J. of Korean Oil Chemists' Soc., Vol. 31, No. 2. June, 2014. 313~319 ISSN 1225-9098 (Print) ISSN 2288-1069 (Online) http://dx.doi.org/10.12925/jkocs.2014.31.2.313

# Ag-Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 복합촉매를 이용한 저온에서의 NH<sub>3</sub> 산화

임윤희<sup>a,b</sup>ㆍ이주열<sup>a</sup>ㆍ박병현<sup>a†</sup>

(주)애니텍 기술연구소<sup>a</sup>, 경희대학교 환경응용과학과<sup>b</sup> (2014년 6월 12일 접수; 2014년 6월 25일 수정; 2014년 6월 26일 채택)

## NH<sub>3</sub> oxidation using Ag-Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composite catalyst at low temperature

Yun-Hui Lima, Ju-Yeol Leea, Byung-Hyun Parkat

<sup>a</sup>Technology Institute, Anytech Co., Ltd, Digital Empire–II, 88, Sinwon–ro, Suwon,
Gyeonggi–do, 449–701, Korea

<sup>b</sup>Dept. of Applied Environmental Science, Kyung Hee University, 1732 Deokyoung daero,
Giheung–gu, Yongin–si, Gyeonggi–do, 446–407, Korea
(Received June 12, 2014; Revised June 25, 2014; Accepted June 26, 2014)

**Abstract**: This study was performed to obtain high conversion efficiency of NH<sub>3</sub> and minimize generation of nitrogen oxides using metal-supported catalyst with Ag : Cu ratio. Through structural analysis of the prepared catalyst with Ag : Cu ratio ((10-x)Ag-xCu ( $0 \le x \le 6$ )), it was confirmed that the specific surface area was decrease with increasing metal content. A prepared catalysts showed Type II adsorption isotherms regardless of the ratio Ag : Cu of metal content, and crystalline phase of Ag<sub>2</sub>O, CuO and CuAl<sub>2</sub>O was observed by XRD analysis. In the low temperature( $(150 \sim 200)$  °C), a conversion efficiency of AC\_10 recorded the highest(98%), whereas AC\_5 (Ag : Cu = 5 : 5) also showed good conversion efficiency(93.8%). However, in the high temperature range, the amounts of by-products(NO, NO<sub>2</sub>) formed with AC\_5 was lower than that of AC\_10. From these results, It is concluded that AC\_5 is more environmentally and economically suitable.

Keywords: Selective catalyst oxidation, NH<sub>3</sub>, Ag/Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst, Low temperature

## 1. 서 론

온실가스에 대한 관심이 고조되고 있는 가운데, 서울과 같이 전 세계적으로 급성장하는 주요 도시에서 증가하고 있는 대기오염에 관한 관심사 중 하나는 악취 오염의 위협이다 [1]. 여러 가지 대기오염물질 중 특히 단백질 기반의 폐기물 및 기타 생화학 프로세스의 분해로부터 방출되는 암모니아가 가장 일반적이고 주된 오염물질로, NH3 가스는 물에 대한 친화성이 높으며, NH3를 함유하고 있는 폐수는 부영양화를 일으키는 심각한 오염원 중 하나로 환경규제가 점점 엄격해지고 있다. [2]. NH3 악취 제어를 위한 가장 통상적인 방법은 상당히 높은 온도에서 열분해를

<sup>†</sup>Corresponding author

(E-mail: grapeman77@hanmail.net)

통해 NOx를 N<sub>2</sub>로 변환시키는 것으로, 높은 효 율에도 불구하고 고유의 높은 비용적인 문제로 인해 사용온도 범위의 저감을 위한 촉매 연구가 제안되어 왔다 [3]. NH3 를 촉매를 이용하여 제 거하는 방법으로는 600~900 ℃의 온도 범위에 서 Ni 촉매상을 통해  $NH_3$  를  $N_2$ 와  $H_2$ 로 분해 시키는 방법, 촉매상에서 NH3 를 N2로 산화시키 는 방법, NH3 를 NOx로 일부 산화시키고, 탈질 촉매상에서 NH3 와 NOx을 반응시켜 N2로 전환 시키는 방법 등이 있다 [4]. 그러나 가장 환경 친 화적인 방법으로는 NH2에서 N2로의 선택적 촉 매 산화 (Selective Catalytic Oxidation, SCO) 방법이 최적의 기술로서 지난 수십 년간 연구가 진행되어 오고 있다 [5-7]. 이를 위하여  $\gamma$  -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 지지체로 하는 Ni, Fe, Mn, Cu 그리고 Ag 등의 촉매가 이용되었다 [6, 8], 또한, 저온에 서 O<sub>2</sub>와 NH<sub>3</sub> 가 N<sub>2</sub>와 물로 변환되는 SCO는 NH3 오염을 줄이기 위한 가능성 있는 매우 효과 적인 방법이다 [8-10]. Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, MnO<sub>2</sub>, CuO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 그리고 MoO<sub>3</sub> 등과 같은 금속 산화 물 촉매 또한 이를 위하여 연구되어 왔다 [11-16]. 보고된 문헌들에 의하면, NH3 의 분해 및 변환은 상대적으로 낮은 온도에서 수행될 때 에 보다 의미가 있으며, NH3 산화효율을 향상시 키기 위하여 Ag계 촉매에 대한 연구가 몇몇 연 구자들에 의해 보고된 바 있다 [17-21]. 초기 연 구자인 Il'chenko 등에 의해 Ag 금속의 촉매 활 성은 300 °C에서 Pt 와 Pd 등의 다른 귀금속에 비하여 낮은 것으로 보고되었다 [18.19]. 그러나 최근에는 알루미나 지지체 Ag (Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 촉매 가 낮은 온도에서 NH3 산화에 대하여 활성이 매 우 높으며, 촉매의 성능은 귀금속 촉매에 비하여 더욱 우수한 것으로 보고되었다 [17, 20]. 그러나 Ag 금속의 높은 비용 때문에, NH3 제거의 목표 유지와 동시에 촉매사용의 비용을 낮추는 방법을 모색할 필요가 있다.

이러한 관점에서, 본 연구에서는 저온에서  $NH_3$ 의 높은 전환율을 확보하면서, Ag ( $Cu-Ag/Al_2O_3$ ) 촉매에 저비용의 Cu 도핑을 통한 복합 촉매에 대한 실험적 연구를 진행하였다.

### 2. 실 험

#### 2.1 시료제조 및 물성분석

본 연구에서 사용된 지지체인 Activated

alumina (surface area; 149.8 m²/g)는 2 mm의 볼 타입이며, AgNO<sub>3</sub> (99 %), Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> (99.8 %)를 과잉용액함침법 (Excess wet impregnation method)으로 담지하여 분산하였다. Fig. 1에 도 시한 바와 같이 Ag-Cu의 혼합 조성비는 (10-x)Ag-xCu (0≤ x ≤6) 의 일정비율로 혼합 한 후 교반하여 함침용액을 제조한 다음, 500 ℃ 에서 3시간 동안 전처리한 지지체를 함침용액과 1 : 2 비율로 24 시간 동안 과잉용액에 함침하였 다. 상등액을 제거하기 위하여 여과법을 이용하여 고-액 분리를 하였으며, 금속 담지 알루미나 촉 매는 100 ℃의 건조기에서 6시간 건조함으로써 남아있는 수분을 제거하였다. 다음 5 vol% H<sub>2</sub> (mixing gas: N2) 또는 Air 분위기를 유지한 특 정온도(500 ℃) 범위에서 3시간 소성시킴으로써 활성화 및 환원 처리하였다. 또한 촉매제의 비표 면적 및 기공 특성을 분석하기 위하여 질소 흡· 탈착법을 이용한 BET (Bruner-Emmett-Teller) 를 사용하였다. 금속담지에 의한 활성알루미나의 화학적 결정구조는 XRD (X-ray Diffractometer, Rigaku D/max-RB, Japan)를 통하여 분석하였 고, 측정조건은 40 kV, 40 mA 출력으로 2g 범 위 3.5~90°, 주사속도는 6°/min 으로 측정하 였다.

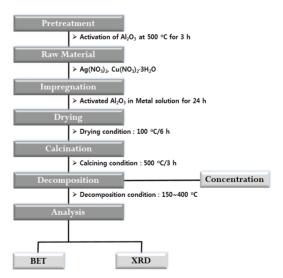


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental process.

Ag-Cu의 혼합 조성비에 따른 샘플명은 아래 와 같이 명명하였다. raw Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: RAC  $x=0, 10Ag : AC_10$ x=3, 7Ag-3Cu : AC 7 x=4, 6Ag-4Cu: AC 6 x=5, 5Ag-5Cu : AC 5 x=5.5, 4.5Ag-5.5Cu:  $AC_4.5$ x=6, 4Ag-6Cu: AC 4

#### 2.2. 실험장치 및 방법

제조된 금속담지 알루미나 촉매의 활성을 평가 하기 위한 실험실 규모의 반응기를 제작하였다. Fig. 2는 직경 5.5 cm, 길이 50 cm의 스테인리 스 강 재질로, 볼 타입의 촉매를 충진할 수 있는 평형류의 반응기를 자체 제작하였다.

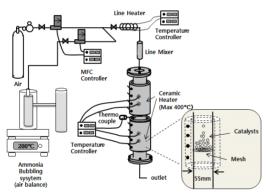


Fig. 2. Schematic diagram of the catalytic reactor (decomposition equipment) for NH<sub>3</sub> oxidation.

실험에 사용된 가스상 NH3는 암모니아수 (Ammonia solution, 28 %)와 혼합가스로 공기 (Air, 99.99 %)를 사용하였다. 공급되는 NH3는 pyrex 재질의 밀폐된 둥근 플라스크에 주입한 후 고순도 공기를 미세하게 흘려보내 주어 NH3 용 액을 기화시켜준 후 Line Mixer (SUS304, 15 A, 20 L)를 통하여 압축공기와 일정하게 혼합되도록 하였다. 공급되는 가스의 농도를 조절하기 위하여 유량조절장치(Mass flow controller, MFC)를 사 용하였다. 반응기의 온도조절은 Temperature Controller (Model TZN-4H. (주)Autonics)가 연결된 특수제작 세라믹 히터 (Max temp. 450 °C, (주)덕치산업)를 반응기 외벽 전체에 설치하고 열의 손실을 최소화하기 위하여 보온단열커버 (Ceramic Fiber Wool)를 히터 외부에 감싸서 보온단열성을 향상시켰다. 분해 전, 후의 NH3 농도 및 부산물 가스의 농 도는 검지관 (GASTEC, USA)를 사용하여 측정 하였다. 분석에 사용한 실험조건을 Table 1에 요약하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 구조적 분석

Table 2는 5 vol.%의 H<sub>2</sub> 분위기에서 활성화된 촉매의 물리적 특성 중 촉매가 지닌 비표면적 및 기공특성변화를 질소 흡·탈착 실험을 통해 확인하 였다. 지지체로 사용된 산화알루미나(RAC)는 197.6 m²/g의 비표면적과 7.55 nm의 기공직경 및 0.37 cm³/g의 기공부피를 보유하고 있다. Ag-Cu의 혼합조성물을 함침한 경우 비표면적이 171.3~179.9 m<sup>2</sup>/g의 범위로 감소를 확인할 수 있었다. 이는 담지 금속에 의해 지지체인 RAC의 표면 기공이 부분적으로 채워짐으로써 표면적이 감소한 것으로 판단된다 [21]. 그러나 평균세공크 기는 오히려 8.17~9.16 nm로 약간 커졌으며, 이 는 금속입자가 미세공의 입구를 막거나 내부로 침투해 들어가 비표면적의 크기를 감소시키는 것 과 더 작은 미세기공들을 막힘으로서 평균크기는 오히려 증가한 것으로 해석된다 [22]. 또한 활성 화 단계에서 500 ℃의 열처리에 의해 금속입자

Table 1. Operation Condition of NH<sub>3</sub> Decomposition Test

Parameter	Applications	
Activated gas	Air or 5 vol% H <sub>2</sub> (balance gas: N <sub>2</sub> )	
Space velocity	$10,000 h^{-1}$	
Gas concentration	600 ppm NH <sub>3</sub> (balance gas: Air)	
Decomposition temperature	150 ∼ 400 °C	
Detector	Gastec GV-100 gas detector & Gas detecting tube	

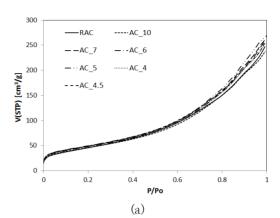
가 내부로 침투해 들어갈 때 미세기공의 벽을 들 치면서 들어가는 경우가 있으며, 이러한 때에 미 세기공의 벽이 원위치로 복원되지 않아 세공의 입구가 커진 영향도 있는 것으로 판단된다 [23]. 또한 미세공의 내부로 침투해 들어간 금속입자가 활성화시 열에 의해 세공이 확대되는 경우도 있 다 [24].

Table 2. Compositions and Properties of Catalysts

	Surface & Pore property			
	$S_{BET}$	Dp	Vpore	
	$(m^2/g)$	(nm)	(cm <sup>3</sup> /g)	
RAC	197.6	7.55	0.3728	
AC_10	171.3	8.17	0.3499	
AC_7	178.3	9.05	0.4036	
AC_6	174.2	9.16	0.3988	
AC_5	179.9	8.75	0.3933	
AC_4.5	178.0	8.87	0.3719	
AC_4	176.6	8.82	0.3895	

Fig. 3은 상용 산화알루미나와 제조 촉매의  $N_2$  등온흡착곡선과 BJH에 의해 측정된 기공분포도 곡선이다. (a)의  $N_2$  등온흡착곡선은 5가지 유형 중 Type II 에 해당되는 것으로, 미세기공보다 휠 씬 더 큰 세공경 또는 비다공성임을 보여준다. (b)는 BJH에 의해 측정된 기공분포도로,  $10\sim20$  nm 크기의 중간세공으로 이루어져 있는 것으로 확인되었다.

Fig. 4는 금속담지 활성알루미나의 표면 조성변 화 및 결정 구조 변화를 확인하기 위한 XRD 측 정 결과이다. 활성화된 금속 담지 촉매(AC\_4~ 10) 모두 지지체인 상용 산화알루미나(RAC)의 결정구조를 유지하는 것으로 확인되었다. 또한 Ag의 조성비율이 높을수록 Ag<sub>2</sub>O(□)가 나타났으 며, 혼합된 Cu에 의해 CuO(△)와 CuAlO<sub>2</sub>(▽)의 피크가 나타난 것을 확인할 수 있었다. 즉, Table 2의 결과와 같이 산화알루미나가 가진 기공에 담 지 금속이 함침됨으로써 비표면적의 감소와 함께 표면의 성분 변화에 의해 결정구조에도 영향을 미친 것으로 판단된다. AC\_10과 같이 Ag가 단독 함침된 촉매의 경우 함침물질에 의한 피크의 강 도 차이가 확연히 나타났으나, 복합 금속을 함침 한 경우 조성비에 따른 차이는 뚜렷한 경향성은 나타내지 않았다.



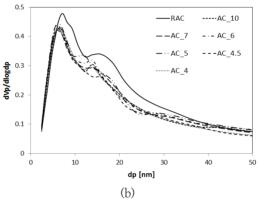


Fig. 3.  $N_2$  adsorption isotherms curves and pore size distribution curves for catalysts ((a)  $N_2$  adsorption isotherms covers, (b) pore size distribution corves).

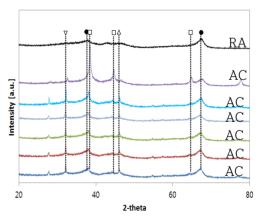


Fig. 4. XRD patterns of the catalysts ( $\bullet$ : Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\square$ : Ag<sub>2</sub>O,  $\triangle$ : CuO,  $\nabla$ : CuAlO<sub>2</sub>).

#### 3.2. 촉매 활성

Fig. 5는 Ag와 Cu의 조성비율에 따라 제조한 복합 금속 촉매의 온도에 따른 NH3 전환율을 나 타낸 것이다. 조성비율의 조건에 상관없이 350 °C와 400 °C에서는 100 %의 전화율을 보인 반 면, 300 ℃ 이하의 온도분위기에서는 조성비율에 따른 전환율의 차이가 확연히 나타나는 것을 확 인할 수 있었다. Ag 비율보다 Cu 비율이 높은 AC 4의 경우 가장 낮은 전환율을 보였으며, 본 연구의 타겟온도인 저온(150 ~ 200 ℃)에서는 60 % 이하로 매우 낮았다. Ag의 비율이 증가함 에 따라 저온의 온도분위기에서도 NH3의 전환율 이 증가하였으며, Ag와 Cu의 조성비가 5 : 5인 AC 5의 경우, 200 ℃의 온도에서 93.8 &의 높 은 전환율을 보였다. 이를 통해 Ag가 Cu보다 NH3 분해에 있어 더 효과적인 것을 확인할 수 있었다.

촉매에 의한 암모니아 분해는 무해한 질소가스 와 물로 변환하는 산화반응이지만, 일부 유해한 질소산화물을 형성하기 때문에 부산물인 NO와 NO<sub>2</sub>의 생성여부의 분석이 필요하다 [21].

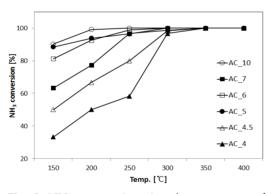


Fig. 5. NH<sub>3</sub> conversion in the presence of various catalysts.

(S.V.: 10,000 h<sup>-1</sup>, NH<sub>3</sub> conc.: 600 ppm)

Fig. 6은 NH3에 대한 제거효율이 우수한 Ag 단독 금속 촉매인 AC\_10과 Ag와 Cu를 5 : 5의 조성비로 함침된 복합 금속 촉매인 AC 5의 질소 산화물에 대한 선택도를 확인한 것이다. 두 촉매 모두 200 °C 이하에서 NO와 NO2가 생성되지 않았으나, 250 ℃에서는 NO<sub>2</sub>의 경우 AC\_10은 6 ppm, AC 5는 2 ppm이 측정되었다. 또한 분 해온도가 증가할수록 NO와 NO2의 생성량이 증 가하는 것을 볼 수 있었으며, 특히 Ag만 단독 함

침된 AC 10의 경우, NH3에 대한 전환율은 우수 하나 고온의 온도범위에서는 질소산화물의 생성 량이 급격히 증가하는 것을 볼 수 있었다. Ag와 Cu의 복합 금속 촉매의 조성비의 최적화 및 저 온에서의 암모니아 전화율을 최대화함과 동시에 저온 분해에 의해 부산물인 질소산화물의 발생량 을 줄일 수 있었다.

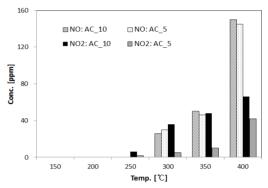


Fig. 6. NO<sub>x</sub> conversion in the presence of various catalysts

(S.V.: 10,000 h<sup>-1</sup>, NH<sub>3</sub> conc.: 600 ppm)

#### 4. 결 론

본 연구는 악취물질인 암모니아 가스에 대한 촉매 조성비율의 최적화를 통해 전환율의 극대화 및 NO와 NO<sub>2</sub>와 같은 유해성분의 부산 가스 발 생을 최소화하고자 하였다.

암모니아에 대한 제거효율이 우수한 Ag와 전 환율은 낮으나 촉매분해 반응에 의해 생성되는 No 선택도가 우수한 Cu를 활성물질로 선정하였 으며, Ag만 함침된 단독 금속 촉매와 Ag와 Cu의 조성비율에 따른 복합 금속 촉매에 대한 구조적 물성 분석과 NH3의 전환율, NO와 NO2의 생성 량을 확인하였다. 그 결과 지지체로 사용된 상용 산화알루미나(RAC)와 금속 담지 촉매 모두 비다 공성 또는 미세기공보다 큰 기공을 가진 Type Ⅱ에 해당하는 것을 확인할 수 있었다. 또한 NH₂ 전환율에 있어 350 °C 이상의 온도범위에 서는 조성비에 상관없이 100 % 제거되었으나, 저온 영역(150 ~ 200 °C)에서는 AC\_10 〉 AC\_5 > AC\_6 > AC\_7 > AC\_4.5 > AC\_4 순 으로 나타났다. 또한 NH2에 대한 전화율이 우수 한 AC\_10과 AC\_5의 분해 후 생성되는 부산 가 스를 측정한 결과 Ag가 단독 함침된  $AC_100$  NO와  $NO_2$ 를 더 많이 생성하였으며, 분해온도가 높을수록  $NO_x$ 의 생성이 증가하는 것을 확인할수 있었다. 따라서 암모니아 제거효율이 우수한 Ag 단독 촉매보다는 Cu를 일정비율 혼합하여 제조한 복합 금속 촉매가 환경적·경제적 측면에서 더 적합한 것으로 사료된다.

#### 감사의 글

본 연구는 환경부 차세대 에코이노베이션 기술 개발사업의 "도장 및 코팅공정 고기능 유해가스 및 입자처리 시스템 모듈화 및 설계"연구비 지 원으로 이루어졌으며, 이에 감사드립니다(과제번 호:401-112-015).

#### References

- A. Wollner, F. Lange, H. Schmelz, and H, Knozinger, Characterization of mixed Copper-manganese Oxides Supported on Titania Catalysts for Selective Oxidation of Ammonia., Appl. Catal. A, 94, 181–203 (1993).
- N.N. Sazonova, A.V. Simakov, T.A. Nikoro, G.B. Barannik, V.F. Lyakhova, V.I. Kheivot, Z.R. Ismagilov and H. Veringa, Selective Catalytic Oxidation of Ammonia to Nitrogen, React. Kinet. Catal. Lett., 57, 71–79 (1996).
- 3. J.J. Ostermaier, J.R. Katzer, and W.H. Manogue, Platinum Catalyst Deactivation in Low-temperature Ammonia Oxidation Reactions: I. Oxidation of Ammonia by Molecular Oxygen., *J. Catal.* **41**, 277–292 (1976).
- 4. Kocat INC., Soonchunhyang University Industry Academy Cooperation Foundation, 1007855230000 (2007).
- R. Burch and B.W.L. Southward, A Novel Application of Trapping Catalysts for the Selective Low-temperature Oxidation of NH<sub>3</sub> to N<sub>2</sub> in Simulated Biogas., *J. Catal.* 195, 217–226 (2000).

- M. Amblard, R. Burch, and B.W.L. A Study of the Mechanism of Selective Conversion of Ammonia to Nitrogen on Ni/ γ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> under Strongly Oxidizing Conditions, *Catal. Today*, **59**, 365-371 (2000).
- L. Gang, J. van Grondelle, B.G. Anderson, and R.A. van Santen, Selective Low temperature NH<sub>3</sub> Oxidation to N<sub>2</sub> on Copper-based Catalysts, *J. Catal.* 186, 100–109 (1999).
- 8. M. Amblard, R. Burch, and B.W.L. Southward, The Selective Conversion of Ammonia to Nitrogen on Metal Oxide Catalysts under Strongly Oxidising Conditions, *Appl. Catal. B*, **22**, 159–166 (1999).
- 9. J.J.P. Biermann, Ph. D. Thesis, University of Twente, (1990).
- M. de Boer, H.M. Huisman, R.J.M. Mos, R.G. Leliveld, A.J. Dillen, and J.W. Geus, Selective Oxidation of Ammonia to Nitrogen over SiO<sub>2</sub>-supported MoO<sub>3</sub> Catalysts, *Catal. Today*, 17, 189–200 (1993).
- F.J.J.G. Janssen and F.M.G. van den Kerkhof, Selective Catalytic Removal of NO from Stationary Sources, KEMA Sci. & Techno. Reports 3, 71–85 (1985).
- J.P. Chen and R.T. Yang, Role of WO<sub>3</sub> in mixed V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-WO<sub>3</sub>/TiO<sub>2</sub> Catalysts for Selective Catalytic Reduction of Nitric Oxide with Ammonia, *Appl. Catal.* 80, 135–148 (1992).
- 13. G. Tuenter, W.F. van Leeuwen, and L.J.M. Snepvangers, Kinetics and Mechanism of the NOx Reduction with NH<sub>3</sub> on V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-WO<sub>3</sub>/TiO<sub>2</sub> Catalyst, Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev. 25, 633-636 (1986).
- 14. E.T.C. Vogt, A. Boot, A.J. van Dillen, J.W. Geus, F.J.J.G. Janssen, and F.M.G. van den Kerkhof, Preparation and Performance of a Silica–supported V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> on TiO<sub>2</sub> Catalyst for the Selective Reduction of NO with NH<sub>3</sub>, *J. Catal.* **114**, 313–320 (1988).

- 15. J.J.P. Biermann, F.J.J.G. Janssen, M. De Boer, A.J. Van Dillen, J.W. Geus, and E.T.C. Vogt, Molybdena on Silica Catalysts: Selective Catalytic Oxidation of Ammonia to Nitrogen over MoO3 on SiO2 Catalysts, J. Mol. Catal. 60, 229-238 (1990).
- 16. M. de Boer, A.J. van Dillen, D.C. Koningsberger, J.W. Geus, Remarkable Spreading behavior of Molybdena on Silica Catalysts, An in situ EXAFS-Raman Study, Catal. Lett., 11, 227-240 (1991).
- 17. G. Lu, B.G. Anderson, J. van Grondelle, Low Temperature R.A. van Santen, Selective Oxidation of Ammonia to Nitrogen on Silver-based Catalysts., Appl. Catal. B, 40, 101-110 (2003).
- 18. N.I. Il'chenko, G.I. Golodets, and I.M. Avilova, Kinet. Catal. 16, 1264 (1975).
- 19. N.I. Il'chenko, Catalytic oxidation of ammonia, Russ, Chem, Rev. 45, 1119 (1976).

- 20. G. Lu, B.G. Anderson, J. van Grondelle, R.A. van Santen, W.J.H. Van Gennip, J.W. Niemantsverdriet, P.J. Kooyman, H.H. Knoester and Brongersma, Alumina-supported Cu-Ag Catalysts for Ammonia Oxidation to Nitrogen at Low Temperature, J. Catal. 206, 60-70 (2002).
- 21. Y.H. Lim, J.Y. Lee, and B.H. Park, Catalytic Oxidation of Ammonia over Metal Supported on Alumina at Low Temperature, I. of Korean Oil Chemists Soc., 30(3), 371-379 (2013).
- 22. K. Kutics and M. Suzuki, Adsorption of Organics on Surface Modified Activated Carbon Fibers, The 2nd Korea-Japan Symposium on Separation Technology, June 1-2, Seoul, 395-398 (1990).
- 23. S.J. Gregg and K.S.W. Sing, Adsorption Surface area and Porosity, 2nd edi., Academic Press, Inc., London (1982).
- 24. W.K. Lee, K.H. Kim, S.K. Ryu, and B.S. Decomposition of NO Park. Cu-impregnated ACFs, Korean Chem. Eng. Res., 42(2), 196-201 (2004).