

低品质硅源制备多孔气凝胶的研究进展

赵洪凯 张力化

(吉林建筑大学材料科学与工程学院, 长春 130118)

摘 要 传统硅源成本较高不利于长期发展,而低品质硅源资源丰富且廉价易得,大幅降低了制备成本。综述了以水玻璃、硅藻土、粉煤灰以及稻壳灰等作为硅源制备气凝胶的研究进展,具有工艺便捷、制备周期较短以及成本低等优异特点,使大规模工业化制备气凝胶成为可能。最后,对其前驱体法和一步法制备气凝胶的未来发展进行了总结与展望。

关键词 气凝胶,水玻璃,硅藻土,粉煤灰,稻壳灰

中图分类号 TQ127.2

文献标识码 A

文章编号:1006-3536(2021)05-0232-05

DOI:10.19817/j.cnki.issn 1006-3536.2021.05.052

Progress on preparation of porous aerogel from low quality silicon source

Zhao Hongkai Zhang Lihua

(School of Materials Science and Engineering, Jilin Jianzhu University, Changchun 130118)

Abstract The high cost of traditional silicon source is not conducive to long-term development, while the low-quality silicon source is rich and cheap, which greatly reduces the preparation cost. The research progress on preparing aerogels with silica glass, diatomite, fly ash and rice husk ash as silicon sources was reviewed. It had the advantages of convenient process, short preparation period and low cost, making it possible to prepare aerogels in large scale industrialization. Finally, the future development of aerogels prepared by the one-step method and the co-precursor method were summarized and prospected.

Key words aerogel, water glass, diatomite, fly ash, rice hull ash

随着经济的发展以及城市化的推进,全球的能源消耗面临着严峻的挑战。其中建筑行业是能源消耗最大的行业,占世界能源的 32%,发展低成本的节能材料来降低能源消耗已成为如今研究的重要课题^[1]。气凝胶是一种轻质环保的新型节能材料,因其内部呈三维孔状结构^[2],具有高孔隙率、低密度、低导热率以及高比表面积等特点,凭借其广泛的优异性能,气凝胶已被应用于建筑保温材料、传感器、吸附剂等领域^[3-4]。在建筑工业、药物载体、航空航天等方面上也有着巨大的应用潜力^[5-7]。

早在 1931 年,美国加州太平洋大学的 Kistler 采用水玻璃水解的方式在超临界环境下干燥制备得到气凝胶^[8]。后来,越来越多的学者关注到气凝胶领域,陆续制备出不同性能的复合气凝胶,使其成为性能和成本上更具有竞争优势的新型建筑材料^[9-10]。

1970 年 Teichner 研制出溶胶-凝胶法制备气凝胶,推动了气凝胶的发展,因其操作性好、成本低、对设备技术要求不高,成为现阶段国内外学者制备气凝胶最常用的制备工艺^[11]。溶胶-凝胶法主要包括凝胶的制备、老化、干燥这 3 部分,老化是为了增强其内部的骨架强度,使孔隙分布更为均匀。干燥主要为了避免气凝胶孔隙结构因受毛细孔压力而破坏,从而影响气凝胶的孔隙率以及比表面积^[12]。气凝胶制备的影响因素不仅只有制备工艺,同时硅源的选择也会影响气凝胶的性能以及结构。笔者主要综述了采用低品质原料为硅源制备气凝胶,并对其性能进行了探讨,具有资源丰富、价格低廉等优势。

1 水玻璃作为硅源制备气凝胶

水玻璃作为硅源制备气凝胶是最为常见且成本

收稿日期:2020-11-20;修回日期:2021-04-23

基金项目:国家重点研发计划课题(2020YFD1100303)

作者简介:赵洪凯(1974-),男,博士,教授,硕士研究生导师,主要从事复合材料研究,E-mail:hkzhao003@126.com。

较低的方法,主要是通过控制原料含硅量、不同改性剂、催化剂等因素优化了制备工艺过程来获得性能较好的气凝胶,提高了气凝胶在建筑行业的商业价值。万郁楠等^[13]以水玻璃为硅源, $V_{\text{水玻璃}}:V_{\text{水}}=1:5$,通过酸碱两步法催化凝胶,在正己烷/三甲基硅烷(TMCS)/乙醇混合溶液中改性 72h,最后通过常压干燥制备气凝胶。结果表明样品为非晶态物质,内部结构分布均匀,平均孔径在 10~20nm 之间,孔洞直径为 10~40nm。Pan 等^[14]以水玻璃为硅源,经交换树脂去除 Na^+ 与叔丁醇混合,调节 pH 使其凝胶并在恒压下雾化,之后导入模具中使用冷冻干燥机干燥制得气凝胶。结果表明叔丁醇替代传统溶剂优化了气凝胶的孔结构,气凝胶的比表面积为 $761.3\text{m}^2/\text{g}$,具有良好的热稳定性,能够在 600°C 的烘箱中保持 5h,热导率为 $0.0215\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$,可有效地应用于建筑隔热材料方向。同时,Pan 等^[15]将水玻璃采用酸碱两步法使其凝胶,加入乙醇溶液并将其粉碎搅拌,置于正己烷/TMCS 的混合溶液中进行改性,之后通过常压干燥制得硅气凝胶粉体。样品接触角达到 162° ,热导率为 $0.0237\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$,比表面积为 $776.1\text{m}^2/\text{g}$,密度低至 $0.0762\text{g}/\text{cm}^3$,平均孔径为 20nm。Huang 等^[16]将稀释的水玻璃与浓盐酸混合搅拌,通过强酸性阳离子交换树脂除去 Na^+ ,加入 EtOH 溶液等物质待凝胶,再放入 HCl/六甲基二硅氧烷的混合溶液表面改性,最后经常压干燥制备硅气凝胶,获得的样品比表面积为 $855.11\text{m}^2/\text{g}$,密度为 $0.089\text{g}/\text{cm}^3$,孔隙体积 $4.42\text{cm}^3/\text{g}$,热导率为 $0.0237\sim 0.045\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$,具有较好的隔热能力。He 等^[17]将 HCl 加入水玻璃中后再加入 *N*-二甲基甲酰胺(DMF)搅拌形成硅酸,经过老化和溶液置换后加入 TMCS/正己烷的混合溶液改性,常压干燥得硅气凝胶。结果表明样品接触角达到 161° ,在 400°C 下能保持良好的疏水性,具有高比表面积 $680\text{m}^2/\text{g}$,高孔体积 $3.3\text{cm}^3/\text{g}$ 和低密度 $0.089\text{g}/\text{cm}^3$ 的优异性能,对有机溶液具有较强的吸附性。

Lee 等^[18]以水玻璃为硅源,Span80 为乳化剂,硝酸、乙酸和氨水作为酸碱催化剂,制备了稳定的水玻璃/正己烷乳液,再放至六甲基硅氮烷(HMDS)中改性,使用异丙醇/乙醇溶液洗涤凝胶,最后常压干燥制备得到 SiO_2 气凝胶粉末,该方式减少了繁琐的表面修饰和溶剂交换的过程。所得样品的孔体积为 $1.73\text{cm}^3/\text{g}$,孔径为 14.15nm,比表面积为 $488.08\text{m}^2/\text{g}$,

密度为 $0.18\text{g}/\text{cm}^3$ 。Bhagat 等^[19]将水玻璃经离子交换树脂形成硅酸溶液(SA),利用共前驱体法将 SA 与 TMCS/HMDS 混合,加入正己烷搅拌得水凝胶珠,之后加入 2mL 吡啶分离出水凝胶珠,最后干燥制备得到气凝胶微球。根据分析气凝胶在 773K 下仍具有良好的疏水性,比表面积为 $591\text{m}^2/\text{g}$,平均孔径在 3.2~4.9nm 之间,共前驱体法不仅缩短了制备时间还省去了溶剂交换,是一种有效制备高性能气凝胶的生产方法。Zhao 等^[20]使用一步法用 SiO_2 稀释水玻璃为前驱体,加入庚烷以及 HMDS 为疏水剂,在加入浓硝酸搅拌 30min 后等待凝胶,之后加入异丙醇和乙醇将溶液持续搅拌,常压干燥 1h 获得硅气凝胶粉体。结果表明气凝胶密度为 $0.083\text{g}/\text{cm}^3$,导热系数低于 $0.02\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$,比表面积大于 $800\text{m}^2/\text{g}$,形成的介孔率也较高,可作为增强纳米聚合物材料的填料,整个合成过程时间小于 2h,缩短了制备硅气凝胶的生产时间,疏水和溶剂交换同时进行,一步法工艺明显地减少了低表面张力溶剂的用量,也是制备气凝胶制备的一大突破,具有很高的工业生产价值。

2 硅藻土作为硅源制备气凝胶

硅藻土具有强吸附性、高比表面积以及热稳定性好等优点,可应用于建筑材料方面作为硅源,通过碱溶法制备高性能气凝胶成为了炙手可热的话题^[21-22]。Wang 等^[23]以硅藻土为硅源,在 90°C 下与 NaOH 加热后在真空抽滤机上过滤,用蒸馏水稀释后加入氨水调节 pH,加入乙醇溶液老化 24h,再放至 EtOH/TMCS/正己烷混合溶液中改性,最后常压干燥制备得到块状硅气凝胶,样品密度为 $0.122\sim 0.153\text{g}/\text{cm}^3$,比表面积为 $655.5\sim 790.7\text{m}^2/\text{g}$,在 400°C 下依然保持疏水性,具有良好的热稳定性。王宝民等^[24]采用响应面法分析各因素对其气凝胶性能的影响,进行工艺优化制备了热稳定性良好的硅气凝胶,首先将硅藻土与 NaOH 均匀混和反应,过滤稀释后加入苯乙烯系阳离子交换树脂得到硅酸,再加入氨水调节其 pH 至 5,放至乙醇/正己烷/TMCS 的混合溶液中改性,反复使用正己烷洗涤后经常压干燥得到 SiO_2 气凝胶,结果表明样品比表面积为 $755.45\text{m}^2/\text{g}$,密度为 $0.132\sim 0.143\text{g}/\text{m}^3$,孔径在 10nm 左右。疏水性可达到 400°C ,在高温下仍能保持良好的热稳定性。Ma 等^[25]将硅藻土与 NaOH 混合后过滤溶液,再加入离子交换树脂以及

氨水调节 pH 后待其凝胶,再放至乙醇溶液中浸泡 24h,之后浸泡在乙醇/TMCS/正己烷混合溶液中进行溶液交换和老化加入硅烷偶联剂/乙醇使其表面烷基化,加入正己烷超声处理后放至真空干燥箱干燥制备得到聚丙烯酸甲酯改性 SiO_2 气凝胶,内部骨架结构明显加强,硬度提高了 52 倍,模量提高了 10 倍,体积密度为 $0.741\text{g}/\text{cm}^3$,孔径增加到 $28\sim 150\text{nm}$ 。

3 粉煤灰作为硅源制备气凝胶

粉煤灰(CFA)作为工业废料具有高硅含量,可应用于制备气凝胶,减轻环境污染,有效地提高了粉煤灰的利用率,又降低了制备气凝胶的成本^[26-27]。Wu 等^[28]将天然碱矿与粉煤灰混合研磨煅烧后加入 H_2SO_4 过滤得到硅溶胶,经过老化和乙醇洗涤后放至正己烷/TMCS/乙醇混合溶液中改性 24h,最后常压干燥制备硅气凝胶,结果表明样品比表面积为 $856.2\text{m}^2/\text{g}$,接触角高达 151° ,平均孔径为 17.1nm ,孔隙体积可达到 $2.92\text{cm}^3/\text{g}$ 。具有较强的疏水性和热稳定性,疏水性可保持到 476°C 左右。Cheng 等^[29]将粉煤灰与 NaOH 溶液均匀反应得到硅酸钠溶液,采用酸碱两步催化调至 pH 到 5—6 等待凝胶,之后放在 EtOH/TMCS/正己烷的混合溶液中改性,用正己烷反复洗涤后放在常压下干燥制备得硅气凝胶,结果表明气凝胶密度低至 $0.085\text{g}/\text{cm}^3$,表面积为 $700\text{m}^2/\text{g}$,孔径在 12.62nm 左右,在 360°C 以下都表现出较强的疏水性能,接触角可达到 140° 。Shi 等^[30]将粉煤灰与 NaOH 反应得到硅酸钠溶液,分别通过树脂交换催化法和硫酸催化法制备出硅胶溶液,之后将两种硅胶溶液都放在乙醇中浸泡,再放至 TMCS/乙醇/正己烷混合溶液改性,用正己烷洗涤后常压干燥制备得硅气凝胶,结果表明树脂交换催化制备的气凝胶具备更好的透明性以及更高的孔隙率,介孔结构也相对较均匀,比表面积为 $907.9\text{m}^2/\text{g}$,孔体积为 $4.875\text{cm}^3/\text{g}$,平均孔径在 $7.69\sim 24.09\text{nm}$,使用硫酸催化法制备得到气凝胶粉体产率更高。Mao 等^[31]将 NaOH 与粉煤灰混合制备硅酸钠溶液,加入十六烷基三甲基溴化铵(CTAB)和正丁醇均匀搅拌,加入 HCl 催化,之后使用蒸馏水反复洗涤,最后在 550°C 干燥 4h 得到 SiO_2 纳米颗粒,CTAB 的加入避免了 SiO_2 聚集,获得了粒径为 $20\sim 30\text{nm}$ 且具有良好均匀性的颗粒,具有非晶态特征,其比表面积达到 $408\text{m}^2/\text{g}$ 。Shen

等^[32]将粉煤灰与 NaOH 放在 350°C 的马弗炉中煅烧 1h,再将煅烧混合物研磨成粉末状加入去离子水和 HCl 溶液均匀搅拌,之后过滤加入 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 等待凝胶,经过老化、溶液交换后常压干燥得到 $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ 复合气凝胶。结果表明其平均孔径在 $3.4\sim 5.19\text{nm}$ 之间,比表面积可达到 $897.30\text{m}^2/\text{g}$,具有良好的热稳定性, 700°C 煅烧 2h 其比表面积为 $664.488\text{m}^2/\text{g}$, 900°C 下煅烧 2h 仍能够保持非晶态结构,这种碱熔酸浸法制备的复合气凝胶具有良好的性能,制备时间只需 3 天,为大规模利用粉煤灰制备气凝胶提供了新的思路。

4 稻壳灰作为硅源制备气凝胶

稻壳作为农业废弃物在各个国家随时可见,处理稻壳最常用的方法就是焚烧得到的稻壳灰会造成环境污染,近些年来越来越多的学者将稻壳灰作为可持续能源开发利用到人们的日常生活中,由于稻壳灰含有较高的 SiO_2 ,可作为生产 SiO_2 气凝胶的廉价前驱体的潜在资源^[33]。Tang 等^[34]将稻壳灰与 NaOH 溶液加热搅拌,加入 H_2SO_4 催化凝胶,放至室温老化使用乙醇溶液洗涤,再将醇溶液放在高压反应釜中干燥制备得到 SiO_2 气凝胶,结果表明样品的比表面积高达 $597.7\text{m}^2/\text{g}$,孔隙率为 98.3%,孔体积为 $8.65\text{cm}^3/\text{g}$,孔径在 $10\sim 60\text{nm}$ 之间。Rajanna 等^[35]采用两步凝胶-溶胶法获得高性能气凝胶。首先将稻壳灰与 NaOH 混合均匀后回流 2h,之后加入 HCl 催化,高速搅拌再加入煤油以及司班 80(span80)和吐温 80(tween80)(作为双表面活性剂)的混合溶液中,其中双表面活性剂的亲水亲油平衡值为 6.3,加入氢氧化铵溶液促进反应,溶液发生分离,倒出上层的矿物油,剩余的凝胶颗粒用乙醇溶液多次浸泡,最后干燥获得颗粒状 SiO_2 气凝胶,比表面积为 $340\text{m}^2/\text{g}$,孔体积为 $1.7\text{cm}^3/\text{g}$,孔径为 20nm ,可应用于药物载体方面。Feng 等^[36]将稻壳灰与 NaOH 搅拌均匀后过滤,采用酸碱两步催化凝胶,在 45°C 下加入乙醇溶液并振荡 12h,加入正己烷进行溶液置换,放在 TMCS/正己烷溶液中改性,经常压干燥制备得到 SiO_2 气凝胶,结果表明样品的比表面积可达到 $945.8\text{m}^2/\text{g}$,平均孔径为 3.8nm ,接触角为 138.5° ,具有较好的耐热性,耐热温度可达到 400°C 。Cui 等^[37]将稻壳灰与 NaOH 反应得到硅酸钠溶液,加入阳离子交换树脂制备得硅酸,将其 pH 调至 5 等待凝胶,再将凝胶放至 H_2O /乙醇中老化

24h,之后将其浸泡在 3-(氨丙基)三乙氧基硅烷/EtOH 混合溶液中改性,用无水乙醇洗涤凝胶,通过超临界干燥得到氨基改性 SiO_2 气凝胶。结果表明其吸附 CO_2 性能极高,可吸附 CO_2 容量为 $52.4\text{cm}^3/\text{g}$,比表面积达到 $654.24\text{m}^2/\text{g}$,孔体积为 $2.72\text{cm}^3/\text{g}$,可应用于高温尾气排放,拥有较强的吸附容量和稳定的循环性能。

Zulhelmi 等^[38]将稻壳灰溶于 NaOH 溶液中加热至 90°C 搅拌 24h 制备得硅酸钠溶液,再用蒸馏水稀释过滤好的硅酸钠溶液,加入乙酸调 pH 至 5.5 等待凝胶,在 50°C 下用稀氨水浸泡老化 24h,之后放在无水乙醇中浸泡转化为醇凝胶,放至到 TMCS/正己烷混合溶液中改性,再用正己烷洗涤后经常压干燥获得 SiO_2 气凝胶。结果表明样品的比表面积为 $670\text{m}^2/\text{g}$,密度为 $0.048\text{g}/\text{cm}^3$,接触角可达到 115° ,在 380°C 下仍能保持良好的热稳定性。Tadjarodi 等^[39]以稻壳灰为原料与 NaOH 溶液加热至沸点反应得硅酸钠溶液,对溶液进行过滤后加入 H_2SO_4 溶液将 pH 调至 7,加入少量的正硅酸乙酯 (TEOS) 等待凝胶,放在室温环境下老化 24h,之后用蒸馏水和乙醇反复洗涤,通过常压干燥制备得 SiO_2 气凝胶。结果表明掺杂 TEOS 的气凝胶孔隙率、比表面积、孔体积和平均孔径都有所增加,比表面积为 $315\text{m}^2/\text{g}$,平均孔径为 9.8nm ,堆积密度为 $0.32\text{g}/\text{cm}^3$,孔隙率为 85%,孔体积为 $0.78\text{cm}^3/\text{g}$ 。Ban 等^[40]将稻壳灰与 NaOH 溶液在 90°C 下混合反应 2h,再对混合溶液进行过滤后得到硅酸钠溶液,使用蠕动泵以恒定速率在溶液中滴定 HCl 使其凝胶,之后将凝胶放至室温环境下老化,将老化后的湿凝胶浸泡在正己烷/TMCS 溶液中进行溶液置换和表面改性,对凝胶离心后放在正己烷溶液中浸泡 24h,之后真空过滤溶液经常压干燥制备得到硅气凝胶。结果表明硅气凝胶具有较强的疏水性能,接触角为 156° ,疏水性可保持到 340°C 左右,比表面积最高可达到 $861\text{m}^2/\text{g}$,孔体积为 $3.33\text{cm}^3/\text{g}$,平均孔径为 12nm ,在隔热以及传感器方面具有巨大应用潜力。

5 结语与展望

目前,对气凝胶的工艺、性能以及应用等方面都有所突破,但传统的制备原料限制了气凝胶的商业化发展,通过选用低品质硅源替代传统原料制备多孔气凝胶,明显地降低了气凝胶制备成本,也为气凝

胶在各领域的应用推广奠定基础。共前驱体法和一步法都省去了溶剂交换步骤,打破了传统的制备工艺,有效地缩短了气凝胶的制备周期,是制备高性能气凝胶的有效途径,对气凝胶的工业生产具有较高的潜在价值。

参考文献

- [1] Huo T, Ren H, Zhang X, et al. China's energy consumption in the building sector: a statistical yearbook-energy balance sheet based splitting method [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2018, 185: 665-679.
- [2] 彭罗文, 艾明星, 柳培玉, 等. 二氧化硅气凝胶材料在建筑领域的应用研究及发展概述 [J]. *建筑节能*, 2018, 46(1): 71-77.
- [3] Lucchi E, Becherini F, Tuccio M C, et al. Thermal performance evaluation and comfort assessment of advanced aerogel as blown-in insulation for historic buildings [J]. *Building and Environment*, 2017, 122: 258-268.
- [4] Tang L, Zhuang S, Hong B, et al. Synthesis of light weight, high strength biomass-derived composite aerogels with low thermal conductivities [J]. *Cellulose*, 2019, 26(16): 8699-8712.
- [5] Randall J P, Meador M A B, Jana S C. Tailoring mechanical properties of aerogels for aerospace applications [J]. *ACS Applied Materials Interfaces*, 2011, 3(3): 613-626.
- [6] Riffat S B, Qiu G. A review of state-of-the-art aerogel applications in buildings [J]. *International Journal of Low-carbon Technologies*, 2013, 8(1): 1-6.
- [7] Obaidat R M, Alnaief M, Mashaqbeh H, et al. Investigation of carrageenan aerogel microparticles as a potential drug carrier [J]. *Aaps Pharmscitech*, 2018, 19(5): 2226-2236.
- [8] 路国忠, 郭建平, 何光明, 等. SiO_2 气凝胶制备技术及在建材中应用研究 [J]. *新型建筑材料*, 2013, 40(1): 83-86.
- [9] Du A, Zhou B, Zhang Z, et al. A special material or a new state of matter: a review and reconsideration of the aerogel [J]. *Materials*, 2013, 6(3): 941-968.
- [10] 王妮, 任洪波. 不同硅源制备二氧化硅气凝胶的研究进展 [J]. *材料导报*, 2014, 28(1): 42-45.
- [11] 刘金玲, 郭慰彬, 白欣, 等. 改性二氧化硅气凝胶研究进展 [J]. *广州化工*, 2019, 47(6): 16-18.
- [12] El-Naggar M E. Synthesis, drying process and medical application of polysaccharide-based aerogels [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2020, 145: 1115-1128.
- [13] 万郁楠, 张波. 以水玻璃为源制备 SiO_2 气凝胶的最佳工艺研究 [J]. *中国陶瓷工业*, 2016, 23(2): 22-25.
- [14] Pan Y, Cheng X, Zhou T, et al. Spray freeze-dried monolithic silica aerogel based on water-glass with thermal superinsulating properties [J]. *Materials Letters*, 2018: 265-268.
- [15] Pan Y, He S, Cheng X, et al. A fast synthesis of silica aerogel

- powders-based on water glass via ambient drying[J]. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 2017, 82(2): 594-601.
- [16] Huang Y, He S, Feng M, et al. Organic solvent-saving preparation of water glass based aerogel granules under ambient pressure drying[J]. *Journal of Non-crystalline Solids*, 2019, 521: 119507.
- [17] He S, Huang D, Bi H, et al. Synthesis and characterization of silica aerogels dried under ambient pressure bed on water glass[J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2015, 410: 58-64.
- [18] Lee K J, Kim Y H, Lee J K, et al. Fast synthesis of spherical silica aerogel powders by emulsion polymerization from water glass[J]. *Chemistryselect*, 2018, 3(4): 1257-1261.
- [19] Bhagat S D, Kim Y, Ahn Y, et al. Textural properties of ambient pressure dried water-glass based silica aerogel beads: one day synthesis[J]. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2006, 96(1): 237-244.
- [20] Zhao S, Stojanovic A, Angelica E, et al. Phase transfer agents facilitate the production of superinsulating silica aerogel powders by simultaneous hydrophobization and solvent- and ion-exchange [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 381: 122421.
- [21] Dong G R, Su Z Q, Wang J B. Diatomite modification and its application in wastewater treatment[J]. *Advanced Materials Research*, 2014, 850-851: 1355-1359.
- [22] Chen F, Miao Y, Ma L, et al. Optimization of pore structure of a clayey diatomite[J]. *Particulate Science and Technology*, 2019, 38(5): 522-528.
- [23] Wang B, Ma H, Song K, et al. Preparation and characterization of silica aerogels from diatomite via ambient pressure drying[J]. *Russian Journal of Physical Chemistry A*, 2014, 88(7): 1196-1201.
- [24] 王宝民, 宋凯, 韩瑜, 等. 硅藻土制备介孔 SiO_2 气凝胶[J]. *土木建筑与环境工程*, 2013, 35(2): 141-146.
- [25] Ma Hainan, Wang Baomin, Zhao Lei, et al. Preparation and properties of PMMA modified silica aerogels from diatomite[J]. *Journal of Wuhan University of Technology*, 2014, 29(005): 877-884.
- [26] Gollakota A R K, Volli V, Shu C M. Progressive utilisation prospects of coal fly ash: a review[J]. *Ence of the Total Environment*, 2019, 672: 951-989.
- [27] Lee Y R, Soe J T, Zhang S, et al. Synthesis of nanoporous materials via recycling coal fly ash and other solid wastes: a mini review[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2017, 317: 821-843.
- [28] Wu X, Fan M, McLaughlin J F, et al. A novel low-cost method of silica aerogel fabrication using fly ash and trona ore with ambient pressure drying technique[J]. *Powder Technology*, 2018, 323: 310-322.
- [29] Cheng Y, Xia M, Luo F, et al. Effect of surface modification on physical properties of silica aerogels derived from fly ash acid sludge[J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2016, 490: 200-206.
- [30] Shi F, Liu J, Song K, et al. Cost-effective synthesis of silica aerogels from fly ash via ambient pressure drying[J]. *Journal of Non-crystalline Solids*, 2010, 356(43): 2241-2246.
- [31] Mao N D, Lee S Y, Shin H J, et al. Biomass fly ash as an alternative approach for synthesis of amorphous silica nanoparticles with high surface area[J]. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 2018, 18(5): 3329-3334.
- [32] Shen M, Jiang X, Zhang M, et al. Synthesis of $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ composite aerogel from fly ash: a low-cost and facile approach [J]. *Journal of Sol Gel Science & Technology*, 2020, 93(2): 281-290.
- [33] Pode R. Potential applications of rice husk ash waste from rice husk biomass power plant[J]. *Renewable & Sustainable Energy Reviews*, 2016, 53: 1468-1485.
- [34] Tang Q, Wang T. Preparation of silica aerogel from rice hull ash by supercritical carbon dioxide drying[J]. *Journal of Supercritical Fluids*, 2005, 35(1): 91-94.
- [35] Rajanna S K, Vinjamur M, Mukhopadhyay M, et al. Mechanism for formation of hollow and granular silica aerogel microspheres from rice husk ash for drug delivery[J]. *Journal of Non-crystalline Solids*, 2015, 429: 226-231.
- [36] Feng Q, Chen K, Ma D, et al. Synthesis of high specific surface area silica aerogel from rice husk ash via ambient pressure drying[J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2018, 539: 399-406.
- [37] Cui S, Yu S, Lin B, et al. Preparation of amine-modified SiO_2 aerogel from rice husk ash for CO_2 adsorption[J]. *Journal of Porous Materials*, 2016, 24(2): 1-7.
- [38] Zulhelmi A A H, Muhamad A M Y, Halimatun H. Effects of solvent exchange period and heat treatment on physical and chemical properties of rice husk derived silica aerogels[J]. *Silicon*, 2020, 13(4): 251-257.
- [39] Tadjarodi A, Haghverdi M, Mohammadi V. Preparation and characterization of nano-porous silica aerogel from rice husk ash by drying at atmospheric pressure[J]. *Materials Research Bulletin*, 2012, 47(9): 2584-2589.
- [40] Ban G, Song S, Lee H W, et al. Effect of acidity levels and feed rate on the porosity of aerogel extracted from rice husk under ambient pressure[J]. *Nanomaterials*, 2019, 9(2): 300.