

## Fabrication and Network Strengthening of Monolithic Silica Aerogels Using Water Glass

In-Sub Han,<sup>†</sup> Jong-Chul Park, Se-Young Kim, Ki-Seog Hong, and Hae Jin Hwang\*

Energy Materials Research Center, Korea Institute of Energy Research, Daejeon 305-343, Korea

\*Department of Materials Science and Engineering, Inha University, Incheon 467-813, Korea

(Received December 14, 2006; Accepted January 17, 2007)

### 물유리를 이용한 모노리스 실리카 에어로젤의 제조 및 구조강화

한인섭<sup>†</sup> · 박종철 · 김세영 · 홍기석 · 황해진\*

에너지재료연구센터 한국에너지기술연구원

\*인하대학교 재료공학과

(2006년 12월 14일 접수; 2007년 1월 17일 승인)

#### ABSTRACT

Silica wet gels were prepared from water glass (29 wt% SiO<sub>2</sub>) by using Amberlite as a ion exchange resin. After washing in distilled water, the wet gels were further aged in a solution of TEOS/EtOH to strengthen of 3-dimensional network structure. As increase TEOS content in aging solution, BET surface area and porosity of the ambient dried silica aerogels were significantly decreased, and average pore diameter was also decreased 30 nm to ~10 nm. Also, higher density and compressive strength were obtained in case of higher TEOS content. This is due to precipitation of SiO<sub>2</sub> nano particles by TEOS. Hence, TEOS addition plays an important role of both strengthening and stiffness of silica wet gel network. By adding over 30 vol% TEOS, a crack-free monolithic silica aerogel tiles were obtained and its density, compressive strength, and thermal conductivity were shown 0.232 g/cm<sup>3</sup>, 7.3 MPa, and 0.029 W/mK, respectively.

**Key words :** Aerogel, Water glass, Wet gel, Network strengthening, Surface modification

#### 1. 서 론

에어로젤은 높은 기공도(porosity ~99%)와 낮은 굴절률(refractive index 1.01~1.1) 및 높은 투명도(transparency >90%), 높은 비표면적(specific surface area >1000 m<sup>2</sup>/g)과 매우 낮은 열전도도(thermal conductivity ~0.02 W/mK)를 갖는 첨단소재이다.<sup>1-5)</sup> 특히, 실리카 에어로젤은 특유의 열적, 전기적, 광학적 특성으로 인해 에너지 및 환경소재, 전자산업의 고도화를 위한 소재로써 응용성이 높이 평가되어 앞으로 초단열재, 음파차연재, 촉매담지체 및 차세대 반도체의 고속회로용 층간 절연물질로의 응용이 예상된다.<sup>6-11)</sup>

그러나 실리카 에어로젤은 이와 같은 우수한 특성에도 불구하고 일정 크기 이상의 모노리스 타일 형태로 제조하거나 상업적으로 응용 가능한 제품의 제조에 있어서 두 가지 요인에 의해 제한되어 왔다. 첫째는 졸-겔 합성에서의 출발원료 물질인 실란계 알콕사이드인 TEOS(tetraethoxy-

silane)나 TMOS(tetramethoxysilane)가 고가라는 점이고, 둘째는 습윤젤(wet gel)의 초임계건조 과정을 위한 고온·고압의 오토클레이브 장치가 요구된다는 것이다. 이에 따라 최근 이러한 한계를 해결하기 위한 노력으로써 고가의 실란계 시약 대신에 상대적으로 저가인 공업용 물유리(water glass)를 출발물질로 사용하여 습윤젤을 합성하거나, 초임계건조가 아닌 상압건조 과정을 통한 실리카 에어로젤의 제조에 대한 연구들이 이루어지고 있다.<sup>13-17)</sup> 그러나 이러한 최근 연구에서 TEOS가 아닌 상대적으로 불순물을 함유하고 있는 물유리를 이온교환을 통해 순수한 실리카 졸만을 추출하여 사용하는 경우에도 고가의 건조장비를 사용하지 않고 저렴한 공정비용으로 실리카 에어로젤을 제조할 수 있는 장점은 있으나, 구조적인 견고함과 강도에 한계가 있다. 또한 초임계건조가 아닌 상압건조를 통해서 균열이 없는 일정 크기의 실리카 에어로젤 모노리스를 제조하는 것은 매우 까다로운 공정이다.

따라서 본 연구에서는 물유리를 이용하여 습윤젤을 제조하고, 미량의 TEOS에 의한 구조강화 공정을 거친 후 이를 표면개질과 상압건조 과정을 통해 균열이 발생하지 않는 실리카 에어로젤 모노리스 타일을 제조하고자 하였으며, 이렇게 제조된 실리카 에어로젤 모노리스 타일의

<sup>†</sup>Corresponding author : In Sub Han

E-mail : ishan@kier.re.kr

Tel : +82-42-860-3147 Fax : +82-42-860-3133

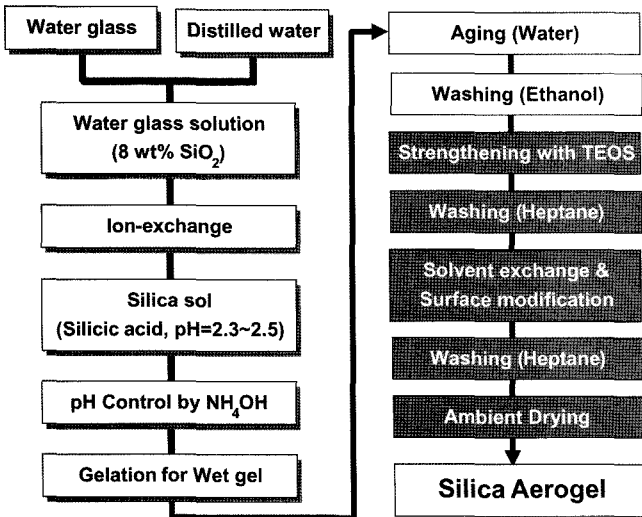


Fig. 1. Schematic diagram of the monolithic silica aerogel tile fabrication.

비표면적과 기공분포도 및 밀도와 강도, 열전도도 분석을 통해 물성을 확인하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1. 모노리스 에어로젤 타일 제조방법

본 연구의 전체적인 실험공정은 Fig. 1과 같다. 규산소다(sodium silicate, 29 wt% SiO<sub>2</sub>, Ilshin Chemical, Korea) 용액, 즉 물유리(water glass)를 8 wt%로 희석하여 이온교환수지(Amberlite IR120-H, Rhom & Hass, China)로 채워진 지름 80 mm, 높이 40 cm 크기의 파이렉스 컬럼에서 30 ml/min의 속도로 통과시켜 순수 실리카 졸을 얻었다. 이때, 강열감량법으로 실리카의 함량을 측정된 결과, 약 5.7 wt%로 나타났다. 이렇게 얻어진 pH 2.0~2.5인 실리카 졸을 빠른 속도로 교반하면서 1 M의 NH<sub>4</sub>OH(Duksan Pure Chem, Korea) 용액을 첨가하여 pH를 4.5까지 높여 주었다.

그 후, 실리카 졸을 직경 10 cm 크기의 폴리에틸렌 용기에 50 g을 옮겨 담은 후, 졸 용액 내부에 포함된 기포가 제거되면 완전히 밀봉하여 50°C로 유지된 건조기에서 1시간 동안 젤화 과정을 진행시켰다. 이렇게 합성된 습윤젤(wet gel)은 용기보다 약간 수축되는데, 용기 내의 물이 증발하면서 습윤젤 표면이 건조되지 않도록 물로 채워진 용기 내에서 50°C로 12~24시간 동안 숙성시키고, 용기 내의 용매를 에탄올로 교체하여 12~24시간 동안 세척 과정을 진행하였다.

한편 습윤젤의 구조강화는 에탄올을 사용해 TEOS(tetraethoxysilane, 98%, Samchun Chemical, Korea)의 농도를 각각 0~40 vol%의 비율로 제조한 용매에 습윤젤을 24시간 동안 유지시키는 조건으로 하였다. 그 후, Rao<sup>18)</sup> 등에 의해서 선행된 방법에서와 같이 표면개질 단계 이

전에 습윤젤 내부의 미반응물 제거를 위해 습윤젤을 n-heptane(99%, Junsei, Japan) 용매에 넣어 50°C에서 24시간 동안 처리하였다.

표면개질과 용매치환은 n-hexane(95%, Samchun, Korea)과 TMCS(tri-methylchlorosilane, 95%, Acros Organic, Korea)의 부피비율 10:1로 혼합한 용매에 구조강화된 습윤젤을 담근 후 밀봉시키고, 상온에서 2~5일간 개질/치환 과정을 진행하였다. 표면개질이 완료된 습윤젤은 다시 n-heptane으로 충분히 세척한 후 n-heptane의 b.p.인 98°C에서 완전히 건조시켜 에어로젤 모노리스 타일을 제조하였다.

### 2.2. 특성평가

제조된 실리카 에어로젤은 N<sub>2</sub> 흡착량을 측정(Micromeritics, ASAP 2400, U.S.A.)하여 BET법으로 비표면적을 측정하였고 BJH법으로 기공분포를 측정하였다. 전계방사형 주사전자현미경(FE-SEM, Hitachi S-4700, Japan)과 투과전자현미경(TEM, Carl Zeiss, Leo-EM912 Omega, U.S.A.)으로 미세구조를 관찰하였다. 밀도는 중량과 부피를 측정하여 계산하였으며, 기공율은 아래의 식에 의해 계산하였다. 여기에서 ρ<sub>m</sub>은 제조된 에어로젤 샘플의 부피/중량으로 측정한 밀도값이고, ρ<sub>as</sub>는 비정질 실리카의 이론밀도(2.2 g/cm<sup>3</sup>)이다.

$$Porosity = \left\{ 1 - \left( \frac{\rho_m}{\rho_{as}} \right) \right\} \times 100$$

압축강도는 균열없이 제조된 실리카 에어로젤을 5×5×12.5 mm 크기로 가공하여 만능강도시험기(Tinius Olsen, QMAT, U.K.)를 사용하여 0.1 mm/min cross head speed, 50 N load cell 조건에서 측정하였다. 한편 열전도도는 레이저 플래쉬법(Netzsch LFA-447, Germany)으로 직경 12 mm, 두께 1 mm로 시편을 가공하여 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 습윤젤 및 구조강화 효과

이온교환을 통해 얻어진 실리카졸은 암모니아의 첨가된 양에 따라 pH가 높을수록 또는 온도가 높을수록 젤화 과정의 반응속도가 빨라진다. Fig. 2는 실리카졸을 pH 4.5로 증가시키고 50°C 건조기에서 약 1시간 유지한 후, 증류수에서 약 24시간 동안 숙성과정을 거친 습윤젤의 사진이다. 이때 습윤젤의 부피는 처음에 실리카졸이 담긴 용기의 크기인 직경 100 mm, 두께 7 mm 크기에서 직경 91 mm, 두께 6 mm로 약 71% 수축된 습윤젤 형태가 된다.

Fig. 3은 상기한 방법으로 제조된 습윤젤에 대해 에탄올 세척과정을 거친 후, 에탄올 용액 내의 TEOS 첨가량을 변화시켜 망목구조를 강화시킨 습윤젤의 사진이다. TEOS의 함량은 0 vol%에서 40 vol%로 변화시켰으며, TEOS의

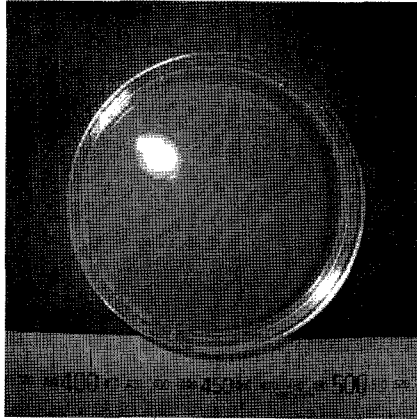


Fig. 2. Photographs of silica wet gel prepared by water glass.

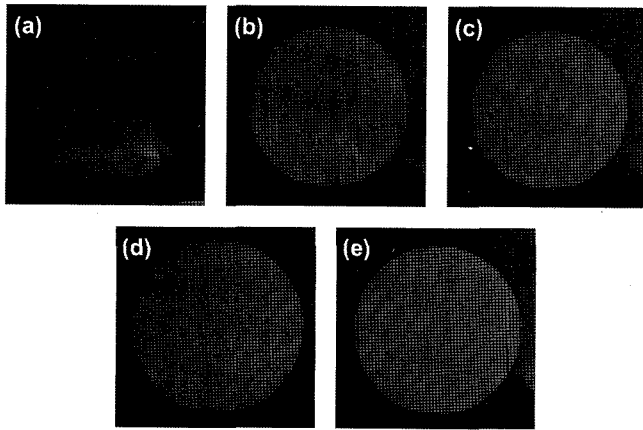


Fig. 3. Photographs of silica wet gels network strengthened in TEOS/EtOH solution at 50°C for 48 h; (a) 0 vol%, (b) 10 vol%, (c) 20 vol%, (d) 30 vol%, and (e) 40 vol% TEOS.

함량이 높을수록 습윤젤의 불투명도는 증가하였으며, 이는 습윤젤의 내부 망목구조에 TEOS에서 석출되는 SiO<sub>2</sub>의 양이 증가함에 기인하는 것으로 사료된다.

3.2. 습윤젤 용매치환 및 표면개질 효과

TEOS 첨가량에 따라 구조강화된 습윤젤을 용매치환 과정과 표면개질 공정을 거쳐 n-heptane으로 세척한 습윤젤의 상태를 Fig. 4에 나타내었다. 여기에서 TEOS를 첨가하지 않은 (a)의 경우, TMCS/n-hexane에 의한 용매치환 및 표면개질 단계에서 균열이 발생하여 초기의 형태를 유지하지 못하고 있음을 알 수 있다. 이에 비해 소량의 TEOS 첨가에 의해 구조강화 공정을 거친 (b)~(e)의 경우에는 습윤젤의 초기 형상을 그대로 유지하고 있어 TEOS 첨가에 의해 석출되는 SiO<sub>2</sub>가 습윤젤의 망목구조 강화에 확실하게 기여하고 있음을 알 수 있다.

Fig. 5는 표면개질 후, 98°C로 유지된 건조기에서 n-heptane 용매를 완전하게 증발시켜 습윤젤에서 에어로젤로 상압

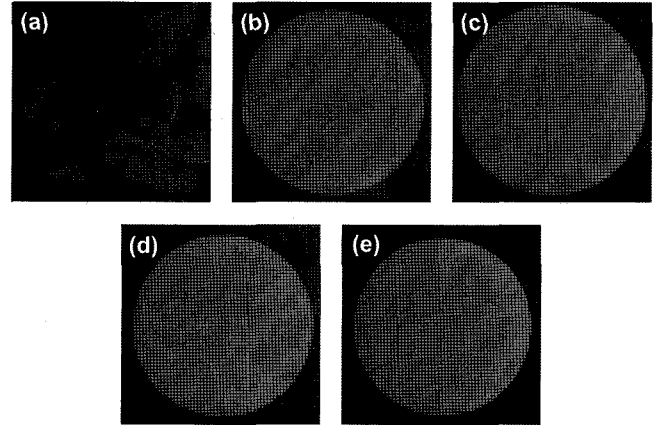


Fig. 4. Photographs of network strengthened silica wet gels after solvent exchange and surface modification; (a) 0 vol%, (b) 10 vol%, (c) 20 vol%, (d) 30 vol%, and (e) 40 vol% TEOS.

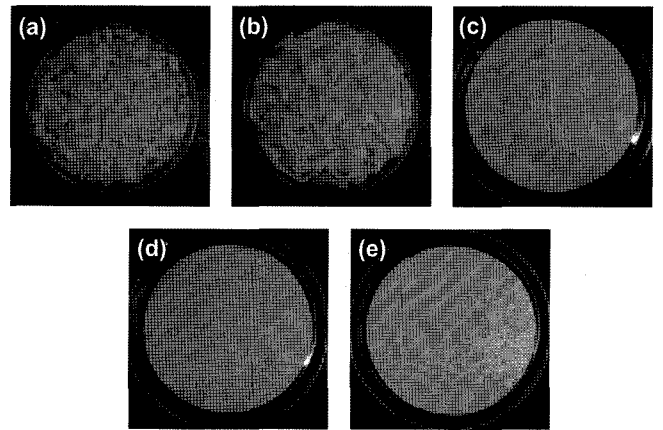
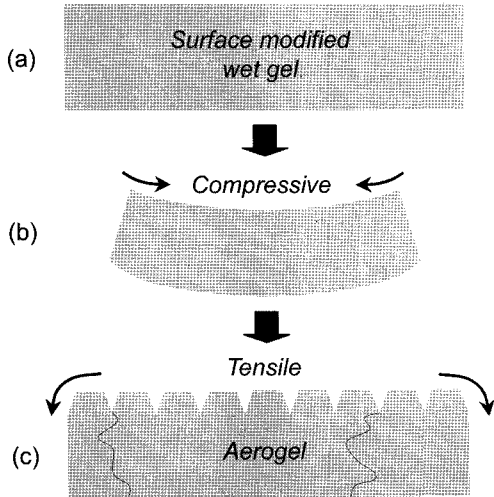


Fig. 5. Photographs of monolithic silica aerogels ambient dried at 98°C for 24 h; (a) 0 vol%, (b) 10 vol%, (c) 20 vol%, (d) 30 vol%, and (e) 40 vol% TEOS.

건조된 상태의 사진이다. TEOS 함량이 10 vol%인 용매에서 구조강화 시킨 (b)의 경우, 앞서 용매치환 및 표면개질 공정에서 균열이 발생한 (a)의 경우와 마찬가지로 작은 조각으로 균열이 진행되어 초기 습윤젤 형태를 유지하지 못하고 있음을 알 수 있다. 또한 TEOS 함량이 20 vol%인 (c)의 경우에도 형태는 유지하고 있으나, 큰 균열이 발생하여 2~3 조각 정도로 갈라져 완전한 타일 형태를 유지하지 못함을 알 수 있다. 이와는 달리 TEOS의 함량이 각각 30 vol%와 40 vol%인 (d)와 (e)의 경우에는 초기 습윤젤의 모양을 그대로 유지하면서 균열이 존재하지 않는 실리카 에어로젤 모노리스 타일 상태로 상압건조 되었음을 알 수 있다.

이러한 현상은 용매치환 후, 표면개질이 완료된 습윤젤은 건조 시, 치환용매의 낮은 표면장력에 의한 모세관력으로 인해 수축이 되기는 하지만, 이러한 수축은 가역적



**Fig. 6.** Schematic diagram of crack initiation and propagation of wet gels by springback phenomenon during ambient drying.

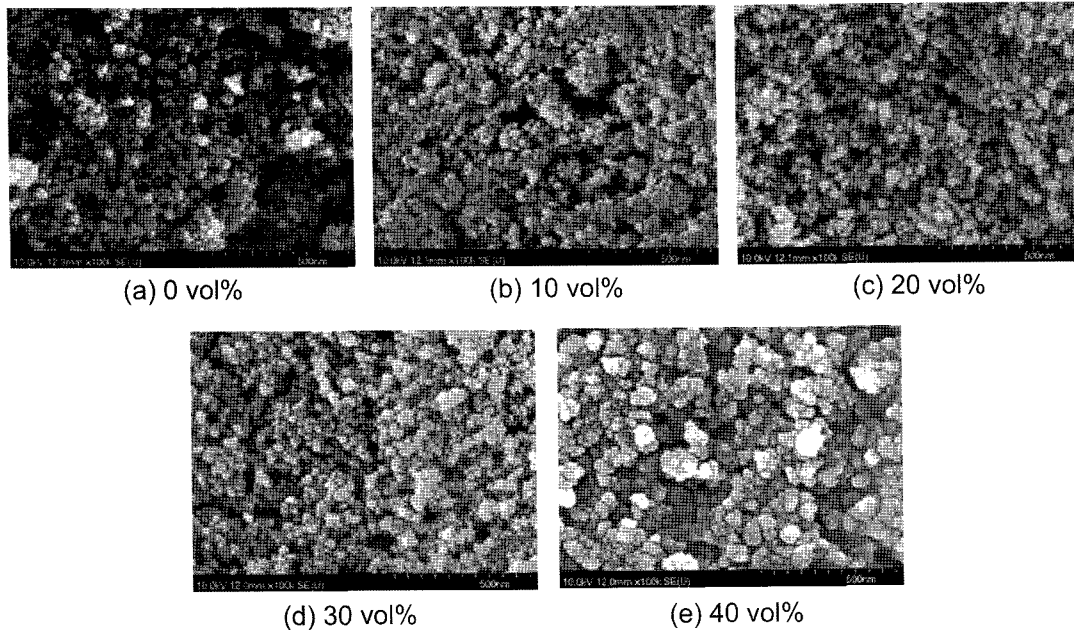
인 수축이므로 열처리 과정이 진행됨에 따라 용매로 인한 모세관력이 완화됨과 동시에 기공 내부 기체의 열적 팽창으로 인해 그 망목구조가 재팽창하게 되는 스프링백 (springback) 현상이 주 원인이라고 판단된다. 즉, Fig. 6에 나타낸 바와 같이 표면개질이 완료된 습윤젤은 상압건조 과정에서 용매가 완전히 증발하게 되는데, 용매가 점차적으로 증발하게 됨에 따라 (b)에서 보는 바와 같이 습윤젤의 바닥면은 인장응력, 상부표면은 압축응력이 걸리는 상태로 수축이 진행되면서 용매의 증발이 진행되며, 용매가

완전히 증발한 후 스프링백 현상에 의해 (c)에 나타낸 바와 같이 초기의 습윤젤 크기로 회복되는 과정에서 상부 표면에서 인장응력에 의한 균열이 생성되기 시작하여 이들 균열이 내부로 전파되기 때문인 것으로 사료된다.

따라서 Fig. 5의 결과에서도 구조강화를 위해 첨가한 TEOS의 함량이 적을수록 더 많은 균열이 발생하면서 습윤젤이 갈라지고 있음을 확인할 수 있으며, 균열이 발생하지 않는 실리카 에어로젤 모노리스의 상압건조는 30 vol%와 40 vol% TEOS 첨가에 의한 구조강화 조건에서 나타나고 있음을 알 수 있었다.

Fig. 7은 상압건조된 실리카 에어로젤의 미세구조를 주사전자현미경(FE-SEM)으로 관찰한 사진이다. TEOS 함량 별 각각의 모노리스 타일의 내부를 구성하고 있는 실리카 입자의 크기는 50 nm 이하였으며, TEOS에 의한 구조강화를 하지 않은 실리카 에어로젤과 최대 40 vol%의 함량을 갖는 경우의 차이가 확연히 구분되고 있음을 알 수 있다. 또한 Fig. 8의 투과전자현미경(TEM)을 통해 관찰한 미세구조 결과에서도 확인할 수 있는 바와 같이 TEOS로 구조강화를 하지 않은 (a)의 경우에 비해 TEOS의 함량이 30 vol% 첨가되어 구조강화시킨 (b)의 경우가 망목구조를 형성하고 있는 실리카 입자의 크기가 증가하고 있을 뿐만 아니라 상대적으로 치밀한 조직을 나타내고 있음을 알 수 있다.

따라서 TEOS의 첨가에 의해 실리카졸의 젤화 과정에서 형성된 1차 실리카(SiO<sub>2</sub>) 입자 망목구조 사이에 나노 실리카 입자의 석출에 의한 2차 망목구조가 형성됨에 따라 구조강화가 진행되고 있음을 확인할 수 있으며, 30 vol%



**Fig. 7.** SEM images of ambient dried silica aerogel with various TEOS content; (a) 0 vol%, (b) 10 vol%, (c) 20 vol%, (d) 30 vol%, and (e) 40 vol% TEOS.

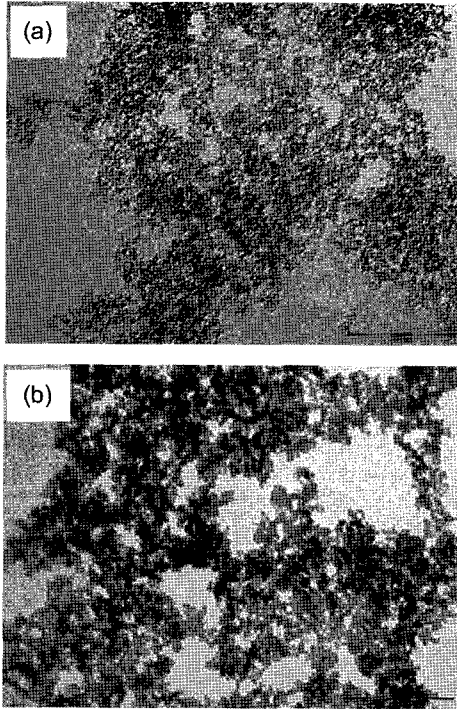


Fig. 8. TEM images of ambient dried silica aerogel with TEOS content; (a) without TEOS and (b) 30 vol% TEOS.

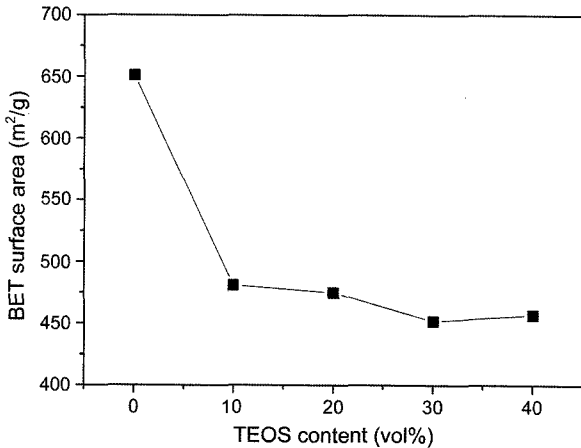


Fig. 9. BET surface area of monolithic silica aerogels with various TEOS content.

TEOS 이상이 첨가된 조성에서 조합에서 구조강화에 의한 crack-free 상태의 모노리스 실리카 에어로젤 제조조건을 확립할 수 있었다.

Fig. 9는 TEOS 함량에 따른 각각의 실리카 에어로젤에 대한 N<sub>2</sub> 흡탈착 특성 측정을 통해 BET 표면적을 분석한 결과이다. TEOS의 함량이 높아질수록 비표면적이 감소하고 있는 결과로 보아 습윤젤 망목구조 내부에 TEOS에 의해 석출되는 SiO<sub>2</sub> 미세입자가 증가되고, 이로 인해 나노기공이 채워짐에 따라 비표면적이 낮아진다는 것을 확인할 수 있었다. 이는 Fig. 4의 표면개질 공정을 거친 후 습

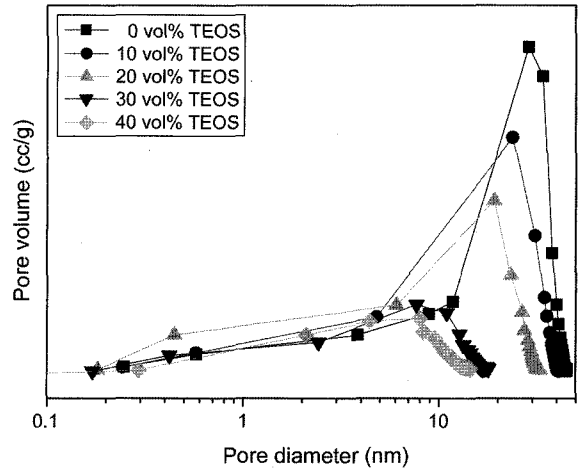


Fig. 10. Pore size distribution of monolithic silica aerogels with various TEOS content.

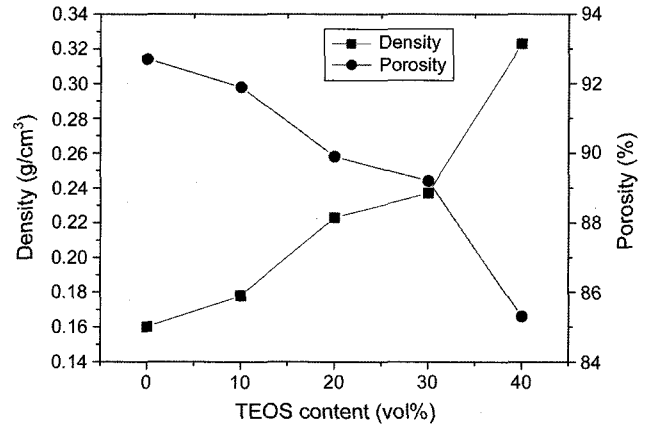


Fig. 11. Density and porosity of monolithic silica aerogels with various TEOS content.

윤젤의 사진에서 불투명도가 증가하는 경향을 보인 것과도 연관되는 결과이다.

또한 Fig. 10에 나타난 기공크기 분포 결과를 보면 TEOS 처리가 진행됨에 따라 평균 기공크기가 구조강화 처리를 하지 않았을 때 30 nm 크기에서 최대 40 vol% TEOS로 구조강화시킨 경우, 10 nm 크기 이하로 점차 감소하는 경향을 나타내어 상기한 결과를 잘 뒷받침 하고 있다.

한편 밀도와 기공을 측정 결과, Fig. 11에서 보는 바와 같이 밀도의 경우, 구조강화에 관여한 TEOS의 첨가량에 비례하여 그 값이 증가하였고, 기공율은 감소하고 있음을 알 수 있어 TEOS 첨가량 증가에 따른 망목구조 내에서의 강화효과가 확실히 나타나고 있음을 알 수 있다. 또한 crack-free하게 상압건조가 진행된 30 vol%와 40 vol% TEOS를 함유한 에어로젤의 압축강도를 측정한 결과, Table 1에 나타난 바와 같이 TEOS의 함량이 많은 에어로젤이 상대적으로 높은 강도 특성을 나타내고 있어 TEOS의 첨가가 모노리스 실리카 에어로젤의 기계적 특성 향상에 크게 기

**Table 1.** Compressive Strength of Ambient Dried Monolithic Silica Aerogel with 30 vol% and 40 vol% TEOS

Compositions of network strengthening solution	Compressive strength (MPa)
30 vol% TEOS+70 vol% EtOH	7.3
40 vol% TEOS+60 vol% EtOH	10.6

**Table 2.** Thermal Conductivity of Ambient Dried Monolithic Silica Aerogel with 30 vol% TEOS

Sample	Temperature (°C)	Thermal diffusivity (mm <sup>2</sup> /s)	Specific heat (C <sub>p</sub> ) (J/gK)	Density (g/cc)	Thermal conductivity (W/mK)
30 vol% TEOS	25	0.098	1.274	0.232	0.029

여하고 있음을 알 수 있었다.

이와 같은 실리카 에어로젤의 기계적인 특성은 에어로젤을 산업용 내장 단열재로 사용하기 위해서는 대면적이면서 취급이나 시공하기 용이한 정도의 구조적인 물성을 가지고 있어야 하기 때문에 매우 중요한 특성이라 할 수 있다.

Table 2는 상압건조된 30 vol% TEOS 함유 실리카 에어로젤을 직경 12 mm, 두께 1 mm 이하로 제조하여 레이저 플래쉬법에 의해 열확산도와 비열을 측정하여 열전도도 계산한 결과이며, 5회 측정한 평균값을 나타낸 것이다. 측정 결과에서 알 수 있는 바와 같이 상온에서의 열전도도 값이 0.029 W/mK로 계산됨으로써 열전도도가 낮은 실리카 에어로젤이 제조되었음을 알 수 있었다.

이러한 열전도도는 모노리스 실리카 에어로젤 타일을 단열재로 사용하기 위해서 가장 중요한 특성이라 할 수 있다. 즉, 본 결과에서 측정된 열전도도 값이 현재까지 보고되고 있는 출발원료를 물유리가 아닌 TEOS로 사용하고, 초임계건조 공정으로 제조한 실리카 에어로젤의 열전도도(0.016~0.02 W/mK)에 비해서 다소 높은 값이라 할 수 있으나, TEOS의 함량을 30 vol% 이하로 첨가된 조성에서 crack-free하면서 재현성 있는 제조공정을 확립할 경우, 밀도 감소에 따른 기공을 증가로 인해 열전도도 값이 더 낮은 상압건조 실리카 에어로젤의 제조가 가능할 것으로 사료된다.

#### 4. 결 론

물유리를 출발원료로 하여 이온교환수지의 처리를 통해 순수한 실리카 졸을 얻고, 적당한 pH와 온도에서 습윤젤을 제조한 후 미량의 TEOS 첨가량에 변화를 주어 습윤젤의 망목구조가 강화된 모노리스 실리카 에어로젤 타일을 제조하여 그 특성을 분석한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 물유리에서 얻은 셀리카 졸의 pH를 4.5로 증가시키고, 50°C에서 약 1시간 양생조건에서 안정적인 실리카 습윤젤이 제조되었다.
2. 습윤젤의 망목구조 강화를 위해 TEOS가 첨가된 에

탄올 용매에서 48시간 처리하고, TMCS/n-hexane 용매에서 용매치환 및 표면개질 과정을 거친 결과, 20 vol% 이상의 TEOS가 첨가된 습윤젤의 경우에는 초기형상을 그대로 유지하는 안정적인 개질과정을 거칠 수 있었다.

3. TEOS 함량에 따른 습윤젤의 상압건조 결과, crack-free한 모노리스 에어로젤 타일이 제조되는 조건은 30 vol% 이상의 TEOS가 첨가된 조성이었으며, 초기의 습윤젤 크기에서 약 10% 정도의 건조수축율을 나타내고 있었다.

4. BET 분석 결과, TEOS의 첨가량이 증가할수록 비표면적의 감소, 평균 기공크기가 감소하는 경향이 나타났으며, 또한 밀도는 증가하고 기공율은 저하하는 결과를 나타내었으며, 이러한 결과는 습윤젤의 망목구조 내에 TEOS 첨가에 의해 SiO<sub>2</sub>가 석출되는 양이 증가하는 것에 기인하는 것임을 확인할 수 있었다.

5. TEOS의 첨가량이 증가할수록 압축강도도 증가하였으며, 특히 30 vol% TEOS가 첨가되어 상압건조된 실리카 에어로젤의 경우, 압축강도와 열전도도를 측정한 결과, 각각 7.3 MPa, 0.029 W/mK로 우수한 기계적, 열적 특성을 갖는 실리카 에어로젤이 제조되었다.

#### Acknowledgments

본 논문은 산자부 에너지·자원기술개발 중대형사업(2004-E-FM11-P-04-0-000)의 지원에 의하여 진행되었으며, 이에 감사드립니다.

#### REFERENCES

1. J. Fricke, "Aerogels-Highly Tenuous Solids with Fascinating Properties," *J. Non-Crystalline Solids*, **100** [1-3] 169-73 (1988).
2. P. Wang, W. Körner, A. Emmerling, A. Beck, J. Kuhn, and J. Fricke, "Optical Investigations of Silica Aerogels," *J. Non-Crystalline Solids*, **145** 141-45 (1992).
3. L. Kocon, F. Despetis, and J. Palippou, "Ultralow Density Silica Aerogels by Alcohol Supercritical Drying," *J. Non-Crystalline Solids*, **225** [1] 96-100 (1998).
4. A. C. Pierre and G. M. Pajonk, "Chemistry of Aerogels and Their Applications," *Chem. Rev.*, **102** [11] 4243-66 (2002).

5. C. A. Morris, M. L. Anderson, R. M. Stroud, C. I. Merzbacher, and D. R. Rolison, "Silica Sol as a Nanoglupe: Flexible Synthesis of Composite Aerogels," *Science*, **284** 622-24 (1999).
6. L. W. Hrubesh and J. F. Poco, "Thin Aerogel Films for Optical, Thermal, Acoustic and Electronic Applications," *J. Non-Crystalline Solids*, **188** [1-2] 46-53 (1995).
7. R. Gerlach, O. Kraus, J. Fricke, P.-C. Eccardt, N. Kroemer, and V. Magori, "Modified SiO<sub>2</sub> Aerogels as Acoustic Impedance Matching Layers in Ultrasonic Devices," *J. Non-Crystalline Solids*, **145** 227-32 (1992).
8. A. C. Pierre and G. M. Pajonk, "Chemistry of Aerogels and Their Applications," *Chem. Rev.*, **102** [11] 4243-66 (2002).
9. G. M. Pajonk, "Aerogel Catalysts," *Applied Catalysis.*, **72** [2] 217-66 (1991).
10. D. Haranath, P. B. Wagh, G. M. Pajonk, and A. Venkateswara Rao, "Influence of Sol-Gel Processing Parameters on the Ultrasonic Sound Velocities in Silica Aerogels," *Mater. Res. Bull.*, **32** [8] 1079-89 (1997).
11. J. Pinto da Cunha, F. Neves, and M. I. Lopes, "On the Reconstruction of Cherenkov Rings from Aerogel Radiators," *Nucl. Instrum. Meth.*, **A 452** [3] 401-21 (2000).
12. M. Schmidt and F. Schwertfeger, "Applications for Silica Aerogel Products," *J. Non-Cryst. Solids*, **225** [1] 364-68 (1998).
13. G. S. Kim and S. H. Hyun, "Synthesis of Window Glazing Coated with Silica Aerogel Films via Ambient Drying," *J. Non-Crystalline Solids*, **320** 125-32 (2003).
14. S. S. Prakash, C. J. Brinker, A. J. Hurd, and S. M. Rao, "Silica Aerogel Films Prepared at Ambient Pressure by Using Surface Derivatization to Induce Reversible Drying Shrinkage," *Nature*, **374** 439-43 (1995).
15. S. S. Prakash, C. J. Brinker, and A. J. Hurd, "Silica Aerogel Films at Ambient Pressure," *J. Non-Crystalline Solids*, **190** [3] 264-75 (1995).
16. H. S. Yang, S. Y. Choi, S. H. Hyun, H. H. Park, and J. K. Hong, "Ambient-Dried Low Dielectric SiO<sub>2</sub> Aerogel Thin Film," *J. Non-Crystalline Solids*, **221** [2-3] 151-56 (1997).
17. A. Venkateswara Rao, A. Parvathy Rao, and M. M. Kulkarni, "Influence of Gel Aging and Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>O Molar Ratio on Monolithicity and Physical Properties of Water-Glass-Based Aerogels Dried at Atmospheric Pressure," *J. Non-Crystalline Solids*, **350** 224-29 (2004).
18. A. Venkateswara Rao, E. Nilsen, and M. A. Einarsrud, "Effect of Precursors, Methylation Agents and Solvents on the Physicochemical Properties of Silica Aerogels Prepared by Atmospheric Pressure Drying Method," *J. Non-Crystalline Solids*, **296** [3] 165-71 (2001).