

Removal Efficiency of Organic Iodide on Silver Ion-Exchanged Zeolite and TEDA-AC at High Temperature Process

고온공정에서 은교환 제올라이트 및 TEDA 침착활성탄의 유기요오드 제거성능

Byung-Seon Choi, Geun-II Park, Seong-Hoon Kim, Juhyeon Yoon, Yoon-Yeong Bae, Sung-Kyun Zee,*
Ho-Yeon Yang**, and Seung-Kon Ryu***

*Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

**Korea Hydro & Nuclear Power Co. Ltd., 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

***Chungnam National University, 220 Gung-dong Yuseong-gu Daejeon, Korea

bschoi@kaeri.re.kr

최병선, 박근일, 김성훈, 윤주현, 배윤영, 지성균*, 양호연**, 유승곤***

*한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

**한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 덕진동

***충남대학교, 대전광역시 유성구 궁동 220번지

(Received December 1, 2003, Approved December 15, 2003)

Abstract

Adsorption and desorption characteristics of methyl iodide at high temperature conditions up to 250°C by TEDA-impregnated activated carbon and silver-ion exchanged zeolite(AgX-10), which are used for radioiodine retention in nuclear facility, were experimentally evaluated. In the range of temperature from 30°C to 250°C, the adsorption capacity of base activated carbon decreased sharply with increasing temperature but that of TEDA-impregnated activated carbon showed higher value even at high temperature ranges. Especially, the residual amount of methyl iodide after desorption on TEDA-AC represented 30% lower value than that on AgX-10. However, it can be used as an adsorbent for the removal of methyl iodide up to 150°C if it is preventing explosion by ignition. The breakthrough curves of methyl iodide in the fixed bed packed with AgX-10 up to 400°C were compared upon the effects of bed temperatures, bed depth and input concentration of methyl iodide. Removal mechanism of methyl iodide on AgX-10 was proposed, based on the analysis of by-product gas generated from adsorption reaction.

Key words : methyl iodide, zeolite, activated carbon, AgX, TEDA-AC, adsorption, desorption

요약

원자력시설에서 방사성요오드 제거용으로 사용되는 TEDA 침착활성탄의 고온공정에서의 메틸요오드의 제거성능을 은이온제올라이트(AgX)와 상호 비교하였다. 30°C~400°C 온도범위에서 온도에 따른 메틸요오드의 흡착량 및 탈착후 잔존량을 측정된 결과, 비침착활성탄의 흡착성능은 온도가 증가함에 따라 급격히 감소하지만 TEDA 침착활성탄의 흡착성능은 100°C 부근에서도 AgX-10과 거의 유사한 값을 나타내었고, 탈착후 잔존량은 250°C 까지도 비침착활성탄에 비하여 매우 높은 값을 유지하였다. 또한 100°C 이상의 고온공정에서 AgX 및 TEDA 침착활성탄을 충전한 고정층 파괴특성을 상호 비교한 결과 100°C 이상에서 AgX-10의 메틸요오드 흡착량 및 잔존량은 TEDA 침착활성탄에 비하여 평균 30%정도 높은 값을 나타내어 고온에서 더 흡착성능이 우수함을 보여주고 있다. 흡착반응 후 생성된 기체의 성분을 분석한 결과를 토대로 AgX-10 흡착제를 충전한 고정층에서 메틸요오드 제거 메커니즘을 제안하였다.

Key words : 메틸요오드, 제올라이트, 활성탄, AgX, TEDA, 흡착, 탈착

I. 서론

원자력발전소 및 사용후핵연료를 이용하는 원자력시설 등에서 발생하는 방사성 기체폐기물 중 특히 방사성 요오드는 발생량이 비교적 많을 뿐 아니라 인체 및 자연환경에 미치는 위해도가 크므로 정상 운전시 뿐만 아니라 사고시에도 방사성 기체의 방출 규제치 이하로 처리되어야 한다. 이를 위하여 방사성요오드의 발생원 및 화학적 형태, 제거 방법등에 대하여 많은 연구가 수행되어 왔다.[1~5] 원자력발전소에서 발생하는 방사성요오드는 계통내의 유기물질과 반응하여 방사성 유기요오드(특히 메틸요오드)로 전환되며 이러한 방사성 유기요오드는 원자력 발전소의 중대사고시 가동되는 Spray 시스템에 의해서 효과적인 제거가 불가능하므로 KI나 TEDA (TriEthyleneDiAmine) 등의 화학물질이 침착된 활성탄 필터를 사용하는 것을 원칙으로 하고 있다.[2,5] 또한 사용후 핵연료를 취급하는 건식공정의 경우 주로 유기요오드보다는 원소요오드, 특히 ^{129}I 의 발생량은 무시할 수 없을 정도이며, 고온공정에서 방사성요오드를 제거하기 위하여 은이온교환 제올라이트를 사용하고 있다. 일반적으로 원자력발전소에서 사용중인 TEDA 침착활성탄은 사고시의 고습도 조건에서도 제거성능을 유지할 수 있도록 주기적으로 성능검사를 수행하고 있지만, 고온 조건하에서 침착활성탄에 의한 방사성요오드의 제거

성능은 급격히 감소하고 발화의 가능성 때문에 사용후 핵연료 이용시설과 같은 고온공정일 경우 침착활성탄을 사용할 수 없다. 따라서 이러한 고온 분위기 하에서도 효과적으로 방사성요오드를 제거할 수 있는 은교환 무기고체흡착제의 국내 자체개발을 위하여, 본 실험실에서는 여러가지 은교환 무기흡착제를 제조하여 방사성 유기요오드의 제거성능을 전반적으로 평가하였고, 제조된 은이온 교환 흡착제의 보다 다양한 성능평가를 위하여 사용한 흡착제(담체) 종류별로 공정온도 변화에 따른 성능평가를 수행하였으며, 이를 바탕으로 제올라이트 13X 담체를 이용한 은이온 교환 무기흡착제 (AgX)의 최적 제조조건을 설정하고 은 교환량 및 공정온도 변화에 따른 메틸요오드의 제거성능을 은의 이용률 관점에서 평가하여 최적 운전조건을 제시 하였다.[6~8] 본 연구에서는 제거 대상 요오드 형태를 메틸요오드로 선정하였다. 방사성요오드 제어와 관련된 흡착제 성능평가 관점에서 보면, 동일한 흡착제에 대하여 원소요오드 보다는 메틸요오드의 제거가 더 어려우며 따라서 성능검사 방법에 사용되는 방사성요오드 추적자 형태도 원소요오드보다는 메틸요오드를 사용하여 보다 보수적인 방법을 채택하고 있다. 본 연구에서는 원자력발전소에서 사용중인 TEDA 침착활성탄의 고온공정에서의 사용한계를 메틸요오드 흡착성능과 탈착후 잔존량의 관점에서 평가하였으며, 무게비 10wt%로 은이온이 교환된 합성제올라이트

트 (AgX-10wt%)의 고정층에서 흡착 파괴특성과 상호 비교하였다.

II. 실험

본 실험은 TEDA 침착활성탄 및 은이온 교환 무기 흡착제에 의한 메틸요오드의 제거성능을 분석하는데 있으며, 담체로 사용한 활성탄 및 13X의 온도증가에 따른 흡착성능을 동시에 비교하였다. 제올라이트 13X는 Aldrich (USA)사의 제품으로서 8~16 mesh로 입자크기를 sieving 하여 사용하였으며, 활성탄은 국내 (주)한일그린텍의 야자 각 활성탄으로서 13X와 동일한 입자크기를 사용하였다.

TEDA 침착활성탄의 제조방법은 본 연구실에서 제안한 특허에 상세히 기술되어 있으며, 본 실험에서는 TEDA 침착량은 6.5 wt%였다.[11] 은교환 제올라이트(AgX)는 AgNO₃시약을 이용하여 이온교환 방법에 의하여 제조하였는데, 먼저 일정 입자크기로 조절된 제올라이트 13X가 물과 접촉하였을 때 부서지지 않도록 하기 위하여 포화증기에 약 3일 동안 접촉시켜 일정 수분함량을 유지시킨 후 증류수로 여러 번 세척하여 부서진 작은 파편을 제거하고 은을 이온교환시키기 위하여 일정농도의 AgNO₃용액에 넣어서 약 24시간 동안 방치한다. 이온교환된 13X를 증류수로 2~3회 세척한 후 약 24시간 동안 120°C에서 감압상태로 건조시켰다. 본 연구에서는 AgX 제조시 포화증기에 의한 전처리 영향을 비교하기 위하여 전처리하지 않고 AgNO₃용액(ml)/담체양(g)의 비를 1~1.2로 하여 제조한 결과 흡착성능에는 큰 차이를 보이지 않음을 확인하였으며, 제조된 AgX는 이온교환 전후의 무게 증가를 측정하여 이온 교환량을 계산하였다.

본 연구에 사용된 실험 장치는 그림 1에 나타난 바와 같으며, 특히 모든 실험 장치는 관내에 요오드의 부착에 의하여 요오드의 손실이 생길 수가 있으므로 이를 최소화하기 위해 pyrex glass를 사용하였다. 또한 메틸요오드의 발생기의 출구부터 흡착탑을 거쳐 GC로 공급되는 관과 GC를 거쳐 나온 후에 배출되는 메틸요오드가 통과하는 배관을 70°C 이상의 일정 온도로 가열하였다. 흡착층에 공급되는 기체온도는 흡착층 중앙에 설치된 열

전대를 이용하여 조절하였고 흡착층은 내부직경 18mm, 외부직경 22mm, 길이 700mm의 Pyrex 튜브를 사용하였다. 흡착층을 사용할 흡착제로 일정높이 충전한 후 메틸요오드를 흘려보내기 전에 일정온도와 건조공기를 흘려보내서 일정 농도의 메틸요오드를 발생시켜 흡착실험을 수행하였고, 흡착후 메틸요오드가 포함되지 않은 공기를 주입하여 탈착특성을 분석하였다. 본 연구에서 수행한 흡착실험 변수의 범위와 운전조건을 표 1에 나타내었다.

III. 결과 및 고찰

30°C~250°C의 온도범위에서 담체로 사용한 4가지 흡착제(AC, 13X, TEDA-AC, AgX-10)에 대한 온도에 따른 최대 흡착량을 측정하였으며(그림 2), 메틸요오드가 흡착된 흡착제에 대하여 흡착시와 동일한 온도에서 탈착실험을 수행하였고 흡착제별로 메틸요오드의 탈착후 잔존량을 측정하였다(그림 3). 그림 2에 나타난 바와 같이 비침착활성탄의 경우 온도가 증가함에 따라 메틸요오드의 흡착성능은 급격히 감소하며, 특히 70°C 이상에서는 흡착성능이 현저히 감소함을 보이고 있다. 이에 비하여 TEDA 침착활성탄의 경우 70°C 이상의 온도 영역에서는 비침착활성탄보다 흡착성능이 월등히 우수하고 아울러 비침착활성탄은 흡착된 메틸요오드의 거의 대부분 탈착되는 반면 고온에서도 흡착량의 약 80%정도가 안정적으로 포집되어 있다.

아울러 메틸요오드의 탈착후 잔존량을 온도 변화에 따라 측정한 그림 3의 결과를 보면, 비침착활성탄의 경우 잔존량은 75°C 이상일 경우 흡착된 메틸요오드가 대부분 탈착되지만, TEDA 침착활성탄의 경우는 250°C 부근까지도 강한 화학결합을 유지하여 잔존량이 매우 높은 값을 유지하고 있다. 이러한 결과는 고온에서 TEDA와 메틸요오드의 강한 화학결합에 의하여 포집 안정성이 우수하기 때문이다. 그러나 100°C 이상에서 AgX-10의 메틸요오드 흡착량 및 잔존량은 TEDA 침착활성탄에 비하여 평균 30%정도 높은 값을 나타내어 고온에서 더 흡착성능이 우수함을 보여주고 있다. 따라서 앞서 언급한 AgX의 고온에서 흡착 특성과 TEDA 침착활성탄의

Table1. 메틸요오드 분석을 위한 실험장치의 운전조건 및 GC 분석조건

Experimental parameters	Operating conditions	Remarks
Process flow (liter/min)	4.0	
Superficial velocity (cm/sec)	26	
Bed depth (cm)	2.6 ~ 10	
Input concentration (mol/liter)	$10^{-6} \sim 10^{-4}$	
Gas generator temperature (°C)	5 ~ 30	농도에 의존

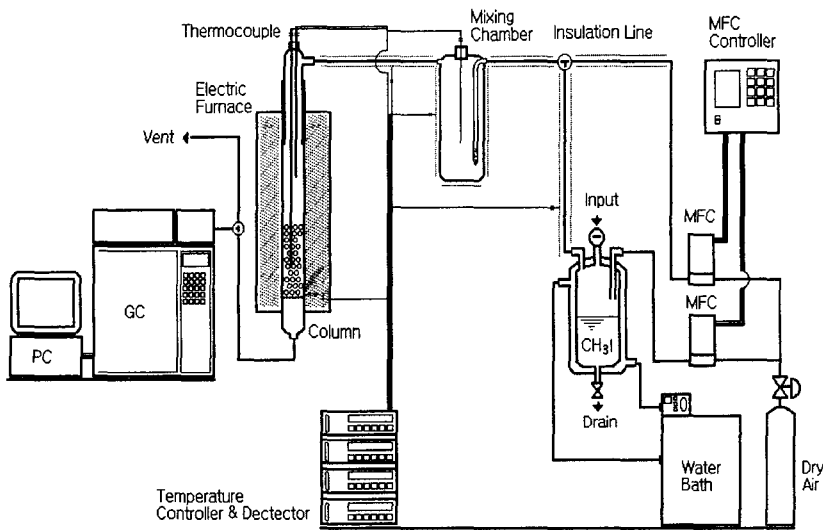


Fig.1. Schematic diagram of the experimental apparatus.

흡착특성을 동일한 조건에서 상호 비교하여 그림 4에 나타내었다.

예상한 바와 같이 100°C에서 두 흡착제간의 파과거동은 유사하게 나타났지만 150°C의 경우 AgX가 월등히 우수함을 보여주고 있다. 즉 흡착층의 온도가 약 100°C 정도까지는 TEDA의 휘발량이 높지 않아 요오드 제거측면에서 매우 효과적이었으나 그 이상의 온도영역에서는 TEDA의 휘발정도가 커서 흡착성능이 현저히 감소한 것으로 보인다.

따라서 경제성만을 고려할 경우 TEDA 침착활성탄도 약 100°C~150°C 범위의 온도영역에서는 방사성요오드

제거에 효과적으로 사용할 수 있을 것으로 판단된다. 그러나 고온에서 포집 안정성 및 처분까지 고려할 경우 AgX를 사용하는 것이 방사성요오드 제어측면에서 유리할 것으로 결론지을 수 있다.

일반적으로 배기체의 처리를 위한 흡착공정의 효율성 및 운전비용은 조업조건에 따라 크게 달라진다. 따라서 이를 위하여 흡착 운전조건별 특성을 분석하여야 하며, 일반적으로 충전탑에서 파과 특성 실험을 수행하여 운전 설계인자를 도출하여야 한다. 특히 고온공정에서 흡착열에 의한 영향이 클 경우 충전탑에서의 동적 거동이 매우 중요한 인자가 된다.

그림 5는 층높이를 10cm일 경우 메틸요오드 주입농도 변화에 따른 파과곡선을 도식한 결과로 주입농도가 감소할수록 파과시간이 증가하는 것은 일반적인 흡착현상이며, 주입농도가 약 4.5배 감소함에 따라($6.5 \times 10^{-5} \text{ mol/l} \rightarrow 1.5 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$) 허용농도($7 \times 10^{-12} \text{ mol/l}$)를 기준으로 파과시간은 약 5배 정도(50분 \rightarrow 250분) 증가하였다.

그림 6에서는 AgX-10 흡착제를 충전한 고정층에서 여러 온도(100 $^{\circ}\text{C}$, 175 $^{\circ}\text{C}$, 235 $^{\circ}\text{C}$, 400 $^{\circ}\text{C}$)에서 주입농도를 $5 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$ 로 하여 각 온도별 흡착과파 실험을 수

행하였고 층 높이를 2.6cm, 10cm인 경우를 상호 비교하였다. 흡착 온도별 영향을 보면, 층 높이가 2.6cm인 경우 설정한 온도범위에서 파과시간($C/C_0=0.1$ 에 도달시 까지 소요 시간)은 큰 차이를 보이지 않았지만 총 흡착량의 관점에서 보면 온도가 증가할수록 흡착량이 약간 감소함을 보였다. 또한 층 높이가 10cm인 경우 175 $^{\circ}\text{C}$ 인 경우가 다른 온도에 비하여 파과시간이 약간 길게 나타났지만 100 $^{\circ}\text{C}$ ~250 $^{\circ}\text{C}$ 의 온도범위에서 파과시간은 거의 차이가 없음을 확인하였다.

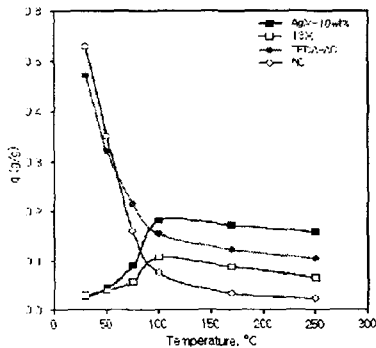


Fig. 2. Adsorption amounts of CH_3I with temperature on various adsorbents. (Bed Depth = 3cm, $C_0 = 5 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$).

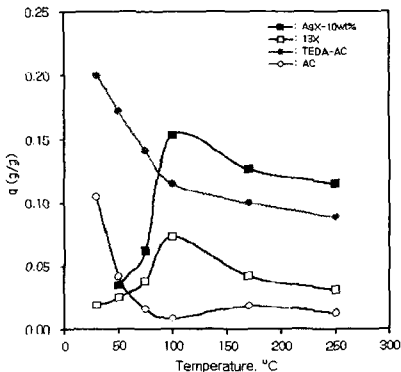


Fig. 3. Loading amounts of CH_3I after desorption with temperature on various adsorbents. (Bed Depth = 3cm, $C_0 = 5 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$).

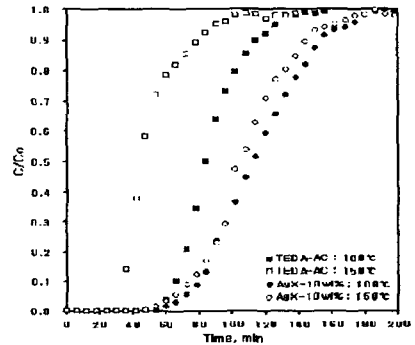


Fig. 4. Comparison of break through curves of methyl iodide using TEDA-AC with that using AgX-10wt% (Bed Depth = 3cm, $C_0 = 5 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$).

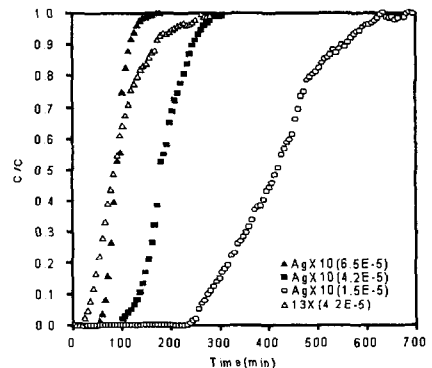


Fig. 5. Effect of input concentration of methyl iodide on the breakthrough behaviors in a deep bed of $L=10\text{cm}$ packed with AgX-10wt% at 175 $^{\circ}\text{C}$.

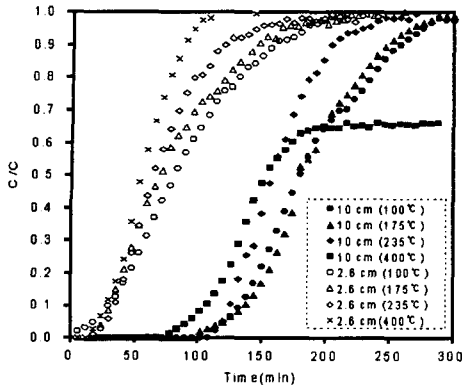


Fig. 6. Experimental breakthrough curves for methyl iodide in terms of temperature at deep bed of L=2.6cm and 10cm packed with AgX-10wt%.

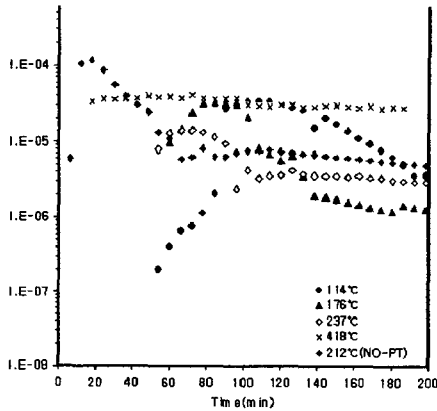


Fig. 7. Concentration profile of ethane gas with adsorption temperature on AgX-10. (Bed Depth=10cm, C₀=5x10⁻⁵ mol/L)

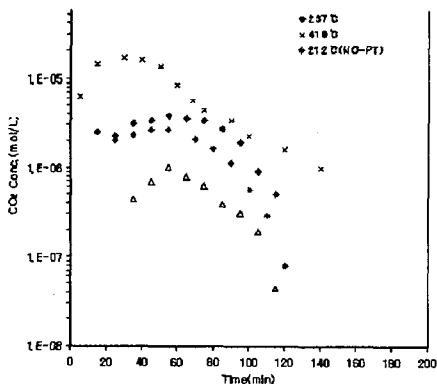
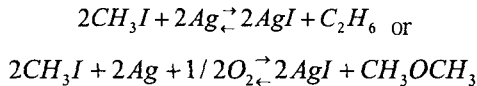


Fig. 8. Concentration profile of carbon dioxide with adsorption temperature on AgX-10. (Bed Depth=10cm, C₀=5x10⁻⁵ mol/L)

그러나 400°C의 파과곡선을 보면 흡착 후반부에 비정상적인 형태를 나타내었는데, 이러한 결과는 층 높이가 클수록 층 내부에서 흡착열에 의한 층 내부온도가 증가하고 고온에서 AgI의 촉매특성으로 인하여 메틸요오드 분해에 따른 영향으로 판단된다. 지금까지 AgX 흡착제를 이용한 방사성요오드 제거 성능평가는 주로 파과시간(허용농도 범위 이하)의 관점에서 수행되었기 때문에 고온에서 흡착 후반부의 비정상적인 파과특성은 관찰되지 않았다. 물론 이러한 현상학적인 규명이 흡착공정의 설계를 위해서 필요한 분야는 아니지만 고정층에서 동적인 특성과 흡착 메커니즘 규명을 위해서 세부적인 연구를 수행할 필요가 있다.

금속이온중 Co²⁺, Mn²⁺, Ni²⁺, Ag⁺ 등이 치환된 제올라이트는 촉매로서 많이 사용되고 NO의 선택적 환원반응에 효과적인 것으로 알려져 있으며 특히 메탄 등의 유기성분이 존재할 경우 환원반응 속도가 더 증가하는 것으로 밝혀진 바 있다[8, 9]. 따라서 고온일 경우 AgX를 이용한 메틸요오드 제거시 촉매반응이 수반되며 이 경우 AgX는 다음의 두 가지 기능을 가지고 있는 것으로 판단된다. 즉 Ag 이온은 메틸요오드와 화학반응뿐만 아니라 결합된 AgI가 메틸요오드를 분해시키는 촉매의 특성을 갖고 있으며, 화학반응 생성물인 에탄 등에 의하여 분해속도가 증가한다. 그림 7과 8은 층 깊이가 10cm 일 경우 층으로부터 유출되는 기체내 C₂H₆ 및 CO₂ 농도 변화를 도식한 결과이다. 그림에서 보는 바와 같이, 100°C일 경우 CO₂기체는 거의 생성되지 않았지만 C₂H₆ 기체는 약 60분 이후부터 생성되어 증가하다가 다시 감소하는 경향을 나타내었지만 온도가 증가할수록 C₂H₆ 및 CO₂ 기체 생성량은 증가하였다. 특히 400°C일 경우 흡착초기부터 C₂H₆ 기체가 생성되고 흡착이 진행됨에 따라 생성농도는 거의 차이를 보이지 않고 계속 비슷한 농도를 유지하였고, CO₂ 기체의 경우는 흡착 초기에 약 10⁻⁵mol/l 정도까지 증가하다가 서서히 감소하였다. 따라서 생성된 에탄기체가 파과특성에 영향을 미친다는 것을 확인하였으며, 주입기체내 에탄기체 농도가 10⁻⁵mol/l 일 경우 온도변화에 따른 파과실험을 수행한 결과 100°C의 경우 에탄기체의 주입에 따라 파과시간만 약간 감소하였지만 전체적으로 에탄기체가 주입되지 않

는 경우와 비슷하였다. 그러나 100°C 이상의 온도에서는 그림 6의 400°C의 경우와 같이 흡착이 진행됨에 따라 메틸요오드의 분해 성능이 뚜렷하여 175°C, 235°C, 400°C의 각각의 온도에서 주입된 메틸요오드 분해율은 30%, 30%, 70%로서 에탄기체 주입에 따른 영향이 매우 큰 것으로 나타났다. 즉 흡착초기에는 메틸요오드의 분해반응으로부터 생성된 요오드 라디칼(I·)이 Ag와 화학반응에 의하여 제거되지만 어느 시점부터는 에탄 농도 증가에 따른 Ag 또는 AgI 촉매의 분해성능 향상으로 인하여 주입된 메틸요오드의 분해반응만이 일어나는 것으로 생각된다. 또한 150°C 이상의 실험에서 흡착층으로부터 유출된 기체를 흡수용액을 이용하여 원소요오드 농도를 측정 한 결과, 주입기체내 요오드 성분 농도와 분해반응이 진행되는 동안 측정 한 원소요오드 농도의 질량수지(mass balance)가 거의 일치함을 알 수 있었다. 이상의 결과로부터 건조공기 분위기하에서 AgX와 메틸요오드 반응 메커니즘을 다음과 같이 제안하였다.



메틸요오드는 효과적인 전자포획 기체로서 기상에서 전자와 반응하여 CH₃·와 I·로 분해되며 전자포획을 위한 단면적은 0.15 eV에서 최대를 보이므로 낮은 전자에너지가 필요하다.[10] 따라서 상기 반응식은 Ag⁺ 이온이 촉매 성분으로 작용하여 bond breakage가 일어나고 Ag와 I가 화학결합하게 되며, CH₃ 라디칼이 서로 반응하여 C₂H₆가 생성된다. 아울러 화학결합한 AgI는 촉매 성분으로 작용하여 에탄을 산화시켜 CO₂ 기체가 생성되고 산화반응으로부터 생성된 전자는 메틸요오드에 공급되어 분해반응이 쉽게 일어나게 된다. 즉 AgX를 이용한 방사성 메틸요오드 제거시 고온에서 원소요오드가 부차적으로 생성될 수 있으며, AgX의 원소요오드 흡착 성능이 메틸요오드보다 더 우수하므로 이상과 같은 흡착현상은 기체폐기물 처리 관점에서 보면 유리한 측면으로 작용하게 된다. 즉, 온도가 증가함에 따라 메틸요오드는 Ag촉매에 의하여 분해되어 은과의 화학반응에 의하여 제거되는 것으로 판단된다.

IV. 결론

원자력발전소의 중대사고시 또는 사용후핵연료 건식 공정 등의 고온공정에서 발생하는 방사성 유기요오드 제거용으로 사용되는 TEDA 침착활성탄 및 은교환 제올라이트(AgX)의 온도 변화에 따른 메틸요오드 흡착 성능을 상호 비교 평가한 결과, 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다. 일반적으로 원자력발전소에서 사용 중인 TEDA 침착활성탄의 온도변화에 따른 흡착량 및 탈착 후 잔존량은 온도가 증가하더라도 비침착활성탄과 비교하여 매우 높은 값을 나타내었고, 150°C까지는 사용할 수 있을 것으로 판단된다. 특히 100°C~250°C범위에서 탈착후 잔존량은 AgX-10의 성능과 비교하여 약 30%정도 낮은 값을 나타내었지만, 경제성을 고려할 경우 발화의 가능성을 억제할 수 있다면 효과적인 흡착제로 사용될 수 있을 것으로 생각된다. AgX-10 흡착제를 충전한 고정층에서 메틸요오드 파괴특성 실험을 온도 및 층 높이, 주입농도 변화에 따라 수행한 결과, 400°C에서 파괴 곡선은 Ag촉매에 의한 메틸요오드 분해에 따른 영향으로 비정상적인 거동을 나타내었으며, 흡착반응 후 생성된 기체의 성분을 분석한 결과 C₂H₆와 CO₂가 생성됨을 확인하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. D. T. Pence and B. A. Staples, "Solid Adsorbents for Collection and Storage of Iodine-129 from Reprocessing Plants," In Proc. 13th AEC Air Cleaning Conference, CONF-740807, Atomic Energy Commission, Washington, DC, August. p157 1974.
2. International Atomic Energy Agency, Design of Off-Gas and Air Cleaning Systems at Nuclear

- Power Plants, Tech. No. 274, 1987.
3. J.G. Wilhelm and J. Furrer, "Iodine Filters in Nuclear Power Stations," In CEC Seminar on Radioactive Effluents from Nuclear Fuel Reprocessing Plants, Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Federal Republic of Germany, 1977.
 4. R.H. Bellamy, Elemental Iodine and Methyl Iodide Adsorption on Activated Charcoal at Low Concentrations, Nucl., Safety, vol. 15, 16, November, 1974.
 5. J.C. Wren, C.J. Moore and M.T. Rasmussen, "Methyl Iodide Trapping Efficiency of Aged Charcoal Samples from Bruce-A Emergency Filtered Air Discharge Systems," *Nuclear Technology*, 125, 28-39, 1999.
 6. B.S. Choi, G.I. Park, H.G. Lee and W.J. Oh, A Study on the Removal of Radioiodine on Silver-impregnated Adsorbents, Proceeding of the KNS Autumn Meeting, Vol. II, pp. 311-316, Taegu, Korea, 1997.
 7. B.S. Choi, G.I. Park, I.H. Cho, J.H. Kim and S.K. Ryu, Adsorption and Desorption Characteristics of Methyl Iodide on Silver Ion-Exchanged Synthetic Zeolite at High Temperature, Journal of Korea Nuclear Society, Vol. 32, No. 5, 2000.
 8. Liu, C.J., R. Mallinson, and L. Loggan, "Comparative Investigation on Plasma Catalytic Methane Conversion to Higher Hydrocarbons over Zeolite," *Applied Catalysis, General* 178, 17-27 (1999).
 9. Li, A., M.F. Stephanopoulos, "Selective Catalytic Reduction of Nitric Oxide by Methane over Cerium and Silver Ion-Exchanged ZSM-5 Zeolite," *Applied Catalysis A*, 165, 15-34 (1997).
 10. B.S. Choi, G.I. Park, J.H. Kim, J.W. Lee, and S.K. Ryu, Adsorption Equilibrium and Dynamics of Methyl Iodide in a Silver Ion-Exchanged Zeolite Column at High Temperatures, *Adsorption*, Vol. 7, No. 2, pp. 101-109, 2000.
 11. 이 후근, 박 근일, 박 성원, 전 관식, 박 현수, 방사성요오드를 제거하기 위한 TEDA/KI 침착활성탄 제조방법, 특허등록번호 제 072819 호