

Spectrophotometer를 이용한 방사성폐기물 슬러지 중 EDTA 측정

이승식, 안홍주, 표형열, 최광순, 손세철

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1

dl95082041@empal.com

1. 서론

EDTA (Ethylene Diamine Tetraacetic Acid)는 식품 첨가제나 화장품, 합성세제, 섬유처리제 등 산업전반적으로 널리 이용되고 있는 물질이다. 특히 EDTA는 강한 킬레이트제로서 금속과 결합하여 착화합물을 형성하는 특성에 따라 원자력발전소 운전과정 중 설비부식으로 생성된 금속산화물의 제거를 위한 세정제로써 이용되고 있다. 이와 같은 경로로 발생한 세정폐액은 원자력발전소 내 별도의 탱크에 저장 중에 있으며, 세정폐액 취급 시 발생된 제염지는 별도 보관 없이 일반 가연성 잡고체 폐기물로 분류되고 있다. 최근 중·저준위 방사성폐기물 드럼 인도기준(교과부 고시 제2008-65호)이 마련되면서 중·저준위 방사성폐기물 내 EDTA를 포함한 킬레이트제 함량에 대한 인식이 높아지고 있으며, 시멘트 고화체, 잡고체, 슬러지(Sludge) 등의 중·저준위 방사성 폐기물 내 EDTA 분석 필요성이 증가되고 있는 추세이다. 따라서 본 연구는 spectrophotometer법을 이용하여 중·저준위 방사성 폐기물 슬러지 내 EDTA 분석 방법 개발하고자 표준물을 사용하여 UV-VIS 측정방법으로 EDTA를 정량하였다. 이때 원자로 운전 중 생성량이 높을 것으로 예상되는 Fe 원소 등이 UV-VIS 측정의 간섭요인으로 작용하는 때문에 EDTA 측정방법에서 이를 검토하였다. 최종적으로 EDTA 정량화 기술을 적용하여 국내 원자력발전소로부터 발생한 중·저준위 방사성폐기물 슬러지에 대해 EDTA 함량을 정량적으로 분석하였다.

2. 실험

2.1 기기 및 시약

UV-VIS 측정은 Varian사의 Cary 3E UV-VIS spectrophotometer를 사용하였다. 초음파 침출 과정은 성동 초음파사의 SD-D300H를 사용하였다. 표준용액 제조는 0.02%의 오차 범위를 가지는 자동피펫을 이용하였다. 모든 시약은 analytical grade로 사용하였다.

2.2 방사성폐기물 내 EDTA 분석

국내 원자력발전소에서 발생한 방사성폐기물 슬러지 시료 #1과 #2를 분석하였다. 슬러지 #1과 슬러지 #2 시료는 약 29% 정도의 수분을 함유하고 있어 시료정량을 위하여 건조 과정이 요구되었다. 각 시료는 Dry oven에서 120°C, 5 시간동안 건조하였다. 건조된 시료 5 g을 비커에 담고 증류수 250 mL를 첨가하였다. 시료가 담겨있는 비커는 초음파 침출기를 사용하여 1 시간 정도 시료 내 EDTA를 침출하였다. 침출된 상등액 내 Fe 이온은 1 M NaOH를 첨가하여 Fe(OH)₃ 화합물로 침전시켰다. Fe 침전물은 여과를 통하여 제거되었다. 여과 용액은 pH가 높아 금속지시약과의 킬레이트 결합에 영향을 주기 때문에 6 M HCl을 사용하여 pH 1 이하로 낮추었고, 금속지시약과 금속이온을 일정량 첨가하여 UV-VIS 535 nm에서 EDTA를 측정하였다. 또한, EDTA 정량의 간섭효과를 조사하고자 100 ~ 400 mg/L의 Fe 표준물을 첨가하여 Fe(III) 간섭효과를 조사하였으며, 방사성폐기물 시료에 대해 Fe(III) 화학분리를 통해 EDTA를 UV-VIS로 정량하였다.

3. 결과

3.1 Fe(III) 간섭 조사 및 화학분리

Fe(III)의 간섭정도를 알아보기 위하여 Fe(III) 표준물을 첨가하여 용액 속의 EDTA를 분석해 보았다. 용액 내 Fe(III) 함량의 증가에 따라 spectrophotometer에 의한 투과율(%)은 비례적으로 감소하고 있음을 알 수 있었다. 이러한 결과는 EDTA가 모든 금속 이온과 1:1의 몰수비로 안정한 킬레이트를 만들에도 불구하고 Fe(III)이 UV-visible 측정 시 색도에도 영향을 주어 EDTA를 측정할 때 Fe(III)가 간섭요인으로 작용한다는 것을 보여주었다. 이러한 Fe(III)의 간섭원인을 확인 한 바 간섭요인을 상쇄하기 위한 실험을 수행하였다. EDTA와 Fe(III)가 혼합된 용액에 1 M NaOH를 pH가 12정도 될 때까지 천천히 적가 하였다. Fe(III)는 1 M NaOH를 사용하여 pH를 12정도 까지 높임으로 침전하는 것을 확인할 수 있었다. 이는 NaOH를 첨가함으로써 Fe(III)가 Fe(OH)₃로 침전한 것을 알 수 있었다.

3.2 슬러지 시료 내 EDTA 분석 결과

시료의 EDTA 분석과정은 NaOH를 이용한 Fe(III)가 Fe(OH)₃로 침전되는 과정과 금속 이온과의 킬레이트 결합을 위해 HCl을 첨가하는 과정으로 EDTA를 정량하고자 하였다. 그 결과를 Table 1에 나타내었다. 시료에 대한 결과는 시료의 샘플링에서부터 개별적으로 분석한 결과를 나타내었다. 분석결과 슬러지 #1이 51.6, 64.0, 48.1 $\mu\text{g/g}$, 슬러지 #2가 24.8, 22.2, 29.7 $\mu\text{g/g}$ 로 나타났다.

4. 결 론

최근 중·저준위 방사성폐기물 드립 인도기준이 마련되면서 중·저준위 방사성폐기물 내 EDTA를 포함한 킬레이트제 함량에 대한 인식이 높아지고 있으며, 방사성 폐기물 제염에 사용된 슬러지 시료 중 EDTA의 분석이 필요하였다. 따라서 중·저준위 방사성폐기물 내 EDTA를 정량하고자 시료전처리를 거쳐 UV-Visible 방식을 적용하였다. 먼저 EDTA를 정량함에 있어 간섭물질을 확인하였다. 확인결과 Fe(III)이 간섭물질인 것을 알 수 있었다. 원자력발전소에서 발생된 시료에 대한 EDTA를 분석하였다. 분석결과 EDTA 함량은 슬러지 #1이 $54.6 \pm 8.4 \mu\text{g/g}$, 슬러지 #2가 $25.6 \pm 3.8 \mu\text{g/g}$ 이었다. 본 연구를 토대로 향후 원전에서 발생된 중·저준위 방사성폐기물 내 EDTA 정량에 UV-Visible 방식이 적용되어 방사성폐기물 관리 안전성에 기여할 것으로 기대된다.

참고문헌

Ye L, Lucy CA, Anal Chem, 67, 2534-2538(1995).

ASTM, Annual book of ASTM standards, D 3113-80, pp. 140-142(1980).

Table 1. Results of EDTA measured by UV-VIS.

Samples	1st ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)	2nd ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)	3rd ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)	Ave \pm SD ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)
Sluge #1	51.6	64.0	48.1	54.6 ± 8.4
Sluge #2	24.8	22.2	29.7	25.6 ± 3.8