

廢鑛山鑛尾의 無害 處理를 위한 분말石灰石의 活用に 관한 研究

金永錫 · 吳鐘基 · 金成奎 · 李華永 · 韓 椿**

*韓國原子力研究所, 韓國科學技術研究院, **광운大學校

A Study on the Recycling of Powdered Limestone for the Stable Reclamation of Tailings in an Abandoned Mine

Young-Seog Kim, Jong-Kee Oh, Sung-Gyu Kim, Hwa-Young Lee and Choon Han**

**Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon, 305-353, Korea*

Korea Institute of Science and Technology (KIST), PO Box 131, Cheongryang, Seoul, Korea

***Kwangwoon Univ., Dept. of Chemical Engineering*

요 약

복구되지 않은 폐광산 광미에 의한 산성광산배수가 문제를 일으킬 수 있는 기간에 대하여 column 실험에 의한 모델링을 통하여 규명하였고, 이러한 문제를 해결하고자 석회석을 이용한 경제적이고도 환경 친화적인 기술을 제시하였다. 이 방법은 원칙적으로 중금속이 침출 수나 유입 수에 미 반응하여 영구히 안정상태를 유지하는 것인데, 석회석을 주 혼화재로 하여 석회석과 광미를 교차로 적층하는 복구기술이다 이렇게 석회석으로 복구하면 국내에 대량으로 부존 되어 있는 저 품위 석회석 자원을 활용할 수 있어 경제적인 뿐만 아니라 환경 친화적이다.

주제어 : 광미, 산성광산배수, 모델링, 석회석, column 실험

ABSTRACT

A period of widespread damage to the surroundings by acid mine drainage was examined by modeling using column device and the method to solve this problem was worked out. The underlying principle is to let the tailings permanently maintain a stable state not being reacted with the underground water, and the method is that the tailings and limestone are piled up alternatively. This reclamation method is economic and environmentally useful because of practical use of a large amount of low-grade natural limestone.

Key words: Tailings, acid mine drainage, modeling, column device, limestone.

1. 서 론

국내에서의 토양의 오염관리의 법제화는 1995년 1월에 토양환경보전법이 제정 공포되고, 동년 12월 시행령이 그리고 1996년 1월 시행규칙이 제정됨으로서 이루어졌다.¹⁾ 이와 같이 국내에서도 토양의 오염관리가 법제화 되어 앞으로는 각종 산업활동이나 일상생활에서 토양이 오염될 경우 반드시 치유하여야 한다. 그 중에서도 중금

속의 토양오염은 등식물에 직접적인 영향을 줄 수 있고 또 이들이 간접적으로 인간의 식생활에 영향을 미치어 그 규제가 강화되는 추세이다. 이러한 중금속의 오염원 중의 하나로 폐광산이 현재 문제가 되고 있다. 자원개발 활동 후 폐광산의 복구는 지금까지 단순 산림복구에 그치고 있었던 이유로 완전 복구가 수립되지 못하였고 또 한 영세한 자원개발현장은 그대로 방치한 상태가 많아 토양환경보전이 위태한 지경에 이르고 있는 실정이다. 우리나라는 일제시대 때부터 자원산업개발로 극부를 축적하기 시작하였으나 광산의 규모가 작고 개발조건이 악화

* 1999년 12월 30일 접수, 2000년 3월 24일 수리

† E-mail: kmtree@kistmail.kist.re.kr

되는 등 채산성이 떨어져 1980대이후부터 급격히 폐광산이 증가하게 되었다. 광업진흥공사의 자료에 의하면 현재 1,000여개 이상의 폐금속광산이 전국에 미복구로 방치되어 있다고 한다. 그 곳들이 자원개발 당시에는 심산 유곡이나 생활공간과는 떨어져 있었으나 최근에는 지역의 개발 등 토지의 이용이 확대되면서 부분적으로는 생활공간에 근접된 곳도 많아졌고 또 대부분의 광산이 수원지역에 위치하고 있기 때문에 미 복구상태로 방치될 경우 토사의 유실과 산성배수(중금속을 함유할 수도 있음)의 유출로 토양과 수질의 오염을 일으키고 있다. 그러나 폐광산의 복구기술에 대한 연구개발이 아직 미진하여 단순토목공사에 그치는 상태이며, 특히 생활공간과 밀접한 지역으로 민원이 크게 대두된 지역의 폐광산은 쓰레기 매립장의 조성기준을 부분적으로 수용하여 차수시설과 비닐로 광미를 완전히 싸는 방법을 시행하고 있다. 이러한 방법은 치유방법이 비 환경 친화적이며, 토지의 이용에 제약이 되고 있고 외부 혐에 의한 파손이 있을 경우에는 광미가 안전한 상태로 존재하지 못하기 때문에 이러한 공사방법은 일시적인 미봉책에 지나지 않고 또한 비용도 많이 들어 많은 문제점을 내포하고 있다.

본 연구에서는 복구되지 않은 폐광산 광미가 얼마나 오랜 기간동안 문제를 일으킬 수 있는 지를 column 장치를 이용한 모델링 실험을 통하여 규명하였고, 이러한 문제를 해결하고자 이전에 계속 수행되어온 광미의 안정한 처리 방법에 관한 연구^{2,4}들의 계속되는 과정으로서 석회석을 이용한 경제적이고 환경 친화적인 기술을 제시하였다. 이 방법은 원천적으로 중금속이 침출 수나 유입 수에 미 반응하여 영구히 안정상태를 유지하는 것인데, 이렇게 하기 위하여 석회석을 주 혼화제로 하여 석회석과 광미를 교차로 적층하는 복구기술이다. 이렇게 석회석으로 복구하면 국내에 대량으로 부존 되어

는 저 품위 석회석 자원을 활용할 수 있어 경제적인 뿐만 아니라 환경 친화적이다.

2. 시료 및 실험 방법

2.1. 시료

본 실험에 사용한 황철석은 비교적 순도가 높은 자연산 황철석으로서 결정이 매우 좋은 것을 파쇄하여 입도 조절후 사용하였고, 입도 분포 및 화학성분은 전 실험과 동일하였²⁾ 황철석의 화학성분은 Fe와 S를 합하여 94.2 wt.%인 비교적 순수한 결정인 것으로 확인되었다. 폐광장 다덕광산의 채굴 광종은 금, 은, 동 및 아연으로서 이 지역의 지질은 광산전역에 걸쳐서 각섬석 화강암과 본 화강암을 후기에 관입한 석영 반암 및 석영맥등으로 구성되어있다. 각섬석 화강암은 대체로 조립질로서 입상조직을 보이고 있으며 모암중의 무색광물은 석영, 장석이고 유색광물로서 흑운모와 각섬석이 함유되어 있으나, 각섬석은 곳에 따라서는 육안으로 관찰되지 않고 흑운모가 우세한 곳도 있다. 전반적으로 모암은 매우 균질한 암질을 보여주는 것이 특징이며 풍화면은 흑회색을 띠고 있다. 이 중에서 시료로 채취한 광미는 광미뚝 부근의 황갈색 미사질 광미이다

다덕광산 광미의 입도 분포별 중금속함량을 조사한 결과가 Table 1 에 나타나 있다. 광미 시료를 습식으로 체 분리한 결과, 37 μm(-400mesh) 이하의 미립 점도분이 40% 이상을 차지할 정도로 미립상으로 존재하였고, Total S 함량은 30 mesh 이상과 400 mesh 이하의 입도에서 비교적 높게 나타났다.

광미의 중화를 위한 혼화제로는 여러 입도의 석회석을 사용하였으며, 시료별 평균 입도, 비표면적 및 품위는 Table 2 와 같으며, 정성분석 결과가 Table 3 에 나

Table 1. The weight of heavy metals according to the particle size distributions of Daduk mine tailings

Sieve number	Fraction wt%	weight of heavy metals (wt%)						
		As	Cd	Cu	Pb	Zn	Total Cr	Total S
+30	5.5	1.73	0.00026	0.05	0.3	0.08	0.0011	4.6
-30/+70	9.2	0.38	0.00024	0.33	0.094	0.03	0.0020	1.0
-70/+140	22.1	0.15	0.00028	0.0075	0.047	0.016	0.0014	0.21
-140/+200	11.3	0.28	0.00028	0.03	0.13	0.041	0.0031	0.61
-200/+400	11.7	0.33	0.00028	0.016	0.21	0.045	0.0027	1.2
-400	40.2	0.71	0.00030	0.017	0.72	0.11	0.0038	5.3

Table 2. Average diameter and specific surface area of limestone used for the neutralization of the acid mine tailings

Average diameter	148 μm
Specific surface area	34 m^2/kg
Grade as CaCO_3	95.5%

타나 있다.

2.2. 실험 방법

2.2.1. 다덕 광미층의 투수 특성 실험

다덕광산 광미층을 통과한 물의 특성을 조사하기 위하여 Fig. 1 에서와 같이 column 을 제작하여 연속적인 투수실험을 행하였다. column 은 직경 5 cm 인 아크릴 원통에 10 cm 간격으로 시료 채취구를 붙이고 바닥에는 다공성 실리카 판을 붙여 광미의 유실을 방지하였다. 유속은 수두를 1 m H_2O 로 한 정수위법으로 조절하여 upstream 으로 통수하였으며 이때 column 내의 실제 투수속도는 3.06 cm/hr 이었으며, 일정한 시간 간격별로 시료 채취 구에서 투수 액을 취하여 pH 를 측정하였다.

2.2.2. 적층 중화 시험

광미를 석회석으로 중화하여 산 생성을 원천적으로 차단할 수 있는 조건을 확립하기 위하여 Fig. 1 과 같이 직경 5 cm 인 아크릴 원통에 5 cm 간격으로 시료 채취구를 붙이고 밑 부분에는 다공성 실리카 판을 붙여 column 장치를 완성하였다. 실험 방법은 원통에 광미와 석회석을 넣고 필요에 따라 upstream 이나 downstream 으로 소정의 일정 유속으로 물을 유입시켜 층별 시료 채취구에 통과수의 시료를 채취하여 pH 를 측정하고 또 철분을 분석하여 석회석에 의한 광미의 안정복구 현상을 조사하였다. Fig. 1 의 (a) 실험은 광미 시료와 소정량의 석회석을 균질하게 건식으로 혼합한 후 원통에 채워 균질 혼합시의 복구현상을 조사한 실험이며, (b)와 (c)는 교차 적층 복구시험으로서 석회석과 광미를 원통에 교차로 채워 광미층을 물이 먼저 통과하는 경우와 석회석 층을 물이 먼저 통과하는 방식으로 실험하였다. 이 실험에서는 석회석을 먼저 통과하는 물이 광미층을 통과할 때 산도의 변화 및 철분의 용해정도를 조사하였

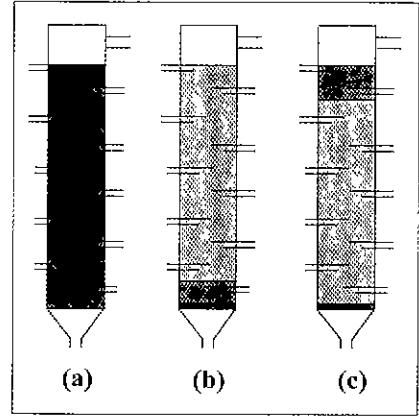


Fig. 1. Filling modes of tailings and limestone in column. a: homogeneous mixing, b: limestone in lower layer, c: limestone in upper layer

고 반대로 광미층을 통과한 물이 석회석 층을 통과할 때 투과수의 산도 및 철분의 거동을 조사했다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 다덕 광미 층의 투수 특성 실험

다덕광산 광미층을 pH 7.0 정도의 신선한 물로 3.06 cm/hour 의 속도로 하부에서부터 유입시켰을 경우, 통과한 물의 특성을 조사한 결과가 Fig. 2에 나타나 있다. 그림에서 보는 바와 같이 시간이 경과함에 따라 전체적으로 pH가 상승하고 있지만, 신선한 물의 유입부와 가까울수록 pH의 상승폭이 크고 유입부와 멀어질수록 유입수의 영향을 상대적으로 덜 받아 pH의 변화가 작음을 알 수 있다. 실제로 광미층이 존재할 때 빗물이나 지표수가 그곳을 통과하게 되는데 이 경우 수두는 매우 작고, 광미층 내의 투수 계수가 매우 작아 광미층 내의 투수속도는 상당히 느릴 것으로 예상되며 지표에서 멀리 떨어진 깊은 곳에서는 지표수에 의한 희석 효과가 거의 없을 것으로 생각한다. Fig. 2 의 결과로부터 시간과 광미층 깊이에 따른 투수 된 물의 pH 변화를 계산하여 Fig. 3 에 나타내었다 계산 결과에서 알 수 있듯이 별도의 조치 없이 단순히 자연수를 광미층에 통과시

Table 3. Results of chemical analysis for limestone used for the neutralization of the acid mine tailings

성분	Si	Mg	Al	Fe	Ti	K	Mn	Sr	Cu	Pb	Na	Cl	Ni
% order	10^{-1+0}	10^{-1}	10^{-1}	10^{-2}	10^{-2}	10^{-2}	10^{-2}	10^{-2}	10^{-3}	10^{-3}	10^{-4}	10^{-3}	10^{-4}

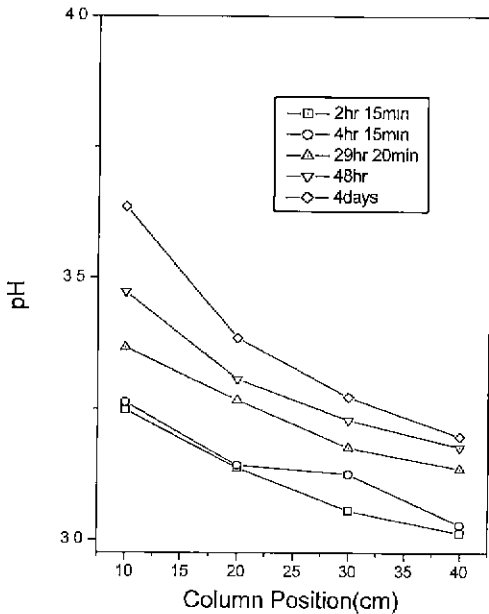


Fig. 2. Variations of pH with time in case of passing water into column (tailings of Daduk mine).

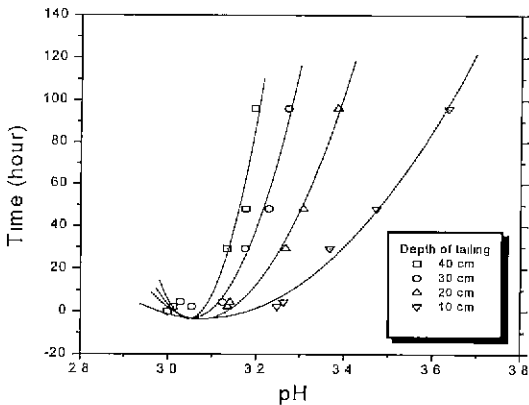


Fig. 3. Time variations of pH according to the depth in case of passing water into column (tailings of Daduk mine).

켜 침출수의 pH를 높이기 위해서는 과량의 물이 필요하며 그에 소요되는 기간은 상승시키고자 하는 pH의 지수함수로 나타남을 알 수 있고, 그 기간은 광미층이 두꺼워질수록 더욱 길어지게 된다. 만일 다덕 광산 지역이 전국 강수량의 연평균인 1,500 mm/yr 이라고 가정할 때, 자연적으로 광미층을 통과하여 나온 물이 pH가 6이나 7이 되는 기간을 계산하여 보면 Fig. 4 및 Table 4와 같다. 다덕 광미의 적치 장에 쌓인 광미층을 통과한 물이 pH 7.0으로 될 수 있는 기간은 광미의

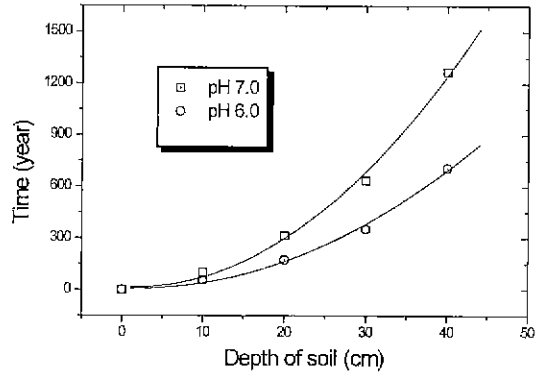


Fig. 4. Time required to reach pH 6.0 and pH 7.0 in each position of column (water passing velocity=3.43 cm/hour, annual average rainfall=1500 mm).

Table 4. Time required to reach pH 7.0 according to the depth of tailings of Daduk mine

Depth of tailings	T (hour)	Q (cm) (=T×V ₁)	Yr (=Q/A A.R)
10 cm	5039.3	15420	102.8 year
20 cm	15481.5	47373	315.8 year
30 cm	31128.4	95251	635.0 year
40 cm	62234.8	190438	1269.6 year

T: Time to reach pH 7.0 (water passing velocity=V₁) by extrapolation
 V₁ Water passing velocity (=3.06cm/hour)
 AAR: Annual average rainfall (=1500 mm/yr)
 Q: Total water volume during T time
 Yr: Number of estimated years

깊이 즉, 층두께가 10 cm 만 되어도 100 년 이상이 걸리고, 20 cm 의 광미층에서는 315 년, 30 cm 에서는 635년 그리고 40 cm의 광미층에서는 무려 1270 년 정도가 걸리는 것으로 보아 수 100 m 씩 쌓인 광미층일 경우에는 거의 반영구적으로 산성수가 발생될 수밖에 없다 따라서 산성을 띄고 있고 또 산이 발생될 수 있는 물질인 황화광미가 함유된 광미는 장기간에 걸쳐 잠재적인 오염원으로 작용할 수 있는 폐기물로 분류할 것이며, 환경 및 토양을 보존하기 위해서는 광미의 안정적인 복구가 절대적으로 필요하다.

3.2. 석회석의 완전혼합에 의한 광미의 무해 처리시험

다덕 광미를 대상으로 석회석과 광미의 혼합비를 7.5: 100 의 비율로 완전히 고체상태에서 V-mixer 로 혼합하여 column 내에 50 cm 정도 채우고, 증류수를 7.21 cm/hr 속도로 일정하게 하여 일정시간마다 통과수를 채취하여 pH 측정과 철분 함량을 분석하였고 그 결

과가 Fig. 5 에 나타나 있다. 실험 결과에서 알 수 있듯이, 통과수의 pH는 약 7.5~8.3 범위로 유지가 되며, yellow boy 현상의 주 요인이고 오염의 척도인 철분의 함량이 초기에는 약 0.3 ppm 정도이었으나 점차 감소하여 5일이 지나면서부터는 거의 발생이 되지 않고 있다. 이와 같은 조건은 사용된 석회석의 면적으로 환산하면 광미 kg당 2.55m²(석회석의 비표면적이 34 m²/kg에 75 g 석회석)에 해당된다. 이것은 이전 연구에서 다덕 광미의 석회석 중화저동에서 실패 본 치유에 필요한 석회석의 소요량 1.19(m² 석회석/kg 광미)의 거의 배에 해당 되기 때문에 나타나는 현상이다.

Fig. 6 은 석회석을 완전히 혼합하여 다덕 광미를 복구할 경우 석회석의 혼합 이론치가 광미 기준으로 3.5% 중량인 것을 확인하기 위해서 석회석의 혼합비율을 3.0% 중량으로 하고 기타 조건은 동일하게 유지하면서 column 실험을 행한 결과이다. 그림에서 보면 다덕 광미 층을 통과 한 물의 pH는 7.5~8.3 정도로 석

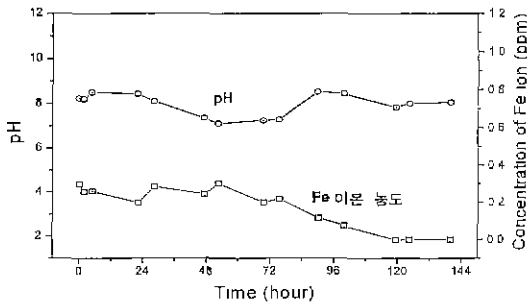


Fig. 5. Variations of pH and Fe ion concentrations with passing time in case of full mixing of limestone and tailings (limestone : tailings = 7.5 : 100, water passing velocity = 7.21 cm/hour).

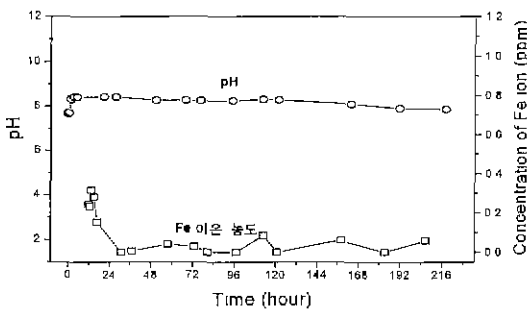


Fig. 6. Variations of pH and Fe ion concentrations with passing time in case of full mixing of limestone and tailings (limestone : tailings = 3.0 : 100, water passing velocity = 3.69 cm/hour).

회석을 7.5% 혼용한 경우와 거의 비슷하며, 철분함량도 0.1 ppm 이하로 낮게 유지되었다.

3.3. 광미와 석회석의 교차 충전층에 대한 실험

현실적으로 폐광산 광미 적치장을 복구할 경우 광미와 석회석을 완전히 혼합하면 안정적인 복구가 가능할 것이지만, 이 경우에는 혼합공정을 도입하여야 하고 적절한 입도의 석회석을 사용하여야 하기 때문에 복구비용이 상당히 증가 할 것으로 생각된다. 복구비를 저감시키고 공사를 용이하게 할 수 있는 방안으로 광미 층과 석회석 층을 교차로 시공하는 방법을 도입할 수 있다. 이에 대한 검증을 위해서 석회석 층을 먼저 통과한 물이 광미층을 통과하는 경우와 반대로 광미 층을 통과한 물이 석회석 층을 통과하는 경우에 대하여 조사하여 보았다.

광미층을 아래에 그리고 광미층 위에 석회석을 쌓아 상부에서 투수속도를 7.64 cm/hr 로 하여 실험하였고 이때의 결과가 Fig. 7 에 나타나있다. 실험 결과에서 알 수 있듯이 석회석 층을 통과하는 물의 pH는 일칼리성을 띄게 될 것이나, 광미층을 통과하면서 완전 산성화되어 배출수는 pH가 3.0 정도인 광미의 산도를 그대로 유지하였다. 또한 광미층을 통과한 물의 철분함량은 초기엔 약 11 ppm 을 상회하였고, 점차 시간이 경과함에 따라 그 함량은 감소하였지만 2일 이후에도 3 ppm 수준을 유지하였다. 이것은 광미층을 통과하는 물은 광미 층이 두터울 경우 완충기능에 의하여 산도가 반영구적으로 유지되기 때문인 것으로 생각된다. 따라서 단순하게 상부에만 석회석 층을 두고 하부에 광미층을 충전하는 방식으로는 광미를 안정적으로 복구할 수 없다는 것을 알 수 있다.

이와는 반대로 상부에 다덕 광미 층을 그리고 하부에

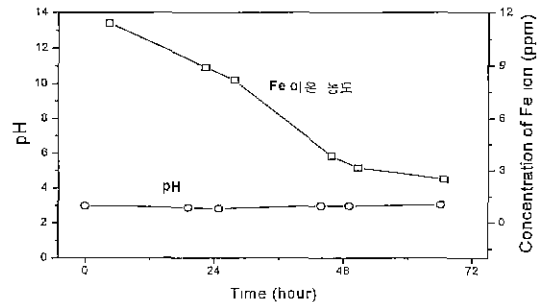


Fig. 7. Variations of pH and Fe ion concentrations with passing time in case of piling limestone and tailings in layers (upper layer = limestone, limestone tailings = 3.0 : 100, water passing velocity = 7.64 cm/hour).

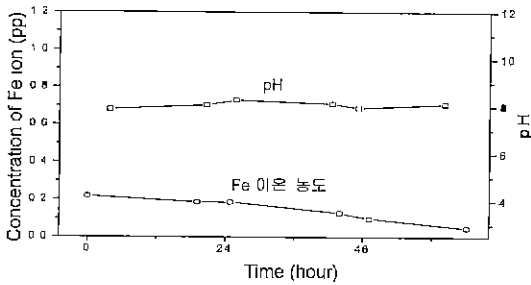


Fig. 8. Variations of pH and Fe ion concentrations with passing time in case of piling limestone and tailings in layers (upper layer = tailings, limestone : tailings = 3.0 · 100, water passing velocity = 4.10 cm/hour)

석회석 층을 쌓아 동일한 시험을 하였을 때의 결과가 Fig. 8 에 나타나 있다. 실험 결과에서 알 수 있듯이 먼 저 광미 층을 통과한 물이 석회석 층을 통과하면 pH는 8 정도를 유지하였고 철분 함량은 초기에 약 0.3 ppm 이하이고 3일 정도 지나면서 철분이 용출 되지 않고 있다. 따라서 광미의 안정복구를 위해서는 광미 층을 상부에 그리고 석회석 층을 하부에 두는 시공법을 택하는 것이 매우 효과적이며, 그 두께나 교차 회수 등은 광미와 석회석의 특성에 따라 결정하여야 할 것이다.

이상과 같이 산도가 강하고 완충능이 큰 다덕 광미를 대상으로 안정복구를 위한 층간 교차 시공에 적용할 수 있는 column 실험 결과에서도 완전 혼합에 의한 시공법과 흡사한 결과를 얻을 수 있었다.

4. 결 론

다덕 광미층의 투수 특성 실험 및 적층 중화 실험을 행한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 광미는 산도가 완충능이 있어 단순한 수세(water washing)로 산을 제거하기 곤란하다. 즉, 다덕 광산 광미 적치장으로 자연수가 투수 할 때, 연간

강수량을 평균 1.500 mm 라 하면 20 cm 의 광미 더미를 통과한 물의 pH가 7에 도달하기 위해서는 약 315년이 걸리고, 40 cm 의 광미 더미를 통과한 물의 산도가 7로 되기 위해서는 1200 년 이상이 걸린다. 따라서 일백 미터 이상 수백 미터까지 쌓인 광미 더미는 영구적인 산성폐수를 생성할 수 있게 된다

2. 산성도가 강한 토양이나 광미의 완전 복구는 산적정 표준법으로 산량을 측정하여 석회석의 소요량을 결정한 후 완전 혼합에 의해 복구하면 완전하고 안정적인 복구를 달성할 수 있다.
3. 경제적이고도 환경 친화적으로 산발생 광미를 복구할 수 있는 방안으로는 광미층과 석회석층을 교차로 시공하면 효과적이다. 이때 석회석 층과 광미 층을 교대로 시공하되 광미를 통과한 물을 석회석 층에서 중화하는 방식을 택하는 것이 보다 더 효과적이다.

참고문헌

1. 토양환경보전법, 시행령, 시행규칙.
2. 오종기, 김영석, 임명훈, 김성규, 이화영, 한 춘 : 황철석의 화학적 분해에 관한 연구, 한국자원공학회지, Vol. 36, No.4, pp.269-275 (1999).
3. 임명훈, 김영석, 김성규, 이화영, 한 춘, 오종기 : 미생물에 의한 황철석의 분해에 관한 연구, 한국자원공학회지, Vol 36, No. 6 (1999).
4. 오종기 : 휴 · 폐광산의 환경영향 분석 및 활용방안, 97-1 ILE환경정책토론회, 휴 · 폐광산의 환경오염 복구 및 활용방안에 관한 심포지엄, 국회의원회관, 국회 세계화 자원 · 환경연구회, 13-51 (1997).
5. 박용하, 이승희 : 토양환경보전을 위한 오염방지기준 및 관리대책, 한국환경기술개발원, KETRI/1995/RE-14 연구보고서, 384 (1995)
6. 박성배, 김민영, 김광진, 이승천, 이상렬, 임체규. 서울특별시 보건환경연구원보, 30, 182-187 (1994).



金永錫

- 1991 서울대학교 자원공학과 학사
- 1993 서울대학교 자원공학과 석사
- 1997 서울대학교 자원공학과 박사
- 현재 한국원자력연구소 원자력재료기술 개발팀 근무



吳鐘基

- 1979 서울대학교 광산학과 학사
- 1982 서울대학교 광산학과 석사
- 1992 서울대학교 자원공학과 박사
- 현재 한국과학기술연구원 금속공정연구센터 책임연구원



金成奎

- 1979 고려대학교 금속공학과 공학사
- 1982 고려대학교 금속공학과 석사
- 1992 고려대학교 금속공학과 박사
- 현재 한국과학기술연구원 금속공정연구센터 책임연구원



李華永

- 1980 서울대학교 화학공학과 학사
- 1982 한국과학기술원 화학공학과 석사
- 1987 한국과학기술원 화학공학과 박사
- 현재 한국과학기술연구원 금속공정연구센터 책임연구원