

NH₃-SCO 반응에서 Vanadium 담지함량이 Pt/V/TiO₂ 촉매에 미치는 영향

김민수 · 김기왕 · 홍성창*,†

경기대학교 일반대학원 환경에너지공학과, *경기대학교 환경에너지공학과
(2022년 10월 28일 접수, 2022년 11월 18일 수정, 2022년 11월 19일 채택)

Effect of Vanadium Loading Amount on Pt/V/TiO₂ Catalyst on NH₃-SCO Reaction

Min Su Kim, Ki Wang Kim and Sung Chang Hong*,†

Department of Environmental Energy Engineering, Graduate school of Kyonggi University, Suwon-si 16227, Korea

*Department of Environmental Energy Engineering, Kyonggi University, Suwon-si 16227, Korea

(Received October 28, 2022; Revised November 18, 2022; Accepted November 19, 2022)

초 록

본 연구에서는 Pt/V/TiO₂ 촉매 제조 시, V 담지 함량에 따른 NH₃-SCO (selective catalytic oxidation) 반응 활성을 비교하였다. NH₃ 전환율 및 N₂ 선택성을 모두 고려하였을 때, V이 2 wt% 담지된 촉매에서 가장 우수한 성능을 나타내었다. 이에 따라 물리/화학적 특성과 반응활성과의 상관관계를 확인하였을 때, 격자산소종의 증가 및 (V³⁺ + V⁴⁺) 비율의 증가가 활성인자임을 확인하였다. 또한 가장 우수한 촉매를 이용하여 SO₂ 내구성 실험을 진행하였을 때, 고농도의 SO₂가 주입되더라도 영향이 미미함을 확인하였다.

Abstract

In the study, NH₃-SCO (selective catalytic oxidation) reaction activity according to vanadium loading amount were compared when preparing Pt/V/TiO₂. Considering both NH₃ conversion rate and N₂ selectivity, V 2 wt% loading of the catalyst showed the best activity. When the correlation between physical/chemical characteristics and reaction activity was confirmed, it was confirmed that the increase in lattice oxygen and (V³⁺ + V⁴⁺) ratios were active factor. In addition, when the SO₂ durability experiment was conducted using the best catalyst, it was confirmed that the influence was insignificant even if the high concentration of SO₂ was injected.

Keywords: Vanadium, NH₃-SCO, N₂ selectivity, SO₂

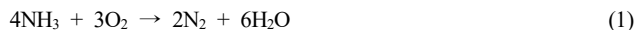
1. 서 론

과거부터 에너지 소비는 산업화 이후 꾸준히 증가되고 있으며, 지속적인 산업발달과 경제 성장에 따라 더 많은 에너지 소비가 있을 것으로 예상되고 있다. 화석연료는 주요 에너지 자원으로 지속적으로 사용되어 왔으나, 미세먼지, 온실가스 및 대기오염물질 배출에 대한 문제를 지니고 있다.

암모니아는 주요 5대 대기오염물질 중 하나로서, 악취 물질로 선정되어 있고, 질소산화물 및 황산화물과 반응하여 질산암모늄 또는 황산암모늄을 형성하여 초미세먼지를 유발한다. 이러한 암모니아는 반도체 공정, 요소수 제조 공정에서 발생하고 있으며, 질소산화물 처리를 위한 선택적 촉매 환원법(SCR; selective catalytic reduction) 공정에 환원제로써 미반응 암모니아가 대기중으로 배출되기도 한다. 최근에

는 2050 탄소중립 목표를 달성하기 위한 에너지원으로 암모니아가 관심을 받고 있으며, 기존 화석연료 및 LNG 연료에 암모니아를 혼합연소하거나 암모니아 자체 연소를 통한 방안이 추진되고 있으며, 이때에도 불완전 연소에 대한 암모니아 배출에 대한 문제가 거론되고 있기 때문에 이에 대한 처리 방안이 필요한 실정이다.

암모니아를 처리하는 기술로써 과거부터 흡착제가 가장 많이 사용되고 있지만, 흡착제는 파괴점(break through point)에 도달하면 교체를 해주어야 하고, 고농도 암모니아일 경우 교체주기가 짧아 경제성에 큰 문제를 보이고 있다. 따라서 암모니아를 제거하는 방법 중 농도에 영향이 미미하며, 무해한 질소로 전환시킬 수 있는 암모니아의 선택적 촉매 산화법(SCO; selective catalytic oxidation)이 주목을 받고 있으며, 반응식은 아래와 같다[1-2].



† Corresponding Author: Kyonggi University
Department of Environmental Energy Engineering, Suwon-si 16227, Korea
Tel: +82-031-249-9733 e-mail: schong@kgu.ac.kr

NH₃-SCO 촉매로써 귀금속(noble metal) 계, 전이금속(transition metal) 계 촉매로 구분되어 연구되고 있다. 전이금속계 촉매의 경우 Cu, Mn, Fe, Co, Ce 등을 이용하고 있지만, 350 °C 이하에서 NH₃ 전환율이 매우 저조하며, NH₃ 전환율은 높게 촉매를 제조하여도 N₂로의 선택성 측면에서 활성이 저조한 단점을 지니고 있다[3-5]. 귀금속 계 촉매의 경우, Pt, Pd, Ag, Ru을 TiO₂ 또는 Zeolite에 담지하여 저온에서의 NH₃ 전환율이 높게 나타나고 있다[6-8]. 하지만 무해한 질소로의 선택성이 떨어지는 단점이 있기 때문에 이에 대한 보완이 필요한 실정이다.

따라서 본 연구에서는 NH₃ 전환율뿐만 아니라 N₂로의 선택성 증진을 위한 방안으로 Pt/TiO₂에 V를 조촉매로 선정하여 담지함량에 따른 반응 활성을 확인하고 활성 인자를 도출하고자 한다. 또한 최적 촉매를 선정하고 이에 대한 SO₂ 내구성 평가를 통해 공정 적용성을 확인하고자 한다.

2. 실험

2.1. 촉매제조방법

본 연구에 사용된 촉매의 금속산화물은 수산화 백금[Pt(OH)₂, SNS Co.]을 활성금속으로 사용하였으며, 조촉매로는 암모늄 메타 바나테이트(Sigma aldrich Co.), 지지체로는 상용 TiO₂ (G-5, Millennium Co.)로 제조하였다. 본 연구에서 사용된 촉매의 활성금속은 지지체에 대한 무게비로 담지를 하였고 이때의 무게 비는 wt%로 나타내었으며 표기는 '0.1 wt% Pt'와 같이 표기를 하였다. 촉매를 제조하는 방법으로는 대표적인 촉매제조 방법인 함침법(wet impregnation method)을 사용하였다.

먼저 지지체로 사용된 TiO₂ 대하여 조촉매의 함량을 무게비(0~3.0 wt%)로 결정된 후 계산한다. 계산된 조촉매의 양은 전구체를 제외한 순수 조촉매의 양만큼을 계산한 후 증류수에 녹인다. V 전구체가 증류수에 완전히 용해되면 정량된 지지체를 천천히 V 수용액에 혼합한다. 슬러리 상태의 혼합용액을 1시간 이상 교반한 후 회전식 진공 증발기(Eyela CO. N-N series)를 이용하여 70 °C에서 65 mmHg의 진공에 의하여 수분을 증발시킨다. 수분을 증발시킨 시료는 미세기공에 포함된 수분을 완전히 제거하기 위하여 105 °C 건조로에서 24시간 이상 건조시킨 후 10 °C/min의 승온속도로 tubular furnace에서 400 °C 온도로 상승시킨 다음 4시간 공기분위기에서 소성하여 x wt% V/TiO₂를 제조하였다. 제조된 V/TiO₂에 활성금속의 함량을 무게비로 0.1 wt%로 결정된 후 계산하여 앞선 방법과 동일하고 교반 및 건조를 진행한다.

최종 건조를 마친 분말을 10 °C/min의 승온속도로 tubular furnace에서 400 °C 온도로 상승시킨 후 4시간 공기분위기에서 소성한다. 다시 한번 H₂ 분위기에서 1시간 환원을 하여 최종 촉매인 0.1 wt% Pt/x wt% V/TiO₂를 제조하였다. 이렇게 제조된 촉매는 실험을 수행하기 위하여 40~50 크기의 mesh를 사용하여 체거름하여 얻었다.

2.2. 실험장치 및 방법

본 연구에 실험장치는 크게 반응기 부분, 가스주입 부분 그리고 반응가스 분석 부분으로 구성하였다. 반응기에 공급되는 가스의 경우 NH₃, N₂, O₂의 각 bomb로부터 MFC (mass flow controller, MKS Co.)를 사용하여 유량을 조절하였으며 SO₂ 내구성 실험을 진행할 경우 추가적으로 SO₂ bomb를 연결하여 진행하였다. 또한, 수분공급은 N₂가 bubbler를 통과하여 수분을 함유한 N₂를 반응기에 주입하였으며 이때 공급되는 양을 일정하게 조절하기 위하여 이중 jacket 형태의 bub-

Table 1. NH₃-SCO Experimental Condition

Particle size(mesh)	40 ~ 50	
Reaction temperature (°C)	200 ~ 400	
Inlet gas conc. (Ar balance)	NH ₃ (ppm)	10
	O ₂ (vol. %)	0 ~ 15
	H ₂ O (vol. %)	0 ~ 6
	SO ₂ (ppm)	50 ~ 200
Space velocity (hr ⁻¹)	60,000	

bler 외부에 circulator를 이용하여 40 °C 온도의 물을 순환시켰다. 가스공급 관은 전체에 걸쳐 stainless steel 관으로 제작하였으며 NH₃의 line slips 또는 수분의 응축을 방지하기 위해서 heating band를 감아 180 °C 온도로 일정하게 유지하였다. 반응기는 연속 흐름형 고정층 반응장치로서 내경 8 mm, 높이 600 mm 인 석영(quartz)관으로 제작하였으며 촉매층을 고정하기 위해서 quartz wool을 사용하였다. 반응기 온도의 경우 상부에 장착된 K-type의 thermal couple을 이용하여 PID 온도제어기를 통해 조절하였으며 가스 유입부의 온도를 측정하기 위하여 촉매층 상부에 thermal couple을 설치하여 촉매층 온도를 측정하였다. 반응물과 생성물의 농도를 측정하기 위하여 NO와 N₂O는 비분산 적외선 가스분석기(Uras10E, Hartman & Braun Co.)를 사용하였다. NO₂는 주 반응기 출구부에서 검지관(9L, Gas Tec. Co.)을 이용하여 측정하였으며 암모니아의 농도는 검지관(3L, 3La, 3M, Gas Tec. Co.)을 사용하였다. 모든 가스는 분석기로 유입되기 전에 수분은 chiller 내의 수분 트랩에서 제거시킨 후 유입하였다. 반응 조건 및 실험 변수는 Table 1에 나타내었다. 본 연구의 실험에서는 제거 대상인 NH₃의 농도를 10 ppm로 하였으며 H₂O는 6.0%, O₂는 8.0%, 공간속도(Space velocity; S.V.)는 60,000 h⁻¹로 하였다. 또한 SO₂ 내구성 실험에서는 SO₂ 100~200ppm, NH₃ 10 ppm, H₂O 6.0% O₂를 8.0%, S.V.를 60,000 h⁻¹로 조절하여 실험을 수행하였다. 촉매의 반응활성인 NH₃ 전환율 및 N₂ 선택도는 다음과 같이 식 1, 식 2에 정의하였다.

$$NH_3 \text{ conversion} = \frac{[NH_3]_{in} - [NH_3]_{out}}{[NH_3]_{in}} \times 100 \quad (1)$$

$$NH_3 \text{ to } N_2 \text{ conversion}(\%) = \frac{[NH_3]_{in} - [NH_3]_{out} - [NO]_{out}}{[NH_3]_{in}} \times 100 \quad (2)$$

2.3. 촉매 특성 분석

2.3.1. BET (Brunauer-Emmett-Teller)

촉매의 기공 부피 및 비표면적 측정은 Micromeritics Co.의 ASAP 2010C 장비를 사용하였으며, BET (Brunauer-Emmett-Teller)식을 이용하여 비표면적을 구하였다. 이 때 각각의 시료는 300 °C에서 2 h 동안 진공상태로 가스를 제거하여 분석하였다.

2.3.2. CO-chemisorption

촉매의 금속산화물의 분산도 및 결정의 크기를 분석하기 위하여 2920 autochem (Micromeritics)을 사용하였다. 분말형태의 촉매를 30 mg U 형 반응기에 충전 후 10% H₂/Ar를 50 cc/min의 승온 속도로 승온 후 400 °C에서 90 min 간 유지하며 수분을 포함한 불순물을 제거하였다. 이후 He를 주입하며 흡착된 H₂를 제거하였다. 다음으로 촉매의 온도를 40 °C로 하온 한 후 10 vol.% CO/He를 주입 속도 50 cc/min으로 pulse 주입하며 촉매에 흡착된 CO의 양을 역으로 계산하

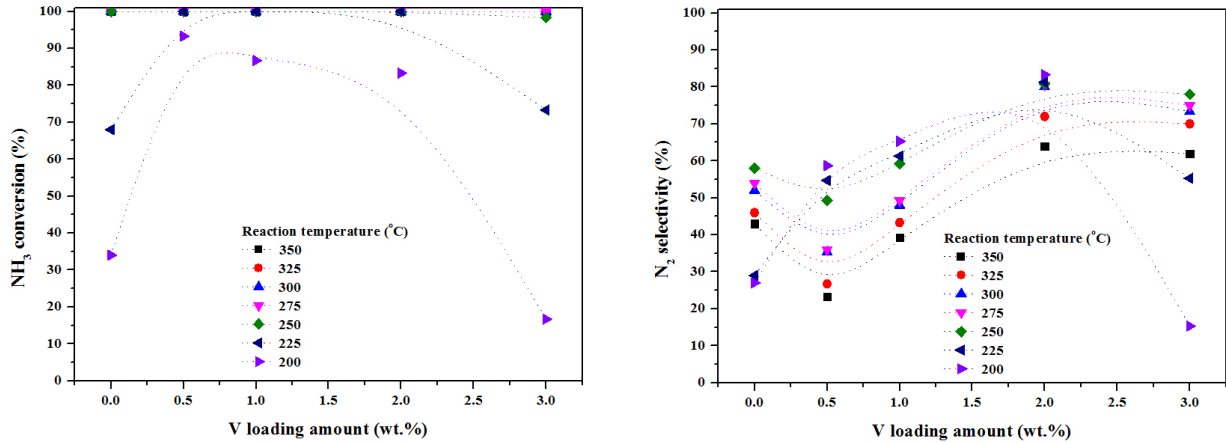


Figure 1. NH₃ conversion and N₂ selectivity over 0.1 wt% Pt/x wt% V/TiO₂.

여 측정하였다.

2.3.3. XPS (X-ray Photoelectron Spectroscopy)

XPS 분석은 Thermo사의 Alpha-K를 사용하였으며, excitation source로서 Al K α monochromatic (1486.6 eV)를 사용하였다. 촉매를 약 100 °C의 온도에서 25시간 건조하여 포함되어 있는 수분을 완전히 제거한 후 XPS 기기의 진공도를 10⁻⁶ Pa로 유지하기 위하여 표면 sputtering 및 etching을 하지 않고 분석하였다. 시료 내에 존재하는 원소를 wide scanning spectrum으로 분석하여 binding energy와 intensity를 확인하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Pt/TiO₂ 촉매의 V 담지 함량에 따른 NH₃-SCO 반응 활성

본 절에서는 0.1 wt% Pt/TiO₂ 촉매에 V를 0.5, 1.0, 2.0, 3.0 wt% 담지하여 NH₃-SCO 반응 활성을 확인하였으며, 그 결과를 Figure 1에 나타내었다. NH₃ 전환율을 확인해보면, 0.1 wt% Pt/TiO₂ 촉매는 250~350 °C에서 100%의 전환율을 나타내었으며, 온도 감소에 따라 전환율이 급격하게 감소하여 200 °C에서는 약 34%의 전환율을 나타내었다. V이 담지될 때, 3 wt% 담지 촉매를 제외하고 모든 촉매에서 전환율이 증가되었으며, 0.5 wt%가 담지된 촉매에서 220 °C까지 100%의 전환율을 나타내고 200 °C에서 약 83%의 우수한 전환율이 확인되었다. N₂로의 선택성을 확인해보면, 0.1 wt% Pt/TiO₂ 촉매는 200~350 °C의 실험 온도 전 구간에서 60% 이하로 저조함을 확인하였다. V이 2.0~3.0 wt% 담지될 경우, 기존 촉매 대비 선택성이 크게 증가됨을 확

인하였다. 특히 V이 2.0 wt% 담지된 촉매는 325~350 °C에서 약 70~80%의 선택성이 확인되었고, 200~300 °C에서 80% 이상의 우수한 선택성을 나타내었다.

따라서 NH₃ 전환율 및 N₂ 선택성 모두를 고려하였을 때, 0.1 wt% Pt/2.0 wt% V/TiO₂ 촉매가 가장 우수하다고 판단된다.

3.2. V 담지 함량에 따른 물리/화학적 특성 분석과 반응활성과의 상관관계 연구

NH₃-SCO 반응활성 실험을 통해 V 2 wt% 담지 촉매가 가장 우수한 성능을 나타내었다. 이에 따라 V 담지 함량에 따른 물리/화학적 특성 분석을 수행하고 반응활성과의 상관관계를 확인하는 연구를 진행하였다.

먼저, 촉매의 비표면적 확인을 위한 BET 분석 및 active particle diameter, metal dispersion, metallic surface area 확인을 위한 CO-chemisorption 분석을 수행하였으며, 그 결과를 Table 2에 나타내었고 반응활성과의 상관관계를 Figure 2에 나타내었다. BET 분석 결과를 확인해보면, V이 담지될 때 비표면적이 61.24 m²/g에서 23.75 m²/g로 크게 감소되었다. 이후 V 담지 함량이 증가됨에 따라 비표면적이 증가됨을 확인하였으며, 가장 우수한 0.1 wt% Pt/2.0 wt%V/TiO₂ 촉매에서 25.36 m²/g로 분석됨을 확인하였다. Chemisorption 분석 결과를 확인해보면, V 담지량이 증가됨에 따라 active particle diameter, metal dispersion, metallic surface area 값이 증가되었으며, 가장 우수한 0.1 wt% Pt/2.0 wt%V/TiO₂ 촉매에서 각각 136.05 nm, 1.18%, 7.44 m²/g의 수치가 확인되었다.

Table 2. BET and CO-chemisorption Analysis of 0.1 wt%Pt/x wt% V/TiO₂ Catalysts with Different V Loading Amount

Catlayst	BET (m ² /g)	Active particle diameter (nm)	Metal dispersion (%)	Metallic surface area (m ² /g)
0.1 wt%Pt/TiO ₂	61.24	-	-	-
0.1 wt% Pt/0.5 wt% V/TiO ₂	23.75	103.61	0.89	4.93
0.1 wt% Pt/1 wt% V/TiO ₂	24.89	127.34	0.90	6.78
0.1 wt% Pt/2 wt% V/TiO ₂	25.36	136.05	1.18	7.44
0.1 wt% Pt/3 wt% V/TiO ₂	26.03	143.87	1.31	9.18

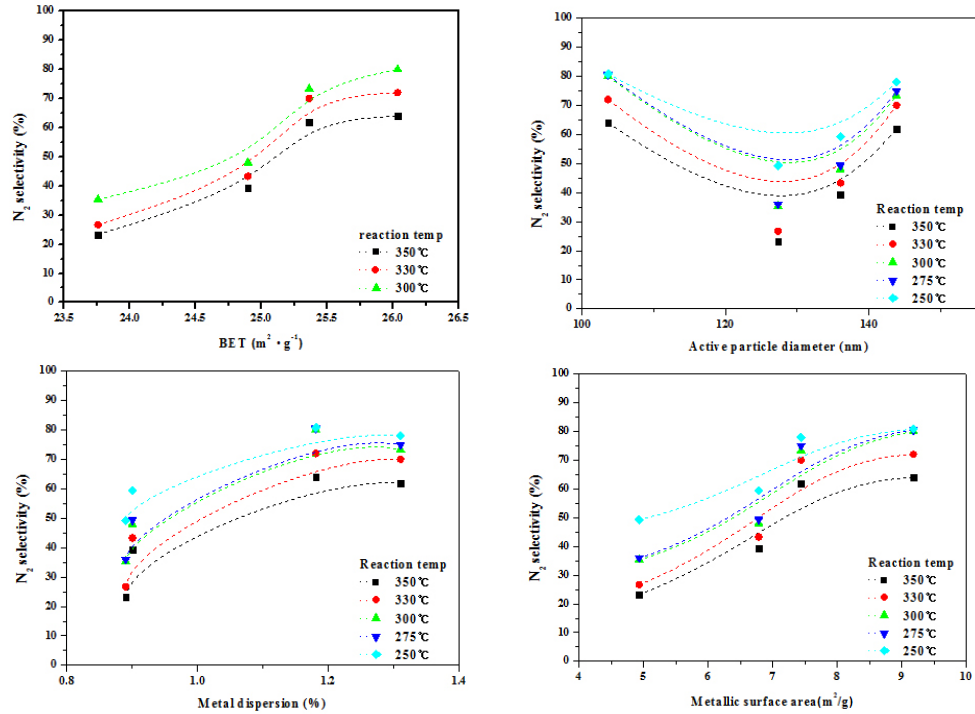


Figure 2. BET and CO-chemisorption analysis of 0.1 wt% Pt/x wt% V/TiO₂ catalysts with different V loading amount.

Table 3. XPS Analysis of 0.1 wt% Pt/x wt% V/TiO₂ Catalysts with Different V Loading Amount

Catalysts	Surface atoms ratio (%)								
	Pt ⁰	Pt ²⁺	Pt ⁴⁺	O _α	O _β	O _γ	V ³⁺	V ⁴⁺	V ⁵⁺
0.1 wt% Pt/TiO ₂	83.99	16.01	-	11.49	71.77	16.75	-	-	-
0.1 wt% Pt/0.5 wt% V/TiO ₂	37.96	62.04	-	67.72	18.58	13.70	33.94	38.25	27.80
0.1 wt% Pt/1 wt% V/TiO ₂	35.76	64.24	-	51.84	33.63	14.53	30.29	42.39	27.32
0.1 wt% Pt/2 wt% V/TiO ₂	32.33	67.67	-	36.38	48.21	15.42	36.93	40.87	22.20
0.1 wt% Pt/3 wt% V/TiO ₂	48.15	51.85	-	38.65	34.67	26.67	39.65	33.32	27.04

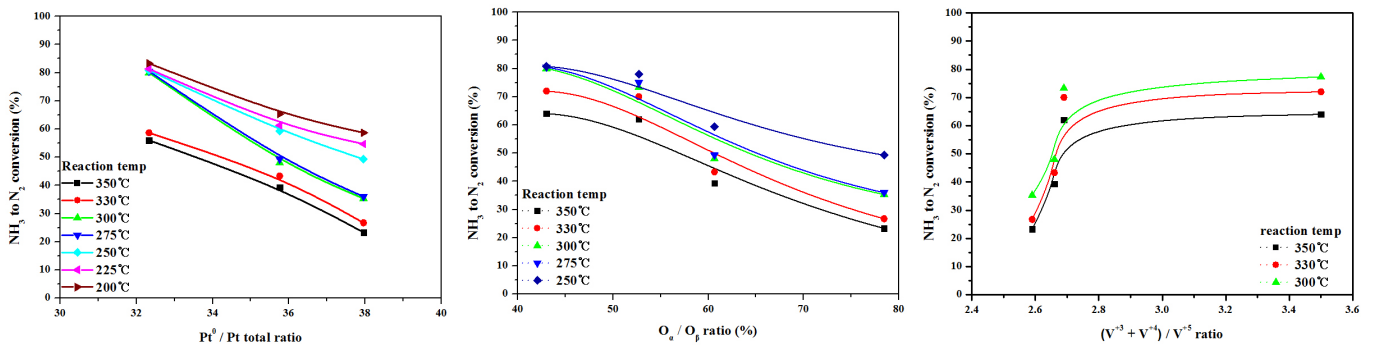


Figure 3. XPS analysis of 0.1 wt% Pt/x wt% V/TiO₂ catalysts with different V loading amount.

다음으로 V함량에 따른 촉매의 산화가 변화를 확인하기 위하여 XPS 분석을 수행하였으며, 그 결과를 Table 3에 나타내었고 반응활성과의 상관관계를 Figure 3에 나타내었다. Pt 산화가를 확인해보면, 0.1 wt% Pt/TiO₂ 촉매는 촉매제조과정에 환원공정에 의해 Pt⁰의 비율이 83.99%로 높은 수치를 나타내었다. V이 담지되는 과정에서 Pt⁰의 비율이 크게 감소됨을 확인하였으며, V 담지 함량이 2 wt%까지 증가되

면서 Pt⁰의 비율은 점차 감소되었으며, 3 wt%로 증가됨에 따라 다시 Pt⁰ 비율이 증가됨을 확인하였다. V 산화가를 확인해보면, V 담지 함량이 2 wt%까지 증가되면서 (V³⁺ + V⁴⁺)의 비율은 77.8%까지 증가되었으며, 3 wt%로 증가됨에 따라 (V³⁺ + V⁴⁺)의 비율이 72.9%까지 감소되었다. 가장 우수한 0.1 wt% Pt/2.0 wt% V/TiO₂ 촉매에서는 비화학적(V³⁺ + V⁴⁺) 비율이 가장 높게 나타남을 확인하였다. 비화

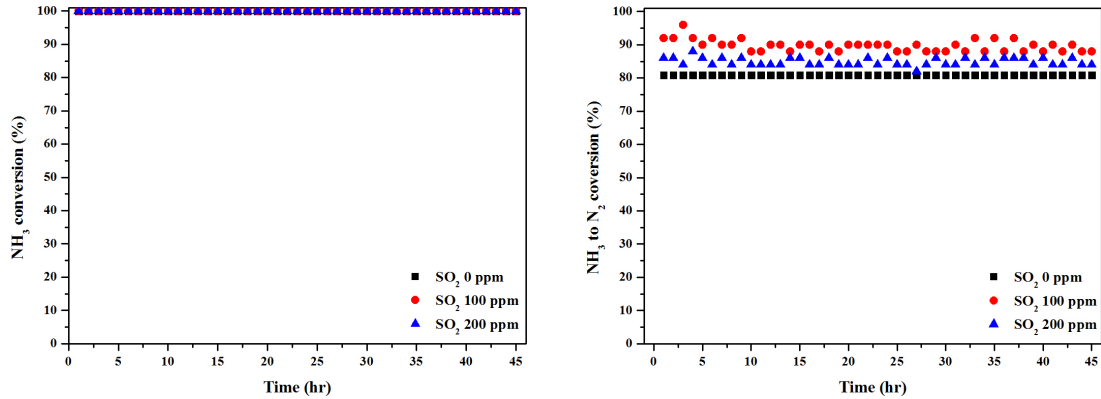


Figure 4. The effect of SO_2 injection over 0.1 wt% Pt/2 wt% V/TiO₂ catalyst on long-run test.

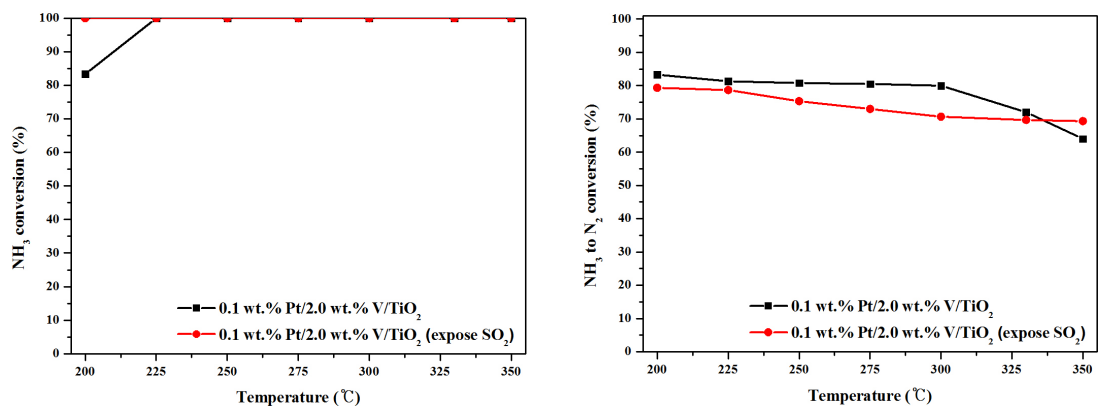


Figure 5. The effect of expose SO_2 over 0.1 wt% Pt/2.0 wt% V/TiO₂ catalyst.

학 양론적인 V^{4+} 나 V^{3+} 는 V^{x+} ($x \leq 4$)로 표현될 수 있으며, V^{x+} ($x \leq 4$)는 화학 양론적으로 안정화된 V^{5+} 에 비하여 불안정한 상태이며, 이는 V^{5+} 에 비하여 저온에서 orbital을 벗어난 위치(delocalized orbital)에 존재하게 되고 반응성이 매우 높기 때문에 낮은 활성화 에너지에 의하여 쉽게 전자의 이동이 가능하다[9-14]. 따라서 조촉매로 담지된 V의 산화가는 NH_3 -SCO 반응 활성화에 영향을 미치는 인자 중 하나라고 판단된다. 마지막으로 O의 산화가를 확인해보면, V 담지 함량이 2 wt%까지 증가되면서 격자산소(O_a) 중의 비율은 36.3%까지 감소되고 화학흡착 산소(O_b) 중의 비율은 48.21%까지 증가되었으며, 3 wt%로 증가됨에 따라 격자산소(O_a) 중의 비율은 38.65%까지 증가되고 화학흡착 산소(O_b) 중의 비율은 34.67%까지 감소되었다[15-16]. 격자산소 중과 화학흡착 산소 중의 비율로 N_2 전환율과 비교하였을 때, 화학흡착 산소 중의 비율이 증가할수록 N_2 전환율이 증가되었으며, NH_3 -SCO 반응 활성화에 영향을 주는 인자라고 판단된다.

3.3. V 첨가 유무에 따른 SO_2 유입 조건에서의 NH_3 -SCO 반응 활성화

NH_3 및 H_2O 는 SO_2 와 반응하여 NH_4HSO_2 (ABS; ammonium bis-sulfate)를 형성시킨다. ABS의 경우, 부식성이 강하고 열전달을 방해하는 물질로써, 촉매층에 침적되어 촉매 비활성화를 유발하고, 공정 후단 장치부식 문제를 유발시킬 수 있다. 따라서 본 절에서는 0.1 wt% Pt/TiO₂ 촉매와 V 담지 촉매 중 가장 우수한 0.1 wt% Pt/2.0 wt% V/TiO₂ 촉매의 SO_2 유무에 따른 NH_3 -SCO 반응 활성을 확인하였다.

먼저, SO_2 농도를 0, 100, 200 ppm으로 선정하고 250 °C에서 촉매의 SO_2 내구성 실험을 진행하였으며, 그 결과를 Figure 4에 나타내었

다. 실험결과, SO_2 내구성 실험 결과 SO_2 농도에 상관없이 NH_3 전환율은 100%를 나타내었다. N_2 선택성을 확인해보면, SO_2 농도가 100 ppm으로 증가될 때 N_2 선택성 또한 증가됨을 확인하였으며, 200 ppm으로 증가될 때는 N_2 선택성이 다시 감소되었지만, SO_2 가 없는 조건보다 3~5% 높은 선택성을 나타내었다.

다음으로 250 °C에서 SO_2 200 ppm주입을 통한 내구성 실험이 완료된 후촉매를 이용하여 200~350 °C까지의 NH_3 -SCO 반응 활성 실험을 진행하였으며, 그 결과를 Figure 5에 나타내었다. 반응 실험은 온도에 따른 영향을 최소화하기 위하여 200 °C부터 350 °C까지 온도를 상승시키면 진행하였다. NH_3 전환율을 확인해보면 225~350 °C까지 전환율이 모두 100%로 확인되었으며, 200 °C에서는 83%에서 100%로 증가됨을 확인하였다. N_2 선택성을 확인해보면, SO_2 가 없는 조건의 촉매 실험 대비 약 5~10%의 성능 감소를 확인하였다. 따라서 본 연구에서 V 담지량을 최적화한 0.1 wt% Pt/2.0 wt% V/TiO₂ 촉매의 경우 SO_2 의 영향이 미미하다고 판단된다.

4. 결 론

본 연구는 V 담지 함량에 따른 Pt/V/TiO₂ 촉매의 반응 활성을 확인하고 물리/화학적 특성과 반응 활성화 간의 상관관계 여부를 확인하였으며, 최종적으로 촉매의 SO_2 내구성 실험을 진행하였으며, 이에 대한 결론은 다음과 같다.

1. Pt/TiO₂ 촉매에 조촉매인 V 담지에 따라 NH_3 -SCO 성능이 증진됨을 확인하였다. 200~350 °C의 온도 범위에서 NH_3 전환율뿐만

아니라 N₂ 선택성이 고려하였을 때, V 담지함량이 2 wt%일 때 최적 촉매라고 판단된다.

- 물리/화학적 특성과 반응활성의 상관관계를 확인하기 위한 분석을 수행하였으며, XPS 분석을 통해 격자산소종이 많아지고, 비화학양론적(V³⁺ + V⁴⁺)의 비율이 높아질수록 전자이동이 유리하여 N₂ 선택성이 우수해짐을 확인하였다.
- 고농도 SO₂를 동시 유입하는 조건에서 최적 촉매인 0.1 wt% Pt/2.0 wt% V/TiO₂ 촉매의 SO₂ 내구성이 우수함을 확인함에 따라 SO₂ 존재 조건의 공정에 적용가능 할 수 있을 것이라 판단된다.

결론

This work was conducted under framework of Research and Development Program of the Korea Institute of Energy Research (KIER)(C2-2435).

References

- M. J. Lippits, A. C. Gluhoi, and B. E. Nieuwenhuys, A comparative study of the selective oxidation of NH₃ to N₂ over gold, silver and copper catalysts and the effect of addition of Li₂O and CeO_x, *Catal. Today*, **137**, 446-452 (2008).
- S. A. C. Carabineiro, A. V. Matveev, V. V. Gorodetskii, and B. E. Nieuwenhuys, Selective oxidation of ammonia over Ru(0001), *Surf. Sci.*, **555**, 83-93 (2004).
- C. Chen, Y. Cao, S. Liu, and W. Jia, The effect of SO₂ on NH₃-SCO and SCR properties over Cu/SCR catalyst, *Appl. Surf. Sci.*, **507**, 145153-145160 (2020).
- F. Gao, Y. Liu, Z. Sani, X. Tang, H. Yi, S. Zhao, Q. Yu, and Y. Zhou, Advances in selective catalytic oxidation of ammonia (NH₃-SCO) to dinitrogen in excess oxygen: A review on typical catalysts, catalytic performances and reaction mechanisms, *J. Environ. Chem. Eng.*, **9**, 104575-104594 (2021).
- M. Jablonska and A. M. Robles, A comparative mini-review on transition metal oxides applied for the selective catalytic ammonia oxidation (NH₃-SCO), *Materials*, **15**, 4770-4793 (2022).
- M. Jablonska, TPR study and catalytic performance of noble metals modified Al₂O₃, TiO₂ and ZrO₂ for low-temperature NH₃-SCO, *Catal. Commun.*, **70**, 66-71 (2015).

- T. Lan, Y. Zhao, J. Deng, J. Zhang, L. Shi, and D. Zhang, Selective catalytic oxidation of NH₃ over noble metal-based catalyst: State of the art and future prospects, *Catal. Sci. Technol.*, **10**, 5792-5810 (2020).
- R. Q. Long and R. T. Yang, Noble metal (Pt, Rh, Pd) promoted Fe-ZSM5 for selective catalytic oxidation of ammonia to N₂ at low temperature, *Catal. Lett.*, **78**, 353-357 (2002).
- G. Ramis, L. Yi, G. Busca, M. Turco, E. Kotur, and R. J. Willey, Adsorption, activation, and oxidation of ammonia over SCR catalysts, *J. Catal.*, **157**, 523-535 (1995).
- E. Moran, C. Cattaneo, H. Mishima, B. A. López de Mishima, S. P. Silveti, J. L. Rodriguez, and E. Pastor, Ammonia oxidation on electrodeposited Pt-Ir alloys, *J. Solid State Electrochem.*, **12**, 583-589 (2007).
- G. S. Wong, and J. M. Vohs, An XPS study of the growth and electronic structure of vanadia films supported on CeO₂(111), *Surf. Sci.*, **498**, 266-274 (2002).
- N. Y. Topsoe, J. A. Dumesic, and H. Topsoe, Vanadia-Titania catalysts for selective catalysis reduction of nitric oxide by ammonia, *J. Catal.*, **151**, 241-252 (1995).
- J. Haber, M. Witcko, and R. Tokarz, Vanadium Pentoxide. Structures and Properties, *Appl. Catal. A*, **157**, 3-22 (1997).
- J. Haber and M. Witcko, Oxidation catalysis-electronic theory revisited, *J. Catal.*, **216**, 416-424 (2003).
- Z. Wu, R. Jin, Y. Liu, and H. Wang, Ceria modified MnO_x/TiO₂ as a superior catalyst for NO reduction with NH₃ at low-temperature, *Catal. Commun.*, **9**, 2217-2220 (2008).
- S. M. Lee, H. H. Lee, and S. C. Hong, Influence of calcination temperature on Ce/TiO₂ catalyst of selective catalytic oxidation of NH₃ to N₂, *Appl. Catal. A:Gen.*, **470**, 189-198 (2014).

Authors

Min Su Kim; Graduate Student, Department of Environmental Energy Engineering, Graduate school of Kyonggi University, Suwon-si 16227, Korea; kms0508@kyonggi.ac.kr

Ki Wang Kim; Graduate Student, Department of Environmental Energy Engineering, Graduate school of Kyonggi University, Suwon-si 16227, Korea; n-kkw303@nate.com

Sung Chang Hong; Ph.D., Professor, Department of Environmental Energy Engineering, Kyonggi University, Suwon-si 16227, Korea; schong@kgu.ac.kr