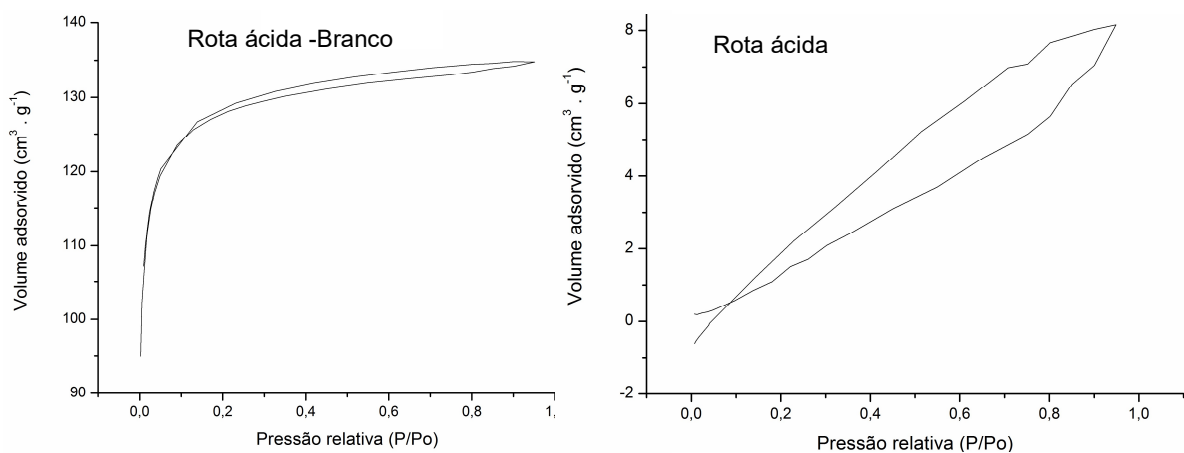
## 5.2 ANÁLISE MORFOLÓGICA

### 5.2.1 Porosimetria de N<sub>2</sub>

As amostras foram analisadas por adsorção e dessorção de nitrogênio para obter as isotermas pelo método de Brunauer, Emmett e Teller, que avalia as propriedades texturais dos materiais.

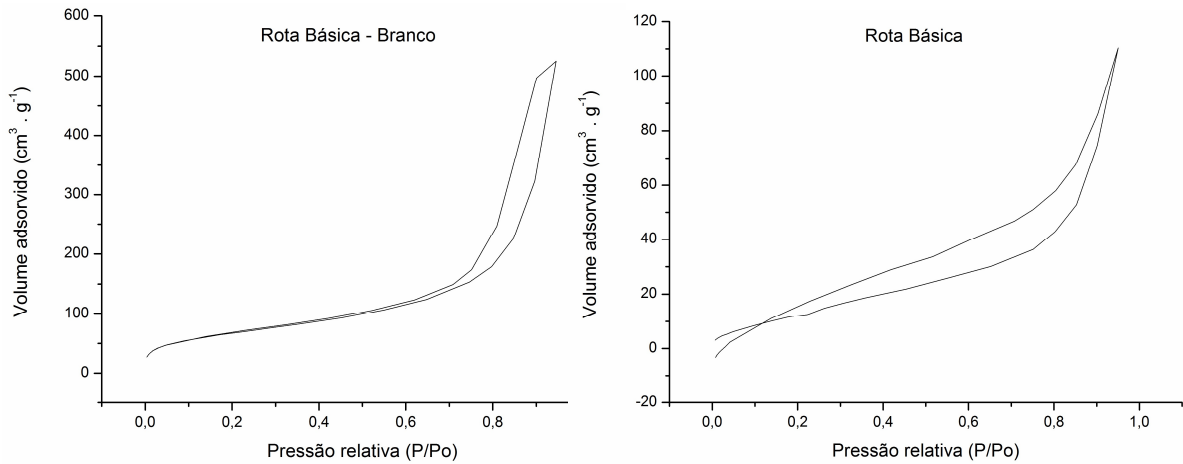
Na Figura 4, as amostras RA b e RA são classificadas pela IUPAC como do tipo I (b) e do tipo VI com histerese H3. As isotermas do tipo I (b) correspondem a materiais com uma ampla distribuição de tamanhos de poros, incluindo microporos e mesoporos (menores que 2,5 nanômetros)<sup>9</sup>, o que é confirmado pela Figura 3, que mostra a distribuição do tamanho dos poros obtida pelo método de Barrett, Joyner e Halenda<sup>9,10</sup>.

Figura 3 – Isotermas de adsorção e dessorção de N<sub>2</sub> das amostras RA b e RA



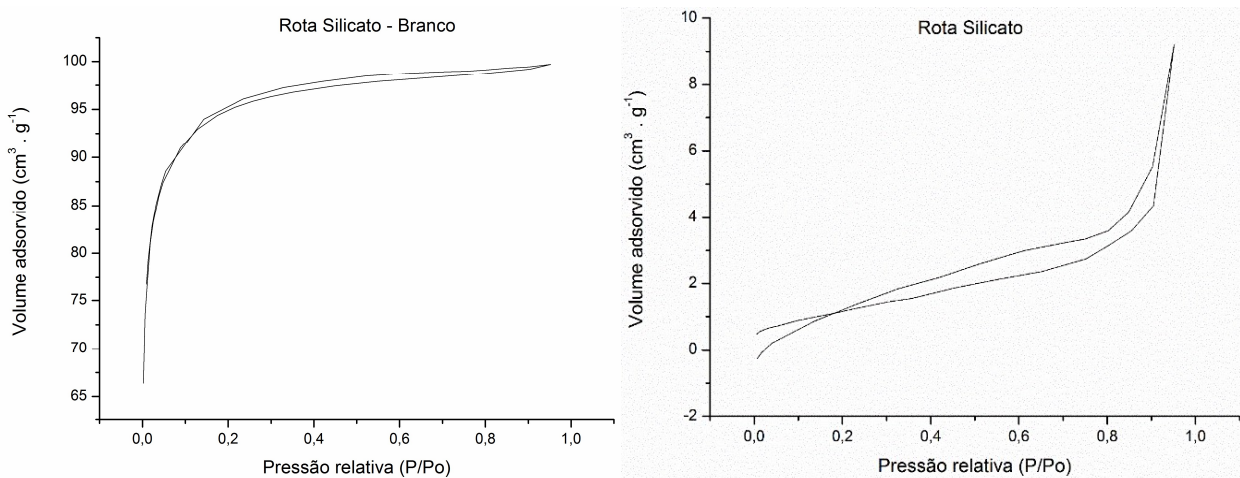
Na Figura 4 temos as isotermas das amostras RB b e RB ambas com isotermas do tipo III que correspondem a um material sem poros ou macroporoso.

Figura 4 - Isotermas de adsorção e dessorção de N<sub>2</sub> das amostras RB b e RB.



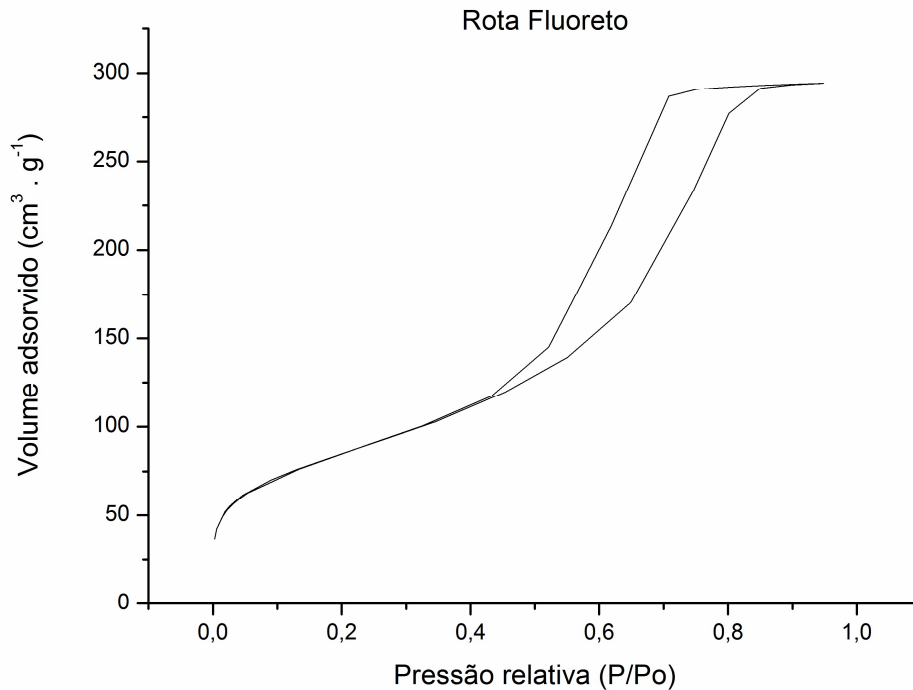
A Figura 5 apresenta as isotermas correspondentes às amostras RS b e RS, que podem ser classificadas como tipo I (b) e tipo II, respectivamente (Figura 6). O tipo I corresponde a materiais com ampla distribuição de tamanhos de poros, incluindo microporos e mesoporos<sup>9</sup>. As amostras exibem histerese H4, associada ao preenchimento de microporos. Esse tipo de histerese é comum em materiais com cristais agregados e poros de micro e mesoescala<sup>6</sup>.

Figura 5 - Isotermas de adsorção e dessorção de N<sub>2</sub> das amostras RS b e RS.



Por fim a amostra RF, teve sua isoterma classificada com tipo IV (a) que corresponde a um material com diâmetro de poro elevado. (Figura 6)

Figura 6 - Isotermas de adsorção e dessorção de N<sub>2</sub> da amostra RF.



Utilizando as isotermas é possível calcular a área específica, pelo método BET, e o diâmetro de poro e volume de poro pelo método BJH. Os resultados estão apresentados na Tabela 4.

Tabela 4 – Dados de área específica, diâmetro e volume médio de poro e Contante C.

<b>Amostra</b>	<b>Área Específica (m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup>)</b>	<b>Diâmetro médio de poro (Å)</b>	<b>Volume médio de poro (cm<sup>3</sup> g<sup>-1</sup>)</b>	<b>Constante C</b>
<b>RA</b>	8	6,2	0,02	4
<b>RA b</b>	412	4,8	0,11	146
<b>RB</b>	52	6,1	0,22	22
<b>RB b</b>	241	4,7	0,86	113
<b>RS</b>	4	6,1	0,02	48
<b>RS b</b>	306	4,8	0,09	156
<b>RF</b>	301	24,4	0,49	159

A constante C está relacionada à afinidade do sólido com o adsorbato (as moléculas de  $N_2$ ) e, portanto, ao calor de adsorção. Quanto maior o valor de C, maior será a interação entre o sólido e o adsorbato. No entanto, a equação BET geralmente é utilizada apenas para fornecer uma área específica aparente relacionada à capacidade de adsorção do sólido.

Ao interpretar os dados da Tabela 4, observou-se que as sílicas (brancos), que não tiveram a adição de  $CoCl_2$  na síntese, apresentam uma drástica diminuição em sua área específica quando comparadas aos seus respectivos materiais encapsulados. Isso sugere que o cloreto de cobalto foi inserido nos poros da sílica, resultando em uma redução da área específica do material em 50 vezes, 4 vezes e 75 vezes para as rotas ácida, básica e silicato, respectivamente.

No entanto, a rota com fluoreto apresenta uma área específica de valor semelhante àquela dos brancos das outras rotas, com diâmetro e volume de poro elevados, o que é uma exceção em relação aos demais resultados. Isso sugere que a rota produziu um material com alta porosidade e muitos espaços vazios, o que poderia indicar um baixo encapsulamento do complexo de cobalto. No entanto, os resultados de DRS mostram que a diferença total de cor da amostra RF foi a segunda maior. Portanto, podemos conjecturar que a rota realmente gerou um material mais poroso do que as demais, pois, apesar do encapsulamento do cobalto, a área superficial do material ainda foi bastante elevada.

### **5.2.2 Microscopia eletrônica de varredura**

A morfologia do material foi avaliada por meio de microscopia eletrônica de varredura. As micrografias estão apresentadas nas Figuras 7, 8 e 9. Foram identificadas diferenças relevantes nas estruturas dos materiais. Na micrografia do  $CoCl_2$  puro (Figura 7), é possível observar grânulos amorfos empacotados. Esta imagem será utilizada para avaliar se houve ou não inserção do composto na matriz de sílica.

Ao analisar as imagens referentes à rota ácida (Figuras 8a e 8b), é possível observar na amostra RA b uma superfície relativamente lisa em comparação com a amostra RA. Embora tenha sido observado o mesmo tipo de estrutura principal, a superfície agora está semicoberta por grânulos menores, indicando a impregnação do cloreto de cobalto II na matriz. A maior presença do complexo de cobalto na superfície pode ser a causa da coloração rosada do material, se assemelhando a coloração do complexo puro.

Para as amostras da rota básica (Figuras 8c e 8d), observamos que a amostra RB b apresenta uma estrutura principal muito semelhante àquela da amostra RA b, porém com características de lamelas na estrutura. Comparando a RB b com a RB, notamos uma mudança clara na estrutura principal: enquanto a estrutura anterior era lisa, agora ela assume uma forma de nuvem com ranhuras e sinais de empacotamento, atribuídos à inserção do cloreto de cobalto na estrutura.

Figura 7 - Micrografia do complexo de cobalto puro

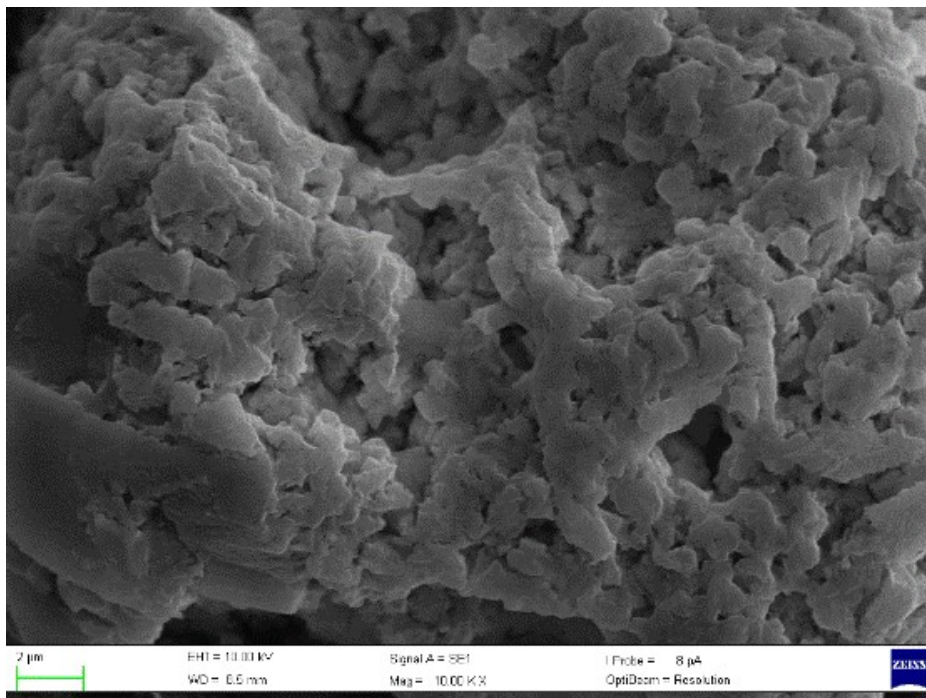
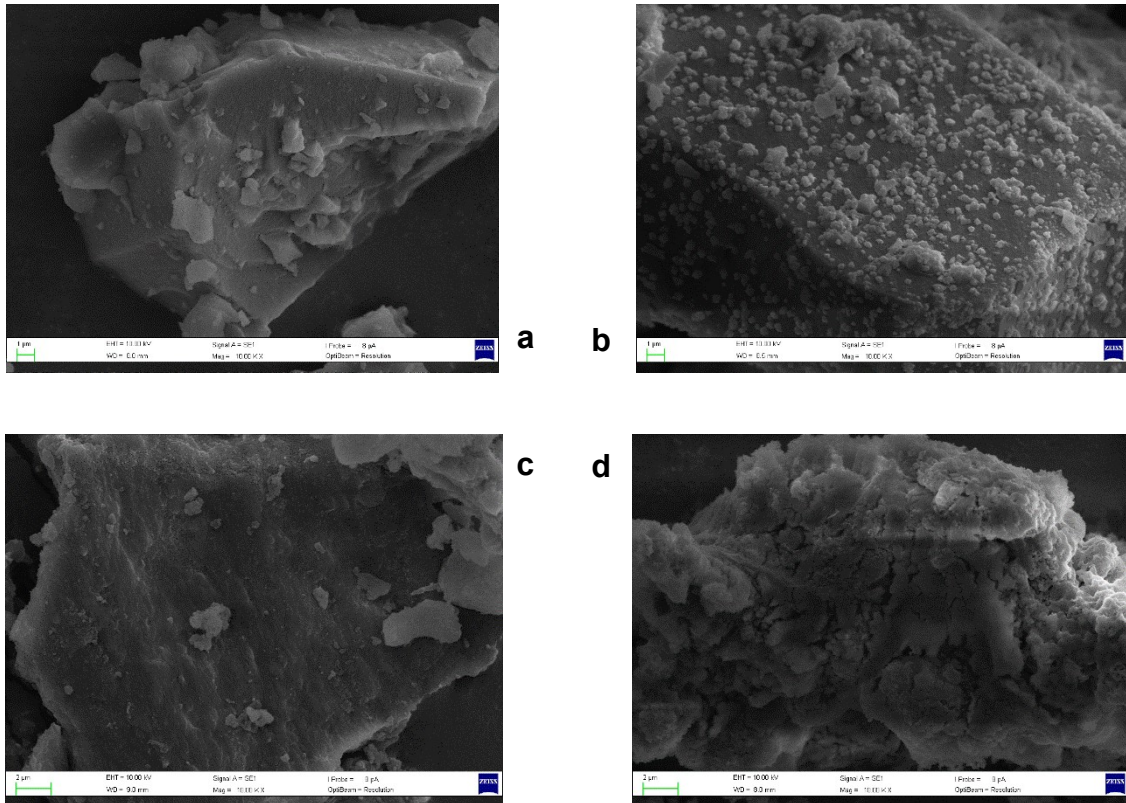




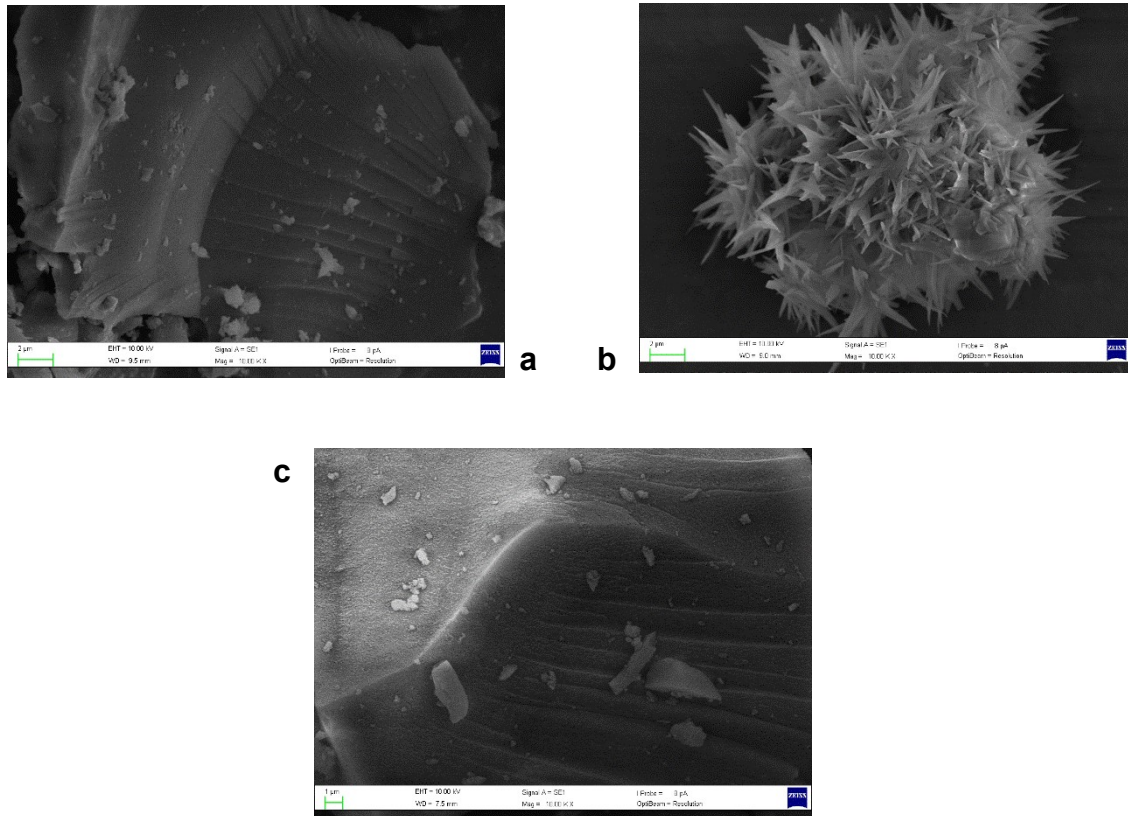
Figura 8 - Micrografia obtida por MEV para a) RA b, b) RA, c) RB b e d) RB



Nos materiais sintetizados pela rota silicato (Figuras 9a e 9b), observou-se uma mudança drástica na morfologia entre RS b e RS. Na amostra RS b, vemos uma estrutura semelhante àquela de RB b, com características lamelares na superfície. No entanto, em RS, a estrutura está recoberta por "cristais" que cresceram em torno da matriz de sílica, indicando a inserção do  $\text{CoCl}_2$  na estrutura da sílica. Esta estrutura cristalina pode estar relacionada a dificuldade na transição de cor do material.

Na rota fluoreto (Figura 9c), observamos uma estrutura semelhante às amostras das outras rotas, com uma superfície lisa e características lamelares. No entanto, como mostrado na seção 5.2.1, a troca significativa de cor em RF sugere que a ausência de identificação do cobalto na superfície do material pode indicar que ele está encapsulado na estrutura da sílica. Assim como a porosidade elevada corroborou pra um maior encapsulamento do cobalto ao invés de sua inserção na superfície.

Figura 9 – Micrografia obtida por MEV para a) RS b, b) RS e c) RF



### 5.2.3 Espectroscopia de Infravermelho (FTIR e ATR)

A análise elementar das amostras foi realizada por Espectroscopia no Infravermelho com Transformada de Fourier (FT-IR). O objetivo foi identificar os picos característicos da matriz de sílica e do cobalto<sup>14</sup>.

Na Tabela 5, estão apresentados os picos encontrados nos espectros de infravermelho de cada um dos materiais sintetizados, bem como do  $\text{CoCl}_2$  puro. Os picos em torno de  $1600 \text{ cm}^{-1}$  podem ser atribuídos à deformação da molécula de água proveniente do complexo hidratado. Na faixa de  $3300$  a  $3600 \text{ cm}^{-1}$ , observamos o estiramento da ligação O-H, também relacionado à molécula de água<sup>16</sup>.

Quanto à matriz, foram observados em todas as amostras os picos relativos ao estiramento da ligação Si-O, na faixa de  $730$  a  $800 \text{ cm}^{-1}$  e na faixa de  $1000$  a  $1130$

$\text{cm}^{-1}$ ; a deformação Si-O-H, na faixa de 830 a 950  $\text{cm}^{-1}$ ; e o estiramento da ligação Si-O-, na faixa de 550 a 650  $\text{cm}^{-1}$ .

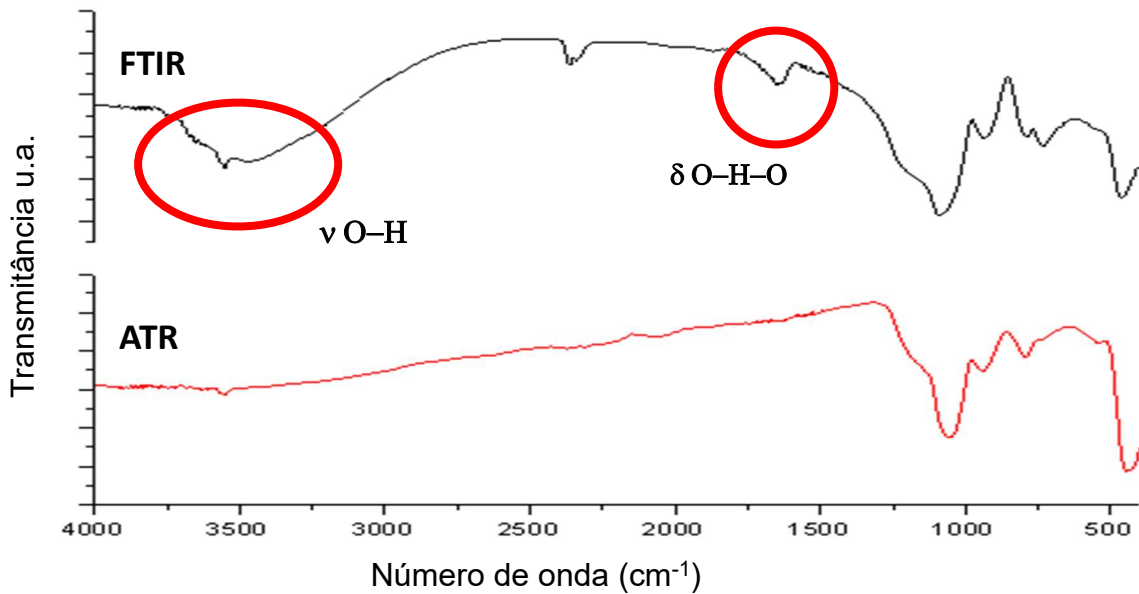
Em relação ao cobalto<sup>17,18</sup>, foram identificados os picos característicos em torno de 488  $\text{cm}^{-1}$  e 655  $\text{cm}^{-1}$ . No complexo puro, os picos foram encontrados em 656  $\text{cm}^{-1}$  e 463  $\text{cm}^{-1}$ . Em RA, RB e RF, foram encontrados pelo menos um pico correspondente em 458  $\text{cm}^{-1}$ , 621  $\text{cm}^{-1}$  e 462/669  $\text{cm}^{-1}$ , respectivamente. No entanto, em RS nenhum pico foi identificado, o que pode ser uma consequência da mistura do Cloreto de Cobalto II com outros compostos<sup>18</sup>. Portanto os dados de FTIR comprovaram a inserção do cloreto de cobalto II na matriz da sílica.

Tabela 5 – Dados obtidos por FTIR em modo de transmissão.

Tipo de vibração	Unidade estrutural	CoCl <sub>2</sub> .6H <sub>2</sub> O	RA b	RA	RB b	RB	RS b	RS	RF
$\nu$ O-H	O-H	3370	3429	3462	3483	3374	3620	3468	3447
$\delta$ O-H-O	H <sub>2</sub> O	1624	-	1644	-	1609	-	1642	1641
$\nu$ Co-O	Co-O	791	-	791	-	795	-	781	-
		656	-	-	-	621	-	-	669
$\delta$ Co-O-H	Co-O-H	463	-	458	-	-	-	-	462
$\nu$ Si-O	$\equiv$ Si-O-Si $\equiv$	-	1058	1088	1068	1101	1131	1032	1094
$\delta$ Si-O-H	$\equiv$ Si-OH	-	939	939	962	944	982	875	965
$\nu$ Si-O	$\equiv$ Si-O-Si $\equiv$	-	795	732	799	729	788	776	799
$\nu$ Si-O'	Si-O-Si	-	545	564	539	575	674	664	552

Comparando os espectros obtidos por ATR e FTIR para RA (Figura 10), podemos observar diferenças na composição da superfície e do interior do material. A técnica ATR fornece informações sobre a superfície, enquanto o FTIR oferece dados mais relacionados à parte interna do material. Na Figura 10, é possível observar que o espectro de FTIR apresenta um pico em torno de 1600  $\text{cm}^{-1}$  e uma banda em torno de 3500  $\text{cm}^{-1}$ , relacionados à deformação da molécula de água e ao estiramento da ligação O-H, respectivamente, que não são evidentes no espectro obtido por ATR. Isso é prova de que a água está mais internalizada no material.

Figura 10 – Espectros de FTIR e ATR para a amostra RA

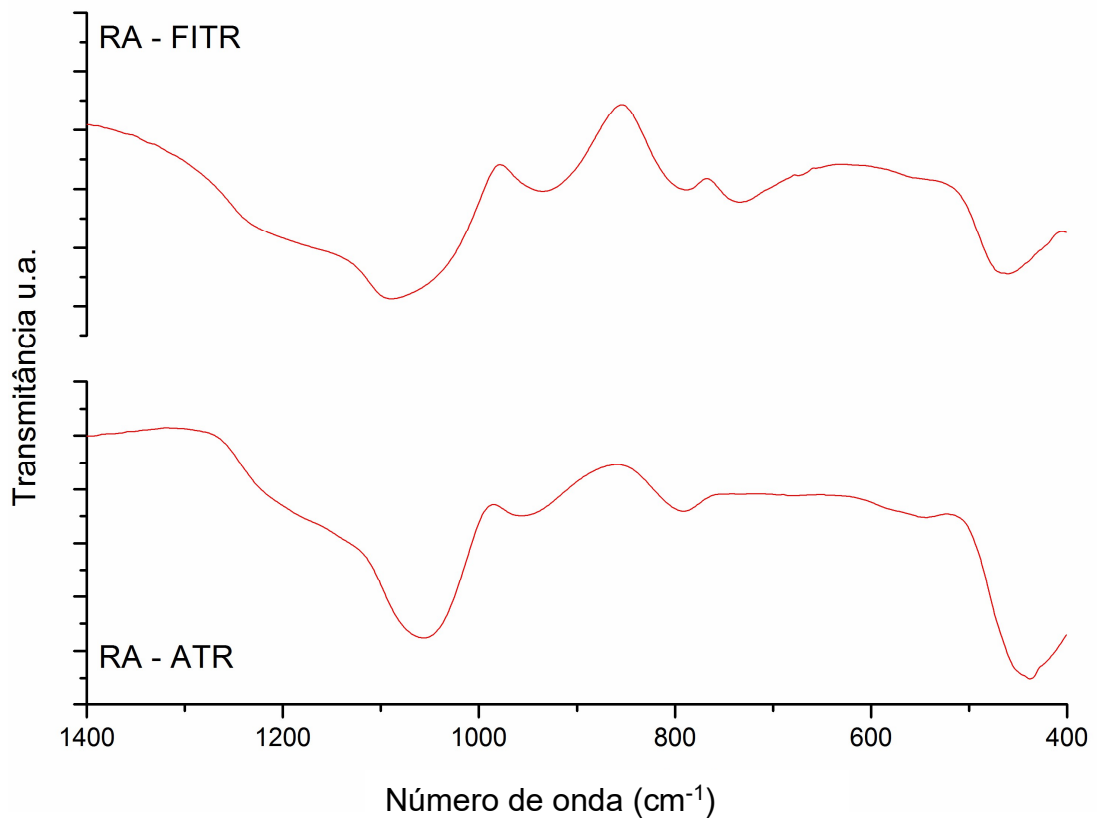


Na Figura 11, é mostrado um corte na região de 1400 a 400  $\text{cm}^{-1}$ , onde podem ser observados os picos relativos ao cobalto, em torno de 458  $\text{cm}^{-1}$ , e à sílica, em torno de 1100  $\text{cm}^{-1}$ . Com isso, é possível realizar uma análise semiquantitativa utilizando o pico da sílica como padrão interno, para calcular a razão entre as intensidades dos picos da sílica e do cobalto. Isso permite conjecturar sobre a maior presença do complexo no interior ou na superfície do material. Os dados estão apresentados na Tabela 6.

Tabela 6 – Razão entre as intensidades dos picos da sílica e do cobalto para os espectros de FTIR e ATR de RA, RB, RS e RF

Amostras		RA	RB	RS	RF
Razão (Co/Si)	FTIR	0,68	0,22	0,87	0,86
	ATR	0,8	0,55	2,22	0,77

Figura 11 – Corte entre 1400  $\text{cm}^{-1}$  e 400  $\text{cm}^{-1}$  dos espectros de FTIR e ATR para a amostra RA



Comparando as razões apresentadas na Tabela 6, observamos que para RA o valor da razão é 0,68 no FTIR e 0,8 no ATR. Isso indica que o complexo está bem distribuído entre a superfície e o interior, conforme observado na micrografia de MEV para a rota ácida, na Figura 8b. Para RB e RS, os valores das razões são aproximadamente duas vezes maiores no espectro de ATR, o que sugere que o  $\text{CoCl}_2$  está mais presente na superfície. Isso também é corroborado pela micrografia de MEV (Figuras 8d e 9b) para essas amostras. Já para RF, o valor da razão é levemente mais alto no espectro de FTIR, indicando que o cobalto está um pouco mais internalizado do que na superfície.

## 6 CONCLUSÃO

Conclui-se que a síntese dos materiais pelo método sol-gel foi bem-sucedida; os materiais foram facilmente sintetizados e preparados para análise. Inicialmente, durante o processo de secagem, foi observado o comportamento termocrômico das amostras, o que indicou com sucesso a inserção do Cloreto de Cobalto II na matriz de sílica. Em seguida, os espectros de FTIR mostraram picos de estiramento da ligação Co-O e deformação da ligação Co-O-H, confirmando a incorporação do cobalto.

A comparação entre os espectros de FTIR e ATR mostrou que, para os materiais obtidos pelas rotas básica e silicato, há uma maior presença do complexo de cobalto na superfície. Já para as rotas ácida e fluoreto, a razão entre as intensidades nos dois espectros foi semelhante, favorecendo levemente o interior para a rota fluoreto e o exterior para a rota ácida.

As micrografias de MEV para a rota ácida corroboraram os espectros de FTIR, mostrando o cobalto distribuído pela superfície do material. Para a rota básica, observou-se uma mudança distintiva na superfície do material, assemelhando-se ao que foi visualizado na micrografia do material puro. Para a rota silicato, foi observado um fenômeno de cristalização do cobalto na superfície do material, alterando completamente sua estrutura. Isso pode explicar a dificuldade de visualização da mudança de cor a olho nu, como definido pelo DRS com auxílio do software Color, onde a diferença de cor entre a rota silicato e a rota básica foi de apenas 0,07, cerca de 50 vezes menor do que a próxima maior. Esta propriedade da rota silicato dificultou a determinação da faixa de troca de temperatura. Nas imagens da rota fluoreto, verificou-se uma superfície lisa e muito similar à da rota básica e da rota silicato; no entanto, como indicado pelo DRS, a amostra da rota fluoreto apresentou a segunda maior diferença de cor, luminosidade e cor total.

Os dados de BET e BJH mostraram uma diminuição relevante nas áreas específicas das amostras da rota ácida, rota básica e rota silicato em relação aos seus brancos, assim como uma diminuição no volume médio dos poros, o que também indica a inserção do cloreto de cobalto II na matriz.

Com o estudo de cor realizado, foi possível determinar a faixa de temperatura de troca de cor de cada um dos materiais e concluir que eles são reversíveis, ou seja, retornam à sua cor original quando resfriados.

Em suma, é possível concluir que através da seleção da rota sol-gel de encapsulamento, é possível selecionar e ajustar propriedades termocrômicas do complexo de cobalto encapsulado

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. IUPAC, International Union for Pure and Applied Chemistry. Pure Appl. Chem., Vol. 79, No. 10, pp. 1801–1829, 2007.
2. LEI, Q. et al. Sol–Gel-Based Advanced Porous Silica Materials for Biomedical Applications. *Advanced Functional Materials*, v. 30, 2020.
3. SAKKA, S. (Ed). Handbook of Sol-Gel Science and Technology. Processing Characterization and Application, Kluwer Acad. Publish., Boston/Dordrecht/London, 2005.
4. ALMEIDA, R. M. *Handbook of Sol-Gel Science and Technology: Processing, Characterization and Applications*, vol. II: Characterization of Sol-Gel Materials and Products. New York: Kluwer Academic Press, 2004.
5. BENVENUTTI, E. V.; MORO, C. C.; COSTA, T. M. H.; GALLAS, M. R. Materiais Híbridos à base de sílica obtidos por método Sol-Gel. *Química Nova*, v. 32, n. 7, p. 1926-1933, 2009.
6. ILER, R.K. The Chemistry of Silica Solubility, Polymerization, Colloid and Surface Properties, and Biochemistry, 1979.
7. BRINKER, C. J.; SCHERER, G. W. Sol-Gel Science: the physics and chemistry of sol-gel processing, Academic Press: San Diego, 1990.
8. PAC, 1996, 68, 2223 (Glossary of terms used in photochemistry (IUPAC Recommendations 1996)) on page 2279
9. PIZZARO, A.; SMITH, J.; JOHNSON, M. Intelligent packaging: Enhancements in supply chain and consumer engagement. *Journal of Smart Technologies*, v. 10, n. 2, p. 123-135, 2020.
10. ZUB, Y. L.; CHUIKO, A. A. Synthesis, Structure and Adsorption Properties of Functionalized Polysiloxane Materials. In: LOUREIRO, J. M.; KARTEL, M. T. (Eds.). *Combined and Hybrid Adsorbents*, p. 3–21. Springer, 2006.
11. IUPAC – INTERNATIONAL UNION FOR PURE AND APPLIED CHEMISTRY. Reporting physisorption data for gas/solid systems (Recommendations 1984). *Pure and Applied Chemistry*, v. 57, n. 4, p. 603-619, 1985.
12. C.I.E. – COMMISSION INTERNATIONALE DE L'ÉCLAIRAGE. *Recommendations on Uniform Colour Spaces, Colour Difference Equations*,



- and Metric Colour Terms*. Supplement No. 2 to Publication No. 15. Bureau Central de la CIE, Paris, 1976.
13. C.I.E. – COMMISSION INTERNATIONALE DE L'ÉCLAIRAGE. *Colorimetry: Official Recommendations of the International Commission on Illumination*. 2. ed. Publication CIE No. 15.2 (TC-3.1). Bureau Central de la CIE, Paris, 1985.
  14. FAIRCHILD, M. D. *Color Appearance Models*. 2. ed. Rochester Institute of Technology, USA, 2005.
  15. FIDALGO, A.; ILHARCO, L. M. Chemical Tailoring of Porous Silica Xerogels: Local Structure by Vibrational Spectroscopy. *Chemistry - A European Journal*, v. 10, p. 392–398, 2004.
  16. LARKIN, P. *Infrared and Raman Spectroscopy: Principles and Spectral Interpretation*. Elsevier, 2011.
  17. WOUTERS, R. D. et al. TiO<sub>2</sub>-NPs/ZnO-NPs@Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanocomposite from natural extracts for the Rhodamine 6G photodegradation. *Surfaces and Interfaces*, v. 48, p. 104282, 2024.
  18. BAGHDAD SCIENCE JOURNAL. Infrared, Midinfrared and UV-Visible spectra study Cobalt chloride CoCl<sub>2</sub>. 6H<sub>2</sub>O molecule. *Baghdad Science Journal*, v. 14, p. 503-508, 2017. DOI: 10.21123/bsj.14.3.503-508.

**APÊNDICE A — ESPECTROS DE FTIR DOS MATERIAIS**