Journal of RADIATION INDUSTRY
Vol. 18, No. 4, pp. 367-372, 2024
https://doi.org/10.23042/radin.2024.18.4.367

Original article

EDTA에 의한 시멘트 고화체의 핵종 침출에 대한 연구

강명구[1,*] · 하재철[1]

[1]한국원자력환경공단

Study on Radionuclies Leaching from Cement Solidified Waste form by EDTA

Myunggoo Kang[1,*] and Jae-Chul Ha[1]

[1]Korea Radioactive Waste Agency, Chunghyochun-gil-19, Gyeongju-si, Gyeongsangbuk-do 38062, Republic of Korea

ABSTRACT Cementation is widely used to immobilize radionuclides in low- and intermediate-level radioactive waste. Ethylenediaminetetraacetic acid (EDTA), a common decontamination agent in nuclear power plants and facilities using radioactive isotopes, may be introduced into cement waste forms containing radionuclides. This study explored how EDTA in radioactive waste impacts the leaching behaviors of Co and Cs immobilized within the cement matrix. The leaching characteristics of Cs, Co, and EDTA from cement waste form were investigated based on ANS 16.1 standards. Co leaching increased due to the formation of highly mobile Co–EDTA complexes, while Cs leaching was hindered by competition with other metal–EDTA complexes. In case of Co, samples with 8 wt% EDTA exhibited a cumulative leaching rate (CLR) 20 times higher than those without EDTA. However, the CLR of Cs was reduced to 1/10 compared to samples without EDTA. However, the CLR of Cs was reduced to 1/10 compared to samples without EDTA. Although EDTA showed limited enhancement of Cs immobilization efficiency, it had a clear negative impact on Co immobilization efficiency, irrespective of EDTA concentration.

Key words: Cementation, EDTA, Cobalt, Cesium, Leaching

1. 서 론

방사성 폐기물이란 핵에너지를 사용하는 과정에서 발생하는 원자력 부산물을 지칭한다. 이러한 방사성 폐기물에는 높은 비방사능과 긴 반감기를 가지는 핵종을 포함하고 있다. 원자력 발전소에서 생성되는 전형적인 감마선 방출 핵종인 Cs 및 Co는 방사성 폐기물에 핵종이동을 지연시키는 적절한 조치가 없으면 방사선적으로 위협이 될 수 있다. Cs-137 상당히 긴 반감기(30.2년), 높은 핵분열 수율, 이동성 및 침출성 때문에 매우 위험한 방사성 원소로 알려져 있다[1-3]. 마찬가지로 냉각 시스템 및 원자로 구성 요소의 부식에서 유래된 Co-60는 긴 반감기(5.3년)와 독성 방사선 때문에 매우 위험합니다. 따라서 환경으로부터 Cs 및 Co를 효과적으로 고정화하고 분리하기 위한 수많은 연구가 진행되어왔다. 일반적으로 방사성폐기물의 고정화 및 안정화에 적용되는 기술로써 시멘트, 아스팔트, 유리, 플라스틱, 고화처리법 등이 있다. 이중 시멘트는 물리화학적, 열적 안정성뿐만 아니라 방사선 저항성 및 방사성 핵종 이동에 대한 높은 지연 능력을 가지고 있다[4,5]. 또한, 비용이 저렴하며, 다양한 형태의 폐기물에 적용가능한 장점 때문에 널리 사용되고 있다[6].

고화체 폐기물에 존재하는 방사성 핵종의 이동지연을 나타내는 침출특성 규명은 고화체의 개발, 특성규명을 통한 안전성 평가, 폐기물관리시스템 적용을 위한 품질보증 활동 등의 중요한 역할을 한다. 침출시험 결과는 품질보증과 실험실 간의 상호비교가 매우 중요한 사항이기 때문에 각국의 설정에 부합되게 표준화하고 있다. 이러한 침출시험은 IAEA 테스트와 ANS 16.1 같은 표준 침출 테스트를 사용하여 평가할 수 있다. IAEA 시험방법은 반무한고체 모델에 의해 환산 및 침출 과정을 해석할 수 있는 시험법이다[7]. 이 시험법은 시편 상부의 한 단면만을 노출시키고 나머지 면은 시편 제조용기나 침출수의 침입을 차단할 수 있는 물질로 둘러싸게 하여 침출시험 동안 고화체 형태의 건전성을 유지할 수 있기 때문에 시멘트 고화체와 같이 단단한 시편보다는 아스팔트나 파라핀 고화체와 같이 유연한 고화체 시

ISSN 1976-2402 **http://www.ksri.kr/**

Copyright© 2024 by Korean Society of Radiation Industry

***Corresponding author:** Myunggoo Kang
Tel: +82-54-750-4235, E-mail: kkang09@korad.or.kr

Received 4 November 2024 **Revised** 6 December 2024 **Accepted** 9 December 2024

편에 적합할 것으로 보인다. 다음으로 ANS 16.1에서는 90일간의 시험기간을 요구하고 있다[8]. 이 시험법은 시편 전체가 침출수와 접촉하게 하여 일정한 기간마다 침출되어 나오는 핵종의 양으로부터 침출률을 구하여 정해진 수식을 통하여 침출지수(Leaching Index, LI)를 도출한다. 한국원자력환경공단에서 발행한 중저준위방사성폐기물 인수기준에서 고화체 침출시험으로 ANS 16.1 준용하고 있다. 이에 본 연구에서 사용되는 시멘트 고화체 시편의 침출시험은 다른 고화체에 비하여 단단하며 한국원자력환경공단의 인수기준을 참고하여 ANS 16.1로 진행하였다.

원자력 발전소 및 방사성 동위원소 사용 시설의 오염제거 작업에는 강력한 킬레이트제인 에틸렌디아민테트라아세트산(Ethylenediaminetetraacetic acid, EDTA)이 주로 사용되었다[9]. EDTA는 2개의 3차 아민기와 4개의 카르복실기를 포함하여 총 6개의 결합 부위를 가지고 있어 금속 이온(M)과 안정한 복합체(M-EDTA)를 형성하는 데 도움이 된다[10]. 여러 연구에서 EDTA가 앞에서 언급한 복합체를 형성하여 방사성 핵종의 이동을 가속화 시킨다는 연구결과를 발표하였다[11-13]. EDTA는 자연적으로 분해가 잘되지 않고 방사성 핵종과 강력하게 결합하기 때문에 M-EDTA 복합체는 높은 이동성과 내구성을 보인다[14]. EDTA의 비분해 특성을 감안하여 산화공정을 통하여 Co-EDTA 복합체를 분해하는 방법이 제안되었다[15]. EDTA에 의한 기계적 특성의 개선과 강철 슬래그 골재의 Ca 침출 및 탄산화의 가속화가 이전 연구에서 보고되었다[16-18]. 그러나 시멘트 고화체 폐기물에 고정된 방사성 핵종의 침출 거동에 대한 EDTA의 영향을 조사한 연구는 거의 없다. 이러한 관점에서 EDTA를 함유한 시멘트 고화체 폐기물에 고정된 핵종의 침출 거동을 이해하는 것은 방사성 폐기물 처분의 장기적 안전성을 보장하는데 중요하다고 할 수 있다.

따라서 본 연구의 목적은 시멘트 고화체 폐기물에서 방사성 폐기물에 존재하는 EDTA가 Co 및 Cs의 침출 거동에 미치는 영향을 조사하는 것이다. 시멘트 고화체 폐기물에서 Co 및 Cs의 침출 거동을 평가하기 위해 ANS 16.1을 기반으로 90일 동안 침출 시험을 수행하였다. 또한, Co 및 Cs 분석 외에서 침출수 내의 EDTA의 함량을 측정하여 고화체 폐기물에서 EDTA의 침출변화와 Co 및 Cs 침출 특성 간의 상관관계를 고찰하고자 하였다. 이러한 결과는 다양한 EDTA 함량을 고려하여 방사성 폐기물의 처분에 대한 폐기물 수용 기준을 개발하는 데 기여할 것이다.

2. 재료 및 방법

본 연구를 위해 사용한 시약 및 재료, 시멘트 고화체 시편 준비 방법, 침출시험 방법에 대한 내용은 다음과 같다.

2.1. 시약 및 재료

시멘트 고화체 시편에 첨가할 Co-60과 Cs-137 방사성 핵종의 대신에 비방사성 Co와 Cs을 사용하였다. 비방사성 Co 및 Cs은 분석 등급 $Co(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ 및 $CsNO_3$ 분말(>99.99% 순도)을 Sigma-Aldrich에서 구매하였다. 킬레이트제로 사용된 EDTA는 나트륨으로 치환된 이수화물 분말($C_{10}H_{14}N_2Na_2O_8 \cdot 2H_2O$)을 Sigma-Aldrich에서 구매하였다. 시멘트는 쌍용 C&E (서울, 대한민국)에서 생산한 1종 보통 포틀랜드 시멘트(Ordinary Portland Cement, OPC)를 구매하여 사용하였다. 해당 OPC에서 대한 질소 흡착법(Brunauer-Emmett-Teller 모델)을 사용하여 얻은 OPC의 비표면적은 3,910±20 cm^2/g이며, 밀도는 3.16 g/cm^3이다. X선 형광(X-ray fluorescene, XRF) 분석으로 결정된 OPC의 화학적 구성은 Table 1에 제시되어 있습니다. 시멘트 고화체 시편 제조시 추가적으로 첨가제는 사용하지 않았다.

2.2. 고화체 시편 준비

EDTA를 함유한 모의 방사성 액체 폐기물은 Co 또는 Cs이 용해된 용액(초기 농도 = 10 mM)에 EDTA를 첨가하여 제조하였다. 여기서, Co 또는 Cs이 용해된 용액은 $Co(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ 및 $CsNO_3$을 탈이온 증류수에 넣어 제조하였다. 시멘트 고화체 시편에 넣을 EDTA의 양은 한국원자력환경공단에서 발행한 중저준위방사성폐기물 인수기준에서 명시하는 기준에 따라 선정하였다. 따라서, 0.2, 1.0 또는 8.0 wt%의 EDTA 함량에 해당하는 특정 양의 EDTA를 Co 또는 Cs이 용해된 용액에 첨가하였다. 이어서 시멘트 고화체 시편 제작을 위한 시멘트 페이스트는 OPC의 무게 비율로 0.4인 EDTA를 함유한 Co 또는 Cs이 용해된 용액과 5분 동안 혼합하여 제조하였다. 그 후, 각 혼합물을 아

Table 1. Chemical composition of the OPC. Uncertainties are estimated by the variation of known standards

Component	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	CaO	MgO	K_2O	Na_2O	MnO	P_2O_5	LOI*
Mass (%)	22.6±0.08	5.5±0.1	3.3±0.02	65.2±0.05	1.6±0.03	0.5±0.04	0.4±0.05	0.1±0.02	0.1±0.02	0.7±0.05

*LOI = loss on ignition

Table 2. Classification of the cement solidification specimen by the EDTA concentration

Nuclides (mM)	Blank				Co (10 mM)				Cs (10 mM)			
EDTA (wt.%)	0.0	0.2	1.0	8.0	0.0	0.2	1.0	8.0	0.0	0.2	1.0	8.0
Sample	B-1	B-2	B-3	B-4	Co-1	Co-2	Co-3	Co-4	Cs-1	Cs-2	Cs-3	Cs-4

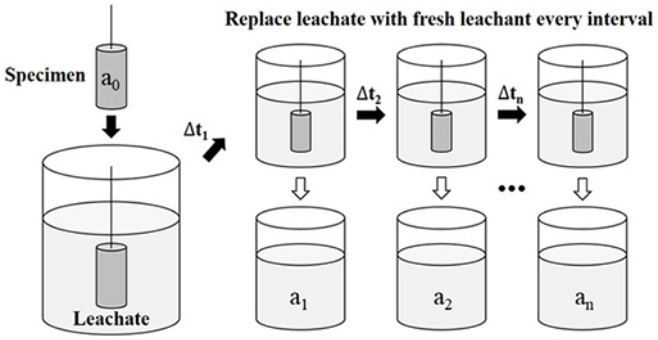

Fig. 1. Schematic diagram of leaching test according to the ANS 16.1.

크릴 몰드(높이: 100 mm, 직경: 50 mm)을 이용하여 주조하였다. 그 후, 시멘트 고화체 시편을 28일 동안 실온(25°C)과 상대습도 90±5%에서 경화하였다. EDTA가 없는 시멘트 고화체 시편을 침출 결과 비교를 위한 대조군으로 준비하였다. EDTA 함량에 따른 시멘트 고화체 시편의 자세한 분류는 Table 2에 나와 있습니다. 실험 전에 각 샘플 분류별로 두 개의 고화체 시편을 준비하였다. 한 샘플은 압축강도 측정에 사용되었고 다른 하나는 침출 테스트에 사용되었다.

2.3. 침출 시험

침출 시험은 고화체 시편에서 각 핵종의 침출 거동을 조사하기 위해 ANS 16.1 "Measurement of the leachability of solidified low-level radioactive wastes by a short term test procedure"에 따라 수행하였다. 시험은 탈이온 증류수에 고화체 시편을 90일 동안 담가서 수행되었다. 침출수로 사용된 탈이온 증류수는 전기 전도도가 5 μmho/cm (25°C) 미만이고 TOC가 3 ppm 미만이다. 각 시멘트 고화체 시편과 침출수를 2,000 mL 용량의 폴리프로필렌 용기에 넣고 시편의 모든 면이 침출수에 잠기도록 설치했다. 또한 각 시료는 비반응성 지지체와 함께 용기에 Fig. 1과 같이 고정하였다. 시험 시작일로부터 2시간, 7시간 2일, 3일, 4일, 5일, 19일, 47일, 90일마다 침출수를 교체하였다. 정해진 기간마다 교체한 침출수 내의 핵종 및 EDTA의 농도를 측정하였다. ANS 16.1 표준 절차에 따라, 유효 확산 계수(D_e) 및 누적 침출률(Cumulative Leaching Rate, CLR)과 같은 핵종의 침출 특성을 정량화하여 각 시멘트 고화체 시편의 침출 지수(Leachability Index, LI)를 평가하였다. D_e 값은 다음 방정식을 사용하여 계산하였다.

$$D_c = \pi\left[\frac{a_n/A_0}{(\Delta t)_n}\right]^2\left[\frac{V}{S}\right]^2 T \quad (1)$$

여기서 D_c는 유효 확산 계수(cm²/s), a_n은 침출 간격 n동안 시료에서 방출된 핵종의 양(mg), A_0는 첫 번째 침출 간격의 시작 시 표본에 존재하는 대상 핵종의 총량(mg), $(\Delta t)_n$은 n번째 침출 간격의 지속 시간(s), V는 시멘트 고화체 시편의 부피(cm³), S는 시멘트 고화체 시편의 겉표면적(cm²)이다. T는 n번째 침출 간격의 평균 시간(s)을 나타내며, 다음 수식을 사용하여 계산되었다.

$$T = \left[\frac{1}{2}\left(t_n^{\frac{1}{2}} + t_{n-1}^{\frac{1}{2}}\right)\right]^2 \quad (2)$$

핵종(Co 또는 Cs)의 CLR 값은 다음 방정식을 사용하여 계산되었다.

$$CLR = \frac{\sum a_n}{A_0} \quad (3)$$

LI는 D_c를 다음 방정식에 사용하여 계산되었다.

$$L = \frac{1}{10}\sum_1^{10}\left[\log\left(\frac{\beta}{D_c}\right)\right]_n \quad (4)$$

여기서 L은 침출지수, β는 정의된 상수(1.0 cm²/s)이다. EDTA에 대한 침출 특성도 위의 식을 통하여 계산하였다.

2.4. 특성실험

시멘트 고화체 시편에서 침출된 핵종(Co 및 Cs)의 농도는 각각 유도 결합 플라즈마 질량 분석법(ICP-MS, Agilent Technologies)과 유도 결합 플라즈마 원자 방출 분광법(ICP-AES, Perkin Elmer)을 통해 분석되었다. 시멘트 고화체 시편에서 침출된 EDTA의 농도는 침출액에 Fe^{3+} 용액을 첨가하여 용액 내의 EDTA를 Fe-EDTA복합체로 변환시켜 HPLC (High Performance Liquid Chromatography)로 분리하여 UV-Vis (254 nm)로 분석하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

3.1. EDTA 함량에 따른 핵종(Co 및 Cs)의 침출 특성 변화

Fig. 2에는 90일 동안의 Co 및 Cs의 CLR 값의 변화를 나타내고 있다. 시멘트 고화제 시편에서 Co 및 Cs의 침출 거동은 EDTA 함량에 따라 반대 경향을 보인다. Co의 경우 침출 속도는 EDTA 함량에 따라 증가하고 있다. Fig. 2(a)를 보면 EDTA 8 wt.% 시멘트 고화체 시편(Co-4)은 EDTA가 없는 시멘트 고화체 시편보다 약 20배 더 높은 CLR을 나타내고 있다. 이 결과는 Co

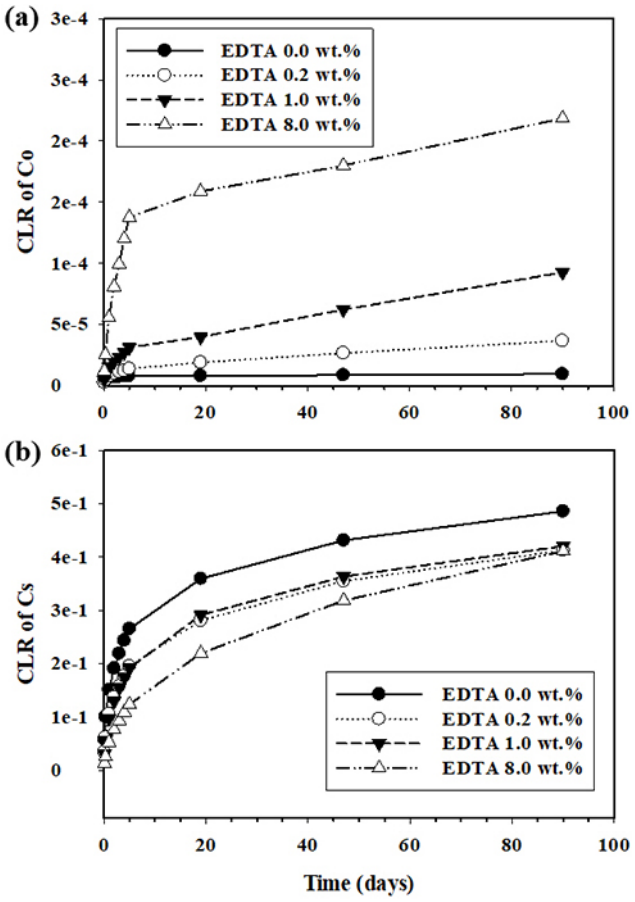

Fig. 2. Cumulative Leaching Rate (CLR) of (a) Co and (b) Cs from cement solidification specimen with various EDTA concentrations.

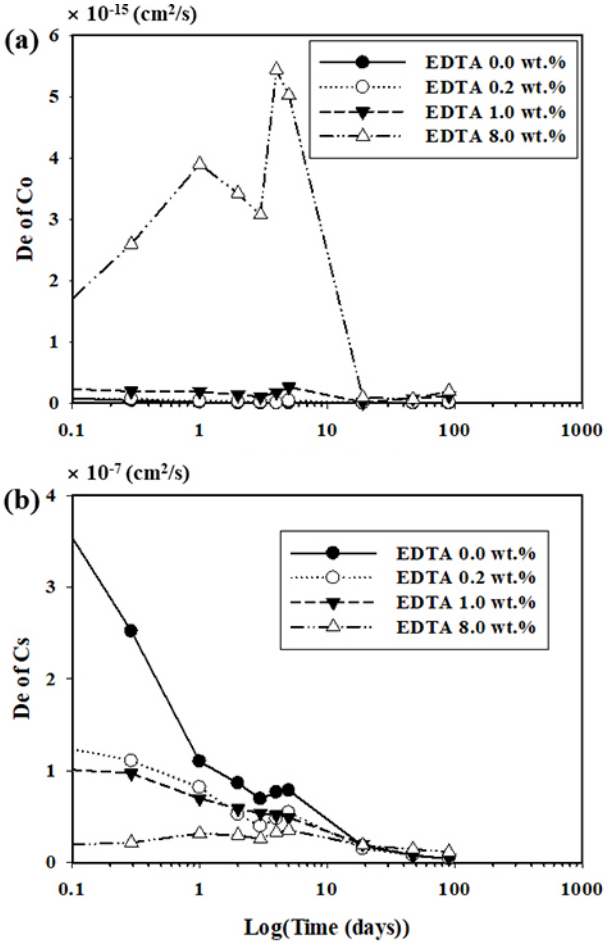

Fig. 3. Effective diffusion coefficient of (a) Co and (b) Cs leached from cement solidification specimens depending on various EDTA concentrations versus time.

가 EDTA와 Co-EDTA 복합체를 형성하여, Co와 시멘트 표면의 흡착 사이트 간의 상호 작용이 일어나지 않아 시멘트 매질에 의한 Co의 흡착을 감소 되기 때문이다. 이런 현상으로 인하여 Co의 이동성이 증가하여 침출되는 Co의 농도가 증가된 것으로 예상된다[12,15,19]. 그러나 Cs 침출은 시멘트 고화체 시편에서 EDTA가 없거나 낮은 함량에서 더 높은 침출이 일어나고 있다. 이러한 현상은 금속(특히 높은 원자가 양이온)-EDTA 복합체와 Cs 이온 간의 침출 경쟁에 기인한 것으로 예상된다[20]. 이에 따라 결과적으로 시멘트 고화체에서 EDTA로 인하여 금속 이온이 제거 됨으로써 Cs의 침출을 지연시키는 역할을 하는 흡착 사이트가 더 많아진다.

시멘트 고화체 시편에서 침출된 Co 및 Cs의 D_e 값은 Fig. 3에 도식화하였다. Co의 D_e 값은 EDTA의 함량에 따라 상당히 증가하는 반면에 Cs의 D_e값은 EDTA의 함량이 증가함에 따라 감소하는 경향을 보인다. Co와 Cs 모두 초기 기간(최대 5일)에는 비교적 높은 D_e 값을 나타내었다. 이는 초기 기간에는 표면 세척에 의한 침출이 주로 기인하며 장기 침출 기간에는 내부 핵종의 침출이 일어나서 핵종의 확산성이 감소한 것으로 예상된다[34]. Co와 Cs에 대한 D_e의 평균(D_{mean})값은 EDTA의 함량에 따라 각각 $1.48\times10^{-16}<D_{mean}(Co)<2.54\times10^{-14}$ cm^2/s, $2.39\times10^{-8}<D_{mean}(Cs)<1.07\times10^{-7}$ cm^2/s 범위를 가진다. 각 시편에서 대한 D_e의 평균(D_{mean})값 및 표준편차를 Table 3에 정리하였다.

Co와 Cs에 대한 LI는 Table 3에 제시되어 있으며, EDTA 함량에 따라 각각 $13.69<LI(Co)<16.36$, $6.91<LI(Cs)<7.56$ 범위를 가진다. Co와 Cs에 대한 EDTA 함량에 따른 LI 변화를 Fig. 4에 나타내었다. Co의 핵종을 포함하는 시멘트 고화체 시편의 경우 EDTA의 함량이 가장 높은(8 wt.%) Co-4 샘플은 Co가 포함된 샘플 중에서 가장 낮은 LI를 나타내어 Co-EDTA 복합체의 형성이 Co 침출을 증가시켰음을 시사하고 있다. 반면에, Cs의 핵종을 포함하는 시멘트 고화체 시편의 경우 EDTA의 함량이 가장 높은(8 wt.%) Cs-4 샘플은 Co가 포함된 샘플 중에서 가장 높은 LI를 나타낸다. 이는 앞에서 CLR 비교에서 언급했듯이 고용량 EDTA가 시멘트 고화체 시편에서 Cs 침출을 방해하고 있음을 유추할 수 있다. 그러나 Cs에 대한 LI는 EDTA 투여량에

Table 3. Mean values and standard deviations of the effective diffusion coefficient (Dmean, unit: cm^2/s) and leachability index (LI) for Co and Cs from the cement solidification specimen leached for 90 d

	Co-1	Co-2	Co-3	Co-4	Cs-1	Cs-2	Cs-3	Cs-4
D_{mean}	1.48×10^{-16} $\pm2.82\times10^{-16}$	3.00×10^{-16} $\pm2.44\times10^{-16}$	1.50×10^{-15} $\pm7.51\times10^{-16}$	2.54×10^{-14} $\pm2.00\times10^{-14}$	1.07×10^{-7} $\pm1.17\times10^{-7}$	5.39×10^{-8} $\pm4.15\times10^{-8}$	5.13×10^{-8} $\pm3.36\times10^{-8}$	2.39×10^{-8} $\pm8.21\times10^{-9}$
LI	16.36	15.50	14.54	13.69	6.91	7.17	7.18	7.56

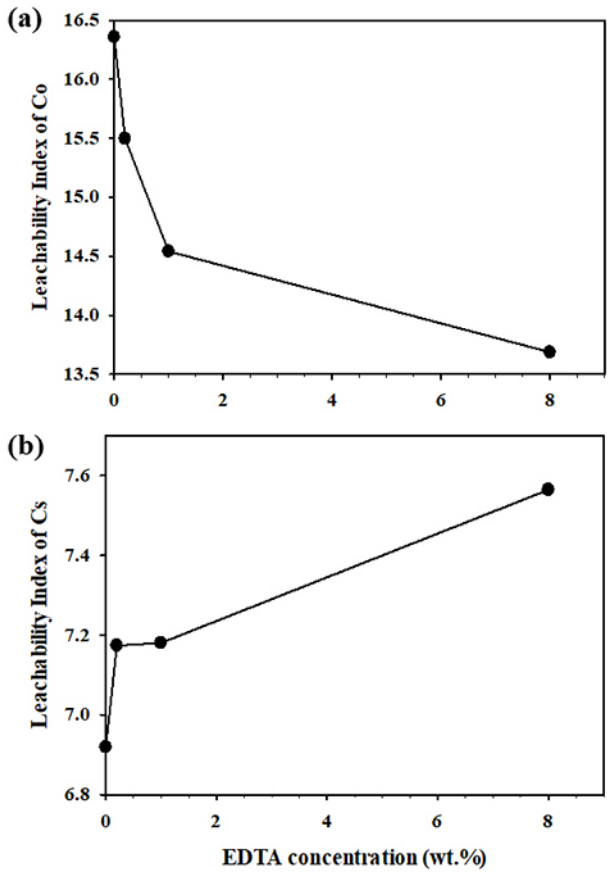

Fig. 4. Leachability Index (LI) of (a) Co and (b) Cs from cement solidification specimens with various EDTA concentration.

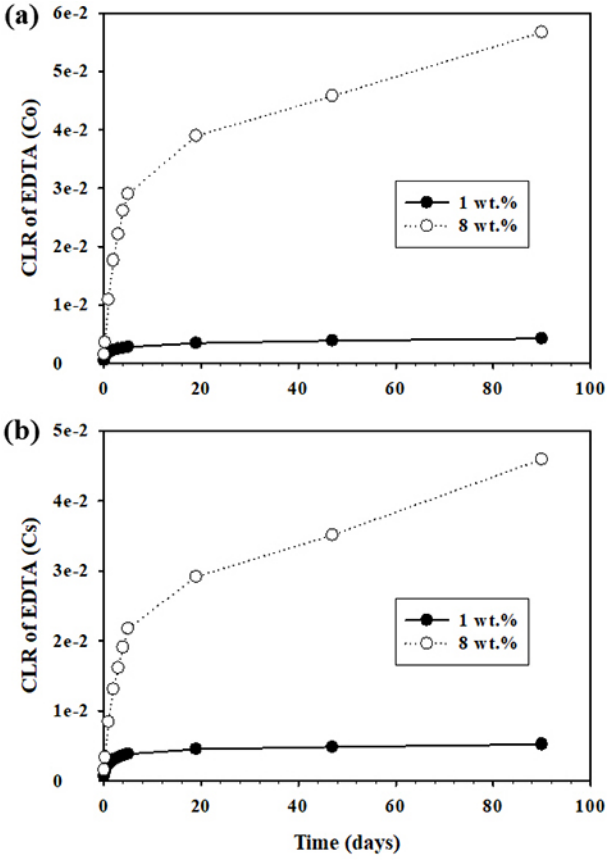

Fig. 5. Cumulative Leaching Rate (CLR) of EDTA from cement waste form with (a) Co and (b) Cs.

따라 증가하여 EDTA가 시멘트 고화체 시편에서 Cs 이온의 침출을 방지했음을 나타낸다. EDTA의 함량 변화에 따른 침출지수 변화량을 비교하면 Cs 침출과 대조적으로 Co 침출은 EDTA 함량의 영향을 크게 받은 것으로 나타난다. 인수기준에서 고화체의 EDTA 함량을 8 wt.%까지로 제한하고 있다. 실질적으로 8 wt.% EDTA까지는 Co와 Cs에 대해서 인수기준에서 제시하는 침출지수(LI) 6 이상을 만족하는 것을 확인할 수 있다.

3.2. EDTA의 침출 특성

시멘트 고화체 시편에 대한 침출시험에서 나온 침출액의 EDTA의 침출량을 측정하여 EDTA가 핵종 침출에 미치는 영향에 대해 고찰하고자 하였다. 측정 결과 EDTA 1 wt.% 이상 함량 시편에서 EDTA 검출이 가능하여 1 wt.% 이상에 대한 CLR를 Fig. 5에 도식하였다. EDTA가 1 wt.%에서 8 wt.%로 증가하였을 때 EDTA의 CLR은 Co와 Cs 둘다 유사하게 10배로 증가한다. 또한, 시간에 따른 CLR의 변화 경향도 유사하다. 이것은 EDTA와 시멘트 고화체 시편 간의 상호작용이 핵종에 관계없이 유사하게 작용한다는 것을 알 수 있다. Co의 경우 Co-EDTA 복합체를 형성하여 침출을 가속화시키며, Cs의 경우도 금속-EDTA의 형태로 침출할 것으로 예상된다. 따라서, 앞에서 제시한 EDTA 함량 증가에 따른 Cs의 침출 지연 현상은 시멘트 고화체 내부의 금속 이온을 EDTA가 제거하고 제거된 흡착 사이트가 Cs의 흡착 지연 효과를 나타낸다고 할 수 있다.

4. 결 론

시멘트 고화체 시편에서 Co와 Cs의 침출 거동에 대한 EDTA의 영향을 조사했다. 높은 용해도와 이동성을 가진 Co-EDTA 복합체의 형성은 시멘트 고화체 시편에서 Co 침출을 증가시키는 요인으로 작용하였다. 그러나 Cs 침출은 다른 금속-EDTA 복합체와 Cs 이온 간의 침출 경쟁으로 인해 오히려 침출 지연이 발생하였다.

시멘트 고화체에서 EDTA의 존재는 Cs의 경우 약간의 긍정적 영향을 나타내고 있다. 하지만, Co의 경우 EDTA 함량에 관계없이 Co의 침출률 상승이라는 명백한 부정적 영향이 나타난다. 특히, 인수기준에서 제시하는 EDTA 8.0 wt.%까지 Co 및 Cs 핵종에 대해 침출지수가 6 이상을 만족함에 따라, 시멘트 고화체는 Co와 Cs를 침출 지연에 효과적인 방법으로 검토될 수 있다.

EDTA는 Co 및 Cs 뿐만 아니라 다른 양이온 핵종과 복합체를 형성 함으로써 시멘트 고화체에서 침출 가속 영향이 나타날 수 있다. 또한 방사성 폐기물에서는 EDTA외에도 다양한 킬레이트가 존재한다. 따라서, 시멘트 고화체로 고정된 다양한 방사성 핵종의 침출 거동에 대한 EDTA와 같은 킬레이트제의 효과를 광범위하게 조사하기 위한 추가 연구가 필요하며, 이는 중저준위 방사성 폐기물 처분의 장기적 안전성을 보장하는 데 크게 기여할 수 있다.

사 사

본 논문은 한국에너지기술평가원(KETEP)에서 주관하는 중저준위복합처분시설안전관리강화기술개발사업의 “장기보관 RI 폐기물의 안전한 관리를 위한 처리 방법 및 처분 기술개발” 과제(과제번호: RS-2023-00234593)의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. Jang JG, Park SM and Lee H-K. 2016. Physical Barrier Effect of Geopolymeric Waste form on Diffusivity of Cesium and Strontium. *J Hazard Mater* **318**:339-346. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2016.07.003.
2. Zha X, Wang H, Xie P, Wang C, Dangla P and Ye J. 2016. Leaching Resistance of Hazardous Waste Cement Solidification after Accelerated Carbonation. *Cem Concr Compos* **72**:125-132. https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2016.06.001.
3. Komljenović M, Tanasijević G, Džunuzović N and Provis J. 2020. Immobilization of Cesium with Alkali-activated Blast Furnace Slag. *J Hazard Mater* **388**:121765. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2019.121765.
4. Wilson JC, Benbow S and Metcalfe R. 2018. Reactive Transport Modelling of a Cement Backfill for Radioactive Waste Disposal. *Cem Concr Res* **111**:81-93. https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2018.06.007.
5. Phillip E, Khoo KS, Yusof MAW and Abdel Rahman RO. 2022. Mechanistic Insights into the Dynamics of Radionuclides Retention in Evolved POFA-OPC and OPC Barriers in Radioactive Waste Disposal. *Chem Eng J* **437**:135423. https://doi.org/10.1016/j.cej.2022.135423.
6. International Atomic Energy Agency, “Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization”, IAEA-TECDOC-1537, 2007.
7. Hespe ED. 1971. Leach Testing of Immobilized Radioactive Waste Solids. *Atomic Energy Review* **9**:195-207.
8. ANS, ANS/ANSI-16.1-2003 (R2017), “Measurement of the Leachability of Solidified Low-Level Radioactive Wastes by a Short-Term Test Procedure”, American National Standards Institute: Washington, DC, USA, 2017.
9. Sern R.J, Felmy AR, Cantrell KJ, Krupka KM, Campbell JA, Bolton Jr. H and Fredrickson JK. 1996. Characterization of Radionuclide-chelating Agent Complexes Found in low-level Radioactive Decontamination Waste Literature Review. NUREG/CR-6124, US 167. https://doi.org/10.2172/219284.
10. Zhuang S, Zhang Q and Wang J. 2021. Adsorption of Co2+ and Sr2+ from aqueous solution by chitosan grafted with EDTA. *J Mol Liq* **325**:115197. https://doi.org/10.1016/j.molliq.2020.115197.
11. Samuels W, Camaioni D and Babad H. 1994. “Initial laboratory studies into the chemical and radiological aging of organic materials in underground storage tanks at the Hanford complex”, in, Pacific Northwest Lab., Richland, WA (United States).
12. Means JL, Crerar DA and Duguid JO. 1978. Migration of radioactive wastes: radionuclide mobilization by complexing agents. *Science* **200**:1477-1481. https://doi.org/10.1126/science.200.4349.1477.
13. Cleveland JM and Rees TF. 1981. Characterization of plutonium in maxey flats radioactive trench leachates. *Science* **212**:1506-1509. https://doi.org/10.1126/science.212.4502.1506.
14. Tandy S, Bossart K, Mueller R, Ritschel J, Hauser L, Schulin R and Nowack B. 2004. Extraction of heavy metals from soils using biodegradable chelating agents. *Environ Sci Technol* **38**:937-944. https://doi.org/10.1021/es0348750.
15. Lee J, Singh BK, Hafeez MA, Oh K and Um W. 2022. Comparative study of PMS oxidation with Fenton oxidation as an advanced oxidation process for Co-EDTA decomplexation. *Chemosphere* **300**:134494. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2022.134494.
16. Wang J, Wang Y, Liu H, Chang L, Wang H, Wang Y and Cui S. 2023. Effect of disodium EDTA on hydration and mechanical properties of calcium sulphoaluminate-belite cement. *Cem Concr Res* **164**:107041. https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2022.107041.
17. Li N and Unluer C. 2023. A comparative study of ethylenediamine tetraacetic acid induced gas-solid and liquid-solid accelerated carbonation for enhancement of steel slag aggregates. *Constr Build Mater* **400**:132539. https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2023.132539.
18. Chi L, Li W, Li Z, Wang Z, Lu S and Liu Q. 2022. Investigation of the hydration properties of cement with EDTA by alternative current impedance spectroscopy. *Cem Concr Compos* **126**:104365. https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2021.104365.
19. Brooks S, Taylor D and Jardine P. 1996. Reactive transport of EDTA-complexed cobalt in the presence of ferrihydrite. *Geochim Et Cosmochim Acta* **60**:1899-1908. https://doi.org/10.1016/0016-7037(96)00064-6.
20. Seliman A, Borai E, Lasheen Y, Abo-Aly M, DeVol T and Powell B. 2010. Mobility of radionuclides in soil/groundwater system: comparing the influence of EDTA and four of its degradation products. *Environ Pollut* **158**:3077.3084. https://doi.org/10.1016/j.envpol.2010.06.035.