

광상유형에 따른 광물찌꺼기의 물리화학적 특성

이평구¹ · 염승준^{1*} · 정명채² · 이진수³ · 권현호³

¹한국지질자원연구원 지구환경연구본부, ²세종대학교 에너지자원공학과, ³광해관리공단 광해기술연구소

Physicochemical Characteristics of Tailings from the Various Types of Mineral Deposits

Pyeong-Koo Lee¹, Seung-Jun Youm^{1*}, Myung-Chae Jung², Jin-Soo Lee³ and Hyun-Ho Kwon³

¹Geologic Environment Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Daejeon 305-350, Korea

²Dept. of Energy and Mineral Resources Engineering, Sejong University, Seoul 143-747, Korea

³Technology Research Center, Mine Reclamation Corporation, Seoul 110-727, Korea

To construct the standard methods for evaluation of physicochemical characteristics of tailings in Korea, specific gravity, paste pH, grain size, mineral compositions and heavy metal concentrations of total 26 tailings from 21 metallic mines were analyzed. Specific gravity of tailings ranged from 2.61 to 4.31 (avg. 3.04), and sand and silt grain were dominant in the tailings. Ranges of paste pH were 2.1-9.5 in tailings (7.1-9.2 at magmatic, skarn and hydrothermal replacement deposits and 2.1-9.5 at hydrothermal vein deposits). Additionally, hydrothermal vein deposits could be reclassified into three categories: (1) paste pH>7.0, (2) 4.0<paste pH<7.0, and (3) paste pH<4.0. Tailings above pH 7.0 have large amounts of carbonate minerals. However, tailings under pH 7.0 have small amount of carbonates, but have sulfide minerals commonly. Especially, tailings under pH 4.0 typically contain supergene minerals. The presence and amounts of carbonates were more important than those of sulfides in determining paste pH in tailings. From the comprehensive results of total concentrations, grain size and extraction experiments, it is revealed that types of deposits were not related with the total and leaching concentrations in tailings, but the ore minerals and their amounts in deposits determined the metal content in tailings. Most mines having tailings with pH<4.0, contained large amounts of heavy metals and strong acidic characteristics, indicating that the deposits of this type have possibility of contamination and/or have contaminated surrounding environments. In this study, problematic elements, inferred from extraction experiment by Korean standard method for soils, were As and Zn. Especially, arsenic appeared to exceed the regulatory level in tailings (pH<4.0) from hydrothermal vein deposits, and in a less degree, zinc often exceeded regulatory level in most type of deposits, except of magmatic deposit.

Key words : tailings, standardization, physicochemical characterization, mineral deposit types

광물찌꺼기의 특성평가 방법의 표준화를 위하여 21개 광산을 대상으로 총 26개의 광물찌꺼기를 채취하여 광물찌꺼기의 비중, paste pH, 입도, 광물조성 및 중금속 함량을 분석하였다. 광물찌꺼기의 비중은 2.61-4.31(평균 3.04)의 범위를 보이며, 입도분포는 모래와 실트의 함량이 우세한 것으로 나타났다. 광물찌꺼기의 paste pH는 2.1-9.5의 범위를 보이는데, 정마그마광상, 스카른광상 및 열수교대광상의 경우에는 7.1-9.2, 그리고 열수맥상광상의 경우에는 2.1-9.5의 분포를 보인다. 열수맥상광상 유형은 paste pH에 따라 paste pH>7.0, 4.0<paste pH<7.0, paste pH<4.0으로 세분하였다. paste pH가 7.0 이상인 광산의 광물찌꺼기는 다량의 탄산염광물을 포함하고 있으며, paste pH 값이 4.0-7.0과 paste pH 4.0 미만인 광산의 광물찌꺼기는 탄산염광물은 거의 산출되지 않고, 황화광물이 공통적으로 관찰되며, paste pH<4.0의 광산에서는 2차광물이 검출되는 것이 특징이다. 한편, 광물찌꺼기 내의 paste pH를 결정하는데 있어서 황화광물의 존재보다는 탄산염광물의 존재와 함량이 더욱 중요한 요인으로 판단된다. 광물찌꺼기의 총함량, 입도별 중금속 함량 및 토양오염공정시험법에 따른 용출실험을 실시한 결과, 광상의 유형과 중금속의 총함량 및 용출함량의 관련성은 없는 것으로 파악되었으며, 각 광산에서 산출되는 광종과 그 양에 따라 광물찌꺼기 내 금속 함량의 차이

*Corresponding author: sjyoum@kigam.re.kr

가 발생하였음을 알 수 있다. 한편, paste pH 값이 4 미만인 광산은 대부분 높은 중금속 함량을 보이고 있으며, 강산성의 특성이 관찰되어 현재에도 중금속 오염문제가 발생할 가능성이 높거나 발생 중인 광산 그룹으로 구분된다. 토양 오염 공정시험법에 따른 용출시험에서 가장 문제될 수 있는 원소는 비소와 아연이었으며, 특히 비소는 열수맥상광상 유형 중 paste pH < 4.0 그룹에 해당되는 대부분의 광산에서 대책기준을 초과하는 것으로 나타났으며, 아연은 정마그마광상 유형을 제외한 스킨광상, 열수교대광상 및 열수충진 광상 등에 속하는 일부 광산에서 골고루 대책기준을 초과하는 것으로 나타났다.

주요어 : 광물찌꺼기, 표준화, 물리화학적 특성, 광상유형

1. 서 론

국내에는 900개 이상의 휴 · 폐금속광산이 있으며, 이들 광산 주변에 광물찌꺼기가 산재되어 있어 주요한 환경오염원이 되고 있다. 그동안 국내에서 이루어진 오염도 현황 조사 자료를 바탕으로 정리한 결과에 의하면, 국내에서는 189개 광산에서 광물찌꺼기가 확인되었다. 이들은 적게는 1 m³ 정도에서부터 많게는 1,200만 톤 등 다양한 적치량을 갖는다(Table 1). 이중 1,000~5,000 m³의 광물찌꺼기가 적치된 광산이 전체 189개 중에서 42개로서 가장 높은 빈도를 차지하고 있으며, 100~500 m³의 광물찌꺼기가 적치된 광산이 그 다음

으로 총 33개 광산이었다. 이외에 100 m³ 이하의 광물찌꺼기가 적치된 광산도 30개소로서 대부분 5,000 m³ 이하가 절대적이었다. 다만, 10,000~50,000 m³의 광물찌꺼기가 분포된 광산도 전체의 약 12%로 조사되었다. 광종별로는 금은광산 80개(42.3%), 금은 및 base metal 광산 70개(37.0%), base metal 광산 16개(8.5%), 철, 티탄, 텅스텐, 휘수연, 망간 등의 광산 20개(10.6%) 그리고 기타 화성변성 철광산과 소규모 납석광산 등이 3개(1.6%) 등으로 조사되었다. 이상과 같이 국내에 광물찌꺼기가 분포하는 광산 중에서 79.4%인 150개 광산은 금은과 관련된 광산으로 조사되었다(Lee *et al.*, 2008).

Table 1. Mineralization type, ore metals and amount of tailings amounts in studied mines

Mine	Location	Genesis	Metals	Tailing Amounts (m ³)
Yangyang	Yangyang ¹⁾	Magmatic	Fe	200,000
Sangdong	Yeongweol ¹⁾	Skarn	W, Au	12,000,000
Yeonhwa	Samchuck ¹⁾	Skarn	Pb, Zn	8,000,000
Janggun	Bonghwa ²⁾	Replacement	Au, Ag, Cu, Pb, Zn, Mn	625
Samkwang	Cheongyang ³⁾	Hydrothermal	Au, Ag, Pb, Zn	1,125,000
Sannae	Milyang ⁴⁾	Hydrothermal	W, Mo	70,000
Deokchon	Hapcheon ⁴⁾	Hydrothermal	Au, Ag	2,000
Yeosu	Yeosu ⁵⁾	Hydrothermal	Au, Ag	30,000
Dogsung	Yongin ⁵⁾	Hydrothermal	Au	trace
Yaro	Goryeong ²⁾ Hapcheon ⁴⁾	Hydrothermal	Au, Ag, Pb, Zn	25,000
Keumkye	Yangpyeong ⁵⁾	Hydrothermal	Au, Ag, Cu, Pb, Zn	18,000
Taechang	Chungju ⁶⁾	Hydrothermal	Au, Ag	1,500
Backweol	Changweon ⁴⁾	Hydrothermal	Zn	168,000
Munmyung	Youngdeuk ²⁾	Hydrothermal	Au, Ag	10,000
Daeheung	Chunan ³⁾	Hydrothermal	Au, Ag	1
Shinrim	Wonju ¹⁾	Hydrothermal	Ag	trace
Gakhi	Bonghwa ²⁾	Hydrothermal	Au, Ag, Pb	926,860
Ujin	Danyang ⁶⁾	Hydrothermal	Au	250
Daeyang	Jecheon ⁶⁾	Hydrothermal	W	800
Ilweol	Youngyang ²⁾	Hydrothermal	Au, Ag, Cu	96,200
Jangja	Chungsong ²⁾	Hydrothermal	Ag, Zn, Cu, Pb	13,500

¹⁾Gangwon, ²⁾Kyeongbuk, ³⁾Chungnam, ⁴⁾Kyeongnam, ⁵⁾Kyeonggi, ⁶⁾Chungbuk Province

국내 금속광상의 성인적 유형은 주로 열수충진형 광상, 스카른형 광상, 열수교대형 광상 등 화성광상과 변성퇴적형 광상으로 배태되고 있으며, 이외에도 일부 광산은 정마그마형 광상, 반암형 광상, 알라스카이트형 광상 등으로 분류된다(Choi *et al.*, 2004). 광상유형은 황화광물 및 탄산염 광물의 종류 및 그 함량과 같은 폐석 및 광물찌꺼기의 지화학적 특징에 직접적으로 영향을 미칠 것이다. 또한, 폐금속광산으로부터 발생하는 수질 및 토양의 환경문제는 광상의 개발규모 및 수반 금속, 주변 암상과 관련된 부존특성과 함께 열수변질 작용과 관련된 광물조합, 광석-매석 광물의 조직, 유형 및 양적관계, 풍화의 진행단계와 관련된 이차-삼차광물의 존재형태 등의 광물-지화학적 특성에 좌우된다(Choi *et al.*, 2004). 특히, 금속광상의 산성배수 및 중금속오염의 확산 문제는 다금속 광화작용과 관련된 비철금속 광상과 열수맥상광상 및 각력파이프형 광상과 관련된 백악기 금광상에서 높은 가능성을 보이는 반면, 스카른형 광상, 열수교대형 광상, 정마그마형 광상 및 변성퇴적형 광상에서의 오염확산 가능성은 매우 낮은 경향을 보이는 것으로 알려져 있다(Jung, 2008). 또한, 1970년대 초반부터 1990년대 후반에 걸쳐 광산개발이 종료된 국내 금속광상은 폐광이후의 경과기간에 따라 황화-황염광물과 같은 일차광물로부터 용해되어 수산화광물, 황산염광물, 탄산염광물로 변화하는 과정에서 산화-용출-침전-재용출-이동에 의한 다단계의 복잡한 지화학적 반응관계를 보인다고 하였다(Lee *et al.*, 2005).

본 연구의 목적은 국내의 대표적인 광상 유형에 따라, 광물찌꺼기의 입도, 비중, pH 등 물리적인 특성과 미량원소 함량 등 화학적 특성을 규명하고 분류하고자 하였다.

2. 시료채취 및 분석

2.1. 광물찌꺼기 시료 채취

이번 연구에서 조사대상광산으로 선정된 광산은 총 21개 광산이며, 채취한 시료는 총 26개이다. 각 광산별로 1개의 광물찌꺼기를 채취하는 것을 원칙으로 하였으나, 일부 광산의 경우에 2-3개의 광물찌꺼기를 채취하였다. 조사대상광산을 성인별로 구분하면, 열수충진형 광상이 17개로 대부분을 차지하며, 이외에 정마그마형(양양광산)이 1개, 스카른형(상동 및 연화광산) 2개 및 열수교대형(장군광산) 1개가 선정되었다. 한편 광종별로 살펴보면, 금은 광산이 대부분을 차지하며, 이외에 양양 철광산, 상동 및 대양 중석광산, 그리고

연화 및 장군 연·아연광산 등이 있다. 국내의 폐금속광산 대부분이 열수충진형 금은광산이므로, 이번 연구에서는 대표적인 국내 폐금속광산의 선정을 위하여, 주로 열수충진형 금은 광산을 대상으로 하였다. 이외에 광종별 성인별로 그 특성을 비교하고자, 3개의 유형별(정마그마형, 스카른형 및 열수교대) 및 여러 광종(철, 중석, 연·아연)을 포함시켰다.

2.2. 페이스트(paste) pH, 비중, 입도 측정

paste pH는 광물찌꺼기 5 g과 증류수 25 ml를 혼합하여 1시간 교반한 후, pH를 측정하였다. 이 실험은 비교적 간단하면서도 광물찌꺼기의 황화물, 탄산염 등의 존재를 확인할 수 있는 실험으로서 적절하다.

비중은 KS F 2308-91에 준하여 시험하였다. 시험은 건조로에서 $110 \pm 5^\circ\text{C}$ 로 24시간이상 건조시킨 No.10체(2.00 mm) 통과시료 25 g 정도를 물과 함께 비중병(pycnometer)에 넣고 전열기(hot plate)에 의해 끓여서 내부공기를 제거시켰다. 이후 실온으로 식혀서 증류수로 비중병의 눈금까지를 채운 비중병의 무게와, 동일한 높이의 눈금까지 증류수만을 채운 비중병의 무게를 각각 측정하였으며, 이를 규정에 의한 공식에 적용하여 비중을 구하였다.

입도분석은 KS F 2309-95에 준하여 시험하였다. 입도분석은 토층에 있는 입자크기의 분포를 파악하기 위한 것으로, 입자의 직경이 0.074 mm(No.200체)보다 큰 조립토와 0.074 mm보다 작은 세립토로 구분해서 시험하고, 그 결과를 하나로 조합하여 입도분포곡선으로 표현하는 것이 일반적이다. 0.074 mm보다 큰 조립토는 체분석(sieve analysis)을 적용하였다. 그리고 0.074 mm보다 작은 세립토는 비중계분석을 적용하였다. 비중계분석은 물 속에 가라앉은 입자들의 침강원리를 근거로 하는 방법으로서 Stokes의 법칙에 따른 공식에 의해 계산되었다. 이들 체분석과 비중계에 의한 결과를 조합하여 입도분포도를 작성하였고 입도분포곡선으로부터 해당시료의 자갈, 모래, 실트 및 점토의 구성비를 백분율로 산정하였다.

2.3. X-선회절분석

광물찌꺼기는 미립의 광물들로 구성되어 있으므로 육안 및 현미경 조사에 의해서는 광물의 구별이 어려워 X선 회절 분석 방법에 의해 광물조성과 종류를 판별하였다. X선 회절분석은 PHILIPS XPERT MPD Diffractometer(Cu Ka:40 KV, 25 mA)를 이용하였고, Cu target을 사용하여 3° - 45° 까지 $2^\circ/1$ 분의 속도와

0.01°의 간격으로 하였다.

2.4. 화학분석

2.4.1. 광물찌꺼기의 총합량분석

광물찌꺼기에 함유된 미량원소의 총합량 분석은 국제 표준기구(International Organization for Standardization)에서 제안한 왕수(aqua regia : ISO 11466)법을 따라 분석하였다(International Organization for Standardization, 1995). 화학분석용 시료 3 g에 염산(37% HCl)과 질산(70% HNO₃)을 3:1로 혼합한 왕수 28 ml를 섞은 후 실온에서 16시간 동안 반응시킨다. 이후 130°C에서 2시간 동안 용해시킨 뒤, 0.45 µm 필터로 여과하고 0.5 mol/L 질산용액으로 희석하였다.

미량원소 분석은 고려대학교 전락광물자원연구센터의 ICP-AES(Perkins-Elmer Optima 3000XL)를 이용하였으며, 분석조건은 RF Power 1300 W, Plasma Flow 15 L/min, Coolant Flow 0.5 L/min, Nebulizer Flow 0.8 L/min이었다. 사용된 시약은 analytical grade(Merck)였고, ICP 분석시 사용된 표준용액은 1,000 ppm stock solution(Merck)을 희석하여 사용하였다. 전 분석과정에 이용된 탈이온수를 얻기 위해 Milli-Q Millipore system 을 사용하였다.

2.4.2. 광물찌꺼기의 토양오염공정시험 분석 방법

본 연구는 2010년부터 시행되는 토양오염공정시험법 이전의 토양오염공정시험법에 의해 수행되었다. 시료 10 g을 100 ml의 삼각플라스크에 넣고 0.1 N 염산용액 50 ml를 넣은 후 항온수평진탕기(100회/분, 진폭 10 cm)를 사용하여 30°C를 유지하면서 1시간 동안 진탕시킨 다음, 여과지(0.45 µm)로 거른 뒤 분석하였다. 다만, 비소(As) 함량을 측정하기 위해서는 전처리 시에 염산의 농도(1 N)를 달리하였다. 한편, Zn과 Ni 함량 분석은 시료 0.75 g을 넣은 시험관에 염산3(5.4 ml): 질산1(1.8 ml)을 넣고 Heating Block에 넣은 후 70°C를 유지하면서 1시간 동안 가열 후 증류수 22.8 ml를 가하고 흔들어진 후, 여과지(0.45 µm)로 거른 뒤 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 광상유형에 따른 paste pH 특성

정마그마 광상인 양양 철광산에서 채취한 광물찌꺼기의 paste pH는 9.2로서 매우 높은 값을 보이고 있으며, 스카른 광상 혹은 열수교대광상인 상동광산, 연

화광산 및 장군광산에서 채취된 광물찌꺼기의 paste pH도 각각 8.9, 7.6-7.7 및 7.2-7.7로 알칼리성의 높은 값을 보이고 있다(Table 2). 이는 광물찌꺼기 내에 존재하는 탄산염광물(방해석) 및 스카른 광물에 기인하는 것으로 판단된다.

한편 열수충진형 광상에서는 다양한 paste pH 값을 나타내고 있으며, paste pH에 따라 3 그룹으로 세분하였다(Table 2). 광물찌꺼기의 paste pH 값이 7 이상(pH≥7.0)인 광산은 삼광광산, 덕촌광산 및 산내광산으로서, 7.8 이상의 높은 paste pH 값을 나타내고 있다. 이들 광물찌꺼기의 XRD 분석결과, 방해석과 백운석 등의 탄산염광물이 검출되었으며, 이들 광물로 인해 높은 paste pH 값을 나타내고 있는 것으로 판단된다. 일부 광물찌꺼기(삼광)에서는 약간의 황철석이 검출되었지만, paste pH 값은 9.1로서 매우 높은 값을 보이고 있다. 이러한 것은 광물찌꺼기 내의 paste pH를 결정하는데 있어서 황화광물의 존재보다는 탄산염광물의 존재와 함량이 더욱 중요한 요인인 것임을 지시한다.

paste pH 값이 4와 7 사이인 광산에는 산내, 여수, 독성, 야로, 태창 및 백월광산이 있으며, 4.1에서 6.8까지의 범위를 갖는다. 여기서 산내광산에서 채취한 광물찌꺼기는 6.8과 8.1을 보이며, 두 그룹간의 경계에 해당하는 것으로 보인다. 한편 paste pH 값이 4에서 7 사이인 광산에서는 탄산염광물이 산출되지 않고 있으며, 여수, 독성 및 태창광산에서 채취한 시료를 제외한 대부분의 시료에서 황화광물이 산출된다.

pH<4.0으로 낮은 paste pH 값을 보이는 광산에는 금계, 문명, 대흥, 신립, 각희, 유진, 대양, 일월 및 장자광산이 있으며, paste pH 값이 2.1에서 3.9의 범위를 보이고 있다. 이들 시료에서는 탄산염광물은 검출되지 않으며, 운모를 제외하면 pH에 완충능력이 있는 다른 광물이 산출되지 않는 반면에, 다량의 황화광물 및 이들 광물들이 산화되어 형성된 2차 광물들이 다량으로 검출되는 특징이 있다. 특히, 낮은 pH 값을 보이는 유진광산에서는 황철석과 앵글레사이트(Anglesite, PbSO₄), 자로사이트(Jarosite, (K,H₃O)Fe₃(SO₄)₂(OH)₆)가 검출되었으며, 일월광산 시료에서는 보이단타이트(Beudantite, Pb((Fe_{2.54}Al_{0.46})As_{1.07}O₄)S_{0.93})), 장자광산에서는 자로사이트 등이 다량으로 산출된다.

광물찌꺼기의 paste pH를 광상유형으로는 정리하면, 정마그마 광상, 스카른 광상 및 열수교대 광상 유형의 광산에서 채취된 광물찌꺼기는 모두 paste pH가 7.7 이상의 알칼리성을 띠고 있으며, 열수충진광상 유형의

Table 2. Paste pH, specific gravity and size analysis of tailings in studied mines

Type	Mine	Metal	paste pH	specific gravity	size analyses			
					gravel ^{a)}	sand ^{b)}	silt ^{c)}	clay ^{d)}
Magmatic	Yangyang	Fe	9.2	2.93	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Skarn	Sangdong	W	8.9	2.91	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
	Yeonhwa(1)	Pb/Zn	7.6	3.37	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
	Yeonhwa(2)	Pb/Zn	7.8	3.42	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Replacement	Janggun(1)	Cu/Pb/Zn/Mn	7.1	3.42	0.00	83.84	15.70	0.46
	Janggun(2)	Cu/Pb/Zn/Mn	7.8	3.59	0.00	91.82	8.05	0.13
Hydrothermal (pH>7.0)	Samkwang(1)	Au/Ag/Pb/Zn	8.4	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
	Samkwang(2)	Au/Ag/Pb/Zn	9.5	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
	Samkwang(3)	Au/Ag/Pb/Zn	9.1	2.68	0.00	1.64	88.72	9.64
	Sanna(2)	W/Mo	8.1	2.82	8.15	90.87	0.97	0.01
	Deokchon	Au/Ag	7.8	2.85	7.74	88.57	3.66	0.03
Hydrothermal (pH 4.0~7.0)	Sanna(1)	W/Mo	6.8	2.81	0.00	98.84	1.15	0.01
	Yeosu	Au/Ag	6.1	2.65	0.61	70.91	23.79	4.69
	Dogsung	Au	5.9	2.67	7.45	64.29	23.61	4.65
	Yaro	Au/Ag/Pb/Zn	5.7	3.00	24.55	69.20	6.12	0.13
	Taechang	Au/Ag	4.7	2.68	0.91	60.15	32.53	6.41
	Baekweol	Zn	4.3	2.78	36.59	60.99	2.41	0.01
Hydrothermal (pH<4.0)	KeumKye	Au/Ag/Cu/Pb/Zn	3.9	2.67	0.00	57.31	35.66	7.03
	Munmyung	Au/Ag	3.4	2.76	17.86	81.01	1.12	0.01
	Daeheung	Au/Ag	3.3	2.67	1.02	51.31	39.83	7.84
	Shinrim	Ag	3.3	2.85	0.00	82.03	15.01	2.96
	Gakhi	Au/Ag/Pb	3.2	2.61	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
	Ujin	Au	3.0	3.16	0.00	44.70	44.53	8.77
	Daeyang	W	3.0	3.65	3.57	65.76	25.62	5.05
	Ilweol	Au/Ag/Cu	2.6	3.33	2.10	95.74	2.14	0.02
	Jangja	Ag/Zn/Cu/Pb	2.1	2.85	9.72	88.85	1.42	0.01

^{a)}>4.75 mm, ^{b)}4.75~0.075 mm, ^{c)}0.075~0.005 mm, ^{d)}<0.005 mm

*n.a.: not analyzed

경우에는 알카리성에서 강산성을 띄어 3가지 유형으로 구분할 수 있었다. 이러한 것은 광물찌꺼기 내에 포함되어 있는 황화광물과 탄산염광물의 존재유무(또는 비율)에 따라 영향을 받는 것임을 알 수 있다.

3.2. 광상유형에 따른 비중 특성

정마그마광상 형태인 양양철광산에서 채취한 광물찌꺼기의 비중은 2.93이었으며, 이는 광물찌꺼기에 포함되어 있는 자철석도 영향을 주는 것으로 생각된다.

스카른 및 열수교대광상에서 채취한 광물찌꺼기의 비중은 2.91-3.59의 범위에 있으며, 평균은 3.37인 것으로 나타났다. 스카른광상 형태인 상동광산의 경우 비중이 2.91이었으며, 연화광산의 경우에는 3.37-3.42이었다. 열수교대광상 형태인 장군광산에서 채취한 광물찌꺼기의 비중은 3.42-3.59의 범위에 있다.

열수충진광산에서 채취한 광물찌꺼기의 비중은 2.61-3.65의 범위에 있으며, 평균은 2.86인 것으로 나타났다. 대부분 광산의 광물찌꺼기는 2.65-2.68의 범위로서, 일반 토양과 비슷한 비중을 나타내고 있다. 광물찌꺼기의 paste pH 값이 7 이상(pH≥7.0)인 광산에서 채취한 광물찌꺼기의 비중 값은 2.68-2.85의 범위를 갖으며, 평균 2.78이었으며, 이 값은 같은 열수충진광산의 다른 2개 그룹보다 낮은 값을 보이는 것이다. paste pH 값이 7과 4 사이인 광산에서 채취한 광물찌꺼기의 비중 값은 2.65-3.00의 범위를 갖으며, 평균 2.76이었다. pH<4.0으로 낮은 paste pH 값을 보이는 광산에서 채취한 광물찌꺼기의 비중 값은 2.61-3.65의 범위를 갖으며, 평균 3.09이었다. 유진(3.16), 대양(3.65), 일월(3.33)에서 채취한 광물찌꺼기의 비중이 다른 광물찌꺼기에 비교하여 높은 것으로 나타난 바 있다. 이러한

특징은 광물조성에서의 차이에 기인한다(Table 2).

3.3. 광상유형에 따른 광미 입도 특성

입도는 KS F 2301(흙의 입도 시험 및 물리 시험용 시료 조제 방법)에 준하여 4.75 mm 이상(자갈), 4.75-0.075 mm(모래), 0.075-0.005 mm(실트), 0.005 mm 이하(점토)로 구분하였다. 입도분석 결과, 광물찌꺼기의 입도분포는 광상유형 및 광종에 따른 특징이 관찰되지 않으며, 다양하게 나타나고 있다. 일반적으로 모래와 실트의 함량이 우세한 것으로 나타났으며, 모래가 매우 우세한 경우, 실트가 매우 우세한 경우 및 모래와 실트의 비율이 서로 유사한 경우 등 세 가지 유형으로 구분된다. 광물찌꺼기의 대부분은 모래가 매우 우세한 경우이었으며, 삼광광산의 광물찌꺼기만이 실트가 우세하였다. 유진광산 및 대흥광산의 광물찌꺼기는 모래와 실트가 유사한 광물찌꺼기였다. 한편, 아로광산과 백월광산에서 채취한 광물찌꺼기에는 자갈의 비율도 높았으며, 이는 폐광석과 혼합되어 적치되어 있기 때문인 것으로 보인다(Table 2).

3.4. 광상유형에 따른 광물학적 특성

정마그마 광상인 양양 철광산에서 채취한 광물찌꺼기는 각섬석 31.8%, 장석류 25.1%, 운모류 20.0%, 석영 12.1% 및 탄산염광물, 녹니석, 자철석 등이 각각 3.5%, 3.5% 및 3.9%가 산출하는 것으로 나타났다(Table 3).

상동광산 광물찌꺼기는 석영 36.3%, 운모류 37.0%, 녹니석 10.1%, 각섬석 8.7% 및 탄산염광물 7% 등이 산출되었다. 연화광산 광물찌꺼기는 석영 5.9-7.7%, 각섬석 5.5-7.2%, 운모류 0.0-4.3%, 탄산염광물 15.4-25.7%, 녹니석 1.7-2.4%, 석류석 0.0-14.4%, 휘석류 29.4-39.7%, 녹립석 15.5-17.7%, 자철석 0.6-3.3, 섬아연석 0.0-3.6% 등이 산출되었다. 열수교대광상인 장군광산 광물찌꺼기에는 석영 17.7-32.2%, 운모류 12.4-18.7%, 탄산염광물 5.9-10.6%, 녹니석 10.5-17.3%, 석고 0.0-5.1%, 섬아연석 7.3-7.6%, 황철석 4.5-11.7% 및 자류철석 15.5-23.1%가 산출되었다. 이들 광상유형에서는 광상의 특성상 탄산염광물이 다량으로 산출되는 것이 일반적인 현상이었으며, 대표적인 스킨 광물인 석류석과 휘석류가 연화광산에서 다량으로 산출되었으나 상동광산과 장군광산에서는 산출되지 않았다. 한편, 섬아연석, 황철석 및 자류철석 등 황화광물은 장군광산에서 다량으로 산출되었다(Table 3).

광물찌꺼기의 paste pH 값이 7이상($\text{pH} \geq 7.0$)인 광산

은 삼광광산, 산내광산 및 덕촌광산이 해당되며, 일부 시료를 제외하면 모든 광산의 광물찌꺼기로부터 다량의 탄산염광물이 산출된다. 삼광광산 광물찌꺼기는 모두 3개 시료를 채취하였으며 채취된 위치에 따라 광물 조성의 차이가 큰 것으로 나타났으며, 석영 15.6-65.0%, 장석 4.7-9.2%, 운모류 15.5-27.4%, 탄산염광물 0-7.6%, 녹니석 2.4-31.3%, 황석 0-22.8%, 녹립석 0-4.8% 및 황철석 0-1.7%가 산출되었다. 산내광산 광물찌꺼기는 석영 34.9%, 장석 9.7%, 운모류 32.3%, 탄산염광물 7.5%, 녹니석 0.8%, 몬토릴로나이트(montmorillonite)와 카올리나이트(kaolinite)가 각각 6.5%와 5.7%가 산출되며, 이외 광석광물로 휘수연석과 회중석이 각각 1.7%와 0.9%가 산출된다. 덕촌광산 광물찌꺼기는 석영 50.6%, 장석 11.9%, 운모류 25.2%, 탄산염광물 5.1% 및 barite(barium sulphate)가 7.2%가 산출된다(Table 3).

광물찌꺼기의 paste pH 값이 4.0-7.0인 광산은 산내광산 광물찌꺼기 일부, 여수광산, 독성광산, 아로광산, 태창광산 및 백월광산 등이 해당된다. 이 그룹의 특징은 탄산염광물이 산출되지 않고 있으며, 여수, 독성 및 태창광산과 같이 황화광물이 검출되지 않거나 미량으로 검출되는 것이 광물찌꺼기의 paste pH 값이 7 이상($\text{pH} \geq 7.0$)인 광산과의 구별되는 점이며, 황화광물이 산출되지만 황화광물이 산화되어 형성된 2차광물이 산출되는 경우가 드물다는 점이 $\text{pH} < 4.0$ 으로 낮은 paste pH 값을 보이는 광산과의 차이점이다. 여수광산 광물찌꺼기는 석영 86.3%, 장석이 2.1%, 운모류 8.9%, 녹니석 2.7%가 산출되었으나 황화광물은 산출되지 않았다. 독성광산 광물찌꺼기는 석영 71.7%, 장석 20.2%, 운모류 8.1%가 산출되었으며, 황화광물은 검출되지 않았다. 태창광산 광물찌꺼기에서도 석영 83.3%, 운모류 9.2%, 장석 7.6%가 산출되었으며, 황화광물은 검출되지 않았다. 아로광산 광물찌꺼기에서도 석영 47.5%, 운모류 27.0%, 녹니석 4.6%, 카올리나이트 5.9%가 산출된 것 이외, 황철석 6.7%, 방연석 1.2% 등 황화광물이 검출되었으며, 2차광물로 앵글레사이트 7.0%가 산출되었다(Table 3).

$\text{pH} < 4.0$ 으로 낮은 paste pH 값을 보이는 광산에는 금계, 문명, 대흥, 신림, 각희, 유진, 대양, 일월 및 장자광산이 있으며, 이 그룹의 특징은 일반적으로 황화광물이 산출되는 것 뿐 만아니라 2차광물이 일반적으로 검출되므로 광물찌꺼기에 포함된 황화광물의 산화작용이 상당히 진행된 것임을 지시한다. 문명광산 광물찌꺼기는 석영 40.4%, 운모류 50.9%가 검출되었으며, 2차광물로 자로사이트가 8.7%가 검출되었다. 신림

Table 3. Mineral compositions of tailings in studied mines

Mine	Qtz	Fd	Hb	Mc	Car	Chl	Gt	Pyx	Bs	Gyp	Tc	Ep	Mont	Kaol	Mt	Ht	Sp	Py	Po	Mo	Sch	Gn	Ang	Jar	Bd	S	Bsul	Total
Yangyang	12.1	25.1	31.8	20.0	3.5	3.5								3.9														99.9
Sangdong	36.3		8.7	37.0	7.0	10.1												0.9										100
Yeonhwa(2)	7.7		5.5		25.7	1.7		39.7				15.5		0.6		3.6												100
Yeonhwa(1)	5.9		7.2	4.3	15.4	2.4	14.4	29.4				17.7		3.3														100
Janggun(2)	17.7			12.4	10.6	17.3										7.3	11.7	23.1										100.1
Janggun(1)	32.2			18.7	5.9	10.5			5.1							7.6	4.5	15.5										100
Samkwang(2)	65.0	4.7		23.1		2.4					4.8																	100
Samkwang(3)	15.6	9.2		27.4	7.6	31.3				8.9																		100
Samkwang(1)	18.2	7.0		15.5	7.6	27.1				22.8							1.7											99.9
Sanna(2)	34.9	9.7		32.3	7.5	0.8							6.5	5.7				1.7	0.9									100
Deokchon	50.6	11.9		25.2	5.1																						7.2	100
Sanna(1)	38.0	20.8		23.2		6.4							4.5	4.7			0.4		0.8	1.2								100
Yeosu	86.3	2.1		8.9		2.7																						100
Dogsung	71.7	20.2		8.1																								100
Yaro	47.5			27.0		4.6											6.7				1.2	7.0						99.9
Taechang	83.3	7.6		9.2																								100.1
Baekweol	41.4	14.0		22.6		4.2							6.6	2.4									8.7					99.9
KeumKye	88.0			9.8		2.1																						99.9
Munmyung	40.4			50.9														8.7										100
Daehung	70.9	19.4		8.4		1.3																						100
Shinrim	72.6	7.5		13.5													3.0							3.4				100
Gakhi	58.4	16.4		19.7		3.6																		2.0				100.1
Ujin				8.7					42.3	3.9							3.4						9.0	32.6				99.9
Daeyang	3.5			0.1																								100.1
Ilweol	20.3																5.6								74.1			100
Jangja	25.2									13.0			5.2				2.5						44.6		9.6			100.1

Abbreviation: Qtz; quartz, Fd; feldspar, Hb; hornblende, Mt; Mica, Car; carbonates, Chl; chlorite, Gt; garnet, Pyx; pyroxene, Bs; bassanite, Gyp; gypsum, Tc; talc, Ep; epidote, Mont; montmorillonite, Kaol; kaolinite, Mt; magnetite, Ht; hematite, Sp; sphalerite, Py; pyrite, Po; pyrrhotite, Mo; molybdenite, Sch; scheelite, Gn; galena, Ang; anglesite; Jar; jarosite, Bd; beudantite, S; sulphur, Bsul; barium sulphate.

광산 광물찌꺼기는 석영 72.6%, 운모류 13.5%, 장석 7.5%이 검출되었고, 보이단타이트 3.4% 및 황철석 3% 등이 산출되었다. 각회광산 광물찌꺼기는 석영 58.4%, 운모류 19.7%, 장석 16.4%, 녹니석 3.6% 및 보이단타이트 2.0% 등이 산출되었다. 유진광산 광물찌꺼기는 Bassanite($\text{CaSO}_4 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$)가 42.3%로 가장 많이 산출되었으며, 자로사이트가 32.6%가 산출되었다. 그 외 앵글레사이트가 9%, 운모류 8.7% 및 황철석과 석고 각각 3.4 및 3.9%가 산출되었다. 대양광산의 광물찌꺼기는 주로 자철석으로 구성된 것으로 나타났으며 전체 광물조성의 약 77.2%인 것으로 나타났다. 이외 적철석이 13.6% 산출되었으며, 보이단타이트 5.7%, 석영 3.5%가 산출되었다. 일월광산의 광물찌꺼기는 석영 20.3%가 산출되었으며, 황화광물로 섬아연석이 5.6%가 검출되었고 2차광물로 보이단타이트가 74.1%가 검출되었다. 장자광산의 광물찌꺼기는 석영 25.2%, 황석 13.0%, 몬모릴로나이트 5.2%가 산출되었으며, 황철석 2.5%, 자로사이트 44.6% 및 자연황 9.6%가 검출되었다. 그러나 예외적으로 대홍광산 광물찌꺼기는 석영 70.9%, 장석 19.4%, 운모 8.4%, 녹니석 1.3%가 산출되었으나, 황화광물은 검출되지 않았다. 금계광산 광물찌꺼기도 석영 88%, 운모 9.8%, 녹니석 2.1%가 검출되었다(Table 3).

이러한 광물조성의 차이는 paste pH 및 용출실험의 차이를 해석하는 데 매우 중요한 자료로 활용할 수 있을 것으로 판단된다. XRD 분석결과, 낮은 paste pH 값을 보이는 광산에서는 황철석 등 황화광물과 앵글레사이트, 자로사이트 등 2차광물이 관찰되었다. 또한, 광물찌꺼기 내의 paste pH를 결정하는데 있어서 황화광물의 존재보다는 탄산염광물의 존재와 함량이 더욱 중요한 요인으로 판단된다. 한편, paste pH의 산도를 결정하는 데 있어서, 광물찌꺼기 내의 황화광물 및 탄산

염광물 등과 같이 산성배수를 형성하거나 또는 중화시키는 광물의 존재 여부도 중요하지만, XRD에서 검출되지 않는 황화광물의 존재 여부, 황화광물의 풍화정도 및 광물찌꺼기의 보관 방법 등에 따라 paste pH가 영향을 받을 수 있음을 지시한다.

3.5. 광물의 반응성(Reactivity)에 따른 paste pH 유형별 특성

광물찌꺼기에서 산출되는 맥석광물들은 광물의 유형에 따라 용액과의 반응성(reactivity)의 차이가 다르므로 알려져 있으며(Table 4), 일반적으로 이들 광물들은 산중화광물(Potential pH-consuming minerals), 산발생광물(Potential pH-producing minerals 및 불활성광물 (Inert minerals) 등으로 구분할 수 있다(Table 5). 이러한 분류를 근거로 이 연구에서 조사한 광물찌꺼기에서 산출되는 광물을 용액과의 반응성을 고려하여 각 광산에서 채취한 광물찌꺼기에 함유된 산출광물들로 분류하고 각각의 백분율로 상대적인 양을 계산하였다(Table 5).

그 결과 광물찌꺼기의 paste pH가 7.0 이상인 경우에는 삼광광산 광물찌꺼기(2)를 제외하면 일반적으로 Potential pH-consuming minerals의 함량이 최소 3.5%에서부터 29.8%에 이르는 것으로 나타났으며, 평균 10.0%에 이른 것으로 나타났다. 한편, 장군광산의 광물찌꺼기의 경우 Potential pH-producing minerals의 함량도 최대 42.1%로 예상보다 매우 높은 함량을 보이고 있음에도 불구하고 paste pH 값이 7.0 이상으로 높은 것은 방해석 및 백운석의 함량이 높았기 때문이다.

광물찌꺼기의 paste pH가 7.0 미만인 경우에는 Potential pH-consuming minerals의 함량이 검출되지 않으며, Potential pH-producing minerals의 함량이

Table 4. Mineral classification by reactivity with pH

Mineral Group	Typical Minerals	Relative Reactivity at pH 5
Dissolving	calcite, dolomite, aragonite, magnesite, brucite	1.0
Fast weathering	anorthite, nepheline, olivine, garnet, jadeite, leucite, spodumene, diopside, wollastonite	0.6
Intermediate weathering	eidote, zoisite, enstatite, hypersthene, augite, hedenbergite, hornblende, glaucophane, tremolite, actinolite, anthrophyllite, serpentine, chrysotile, talc, chlorite, biotite	0.4
Slow weathering	albite, oligoclase, labradorite, montmorillonite, vermiculite, gibbsite, kaolinite	0.02
Very slow weathering	K-feldspar, muscovite	0.01
Inert	Quartz, rutile, zircon	0.004

Table 5. Ratios (%) for acid-producing and acid-neutralizing minerals for tailings in studied mines

Mine	Paste pH	Potential pH-consuming minerals	Potential pH-producing minerals	Inert minerals
		Car, Gt	Bs, Gyp, Mt, Ht, Sp, Py, Po, Asp, Mo, Sch, Gn, Ang, Jar, Bd, S, Bsul	
Yangyang	9.2	3.5	3.9	92.5
Sangdong	8.9	7.0	0.9	92.1
Yeonhwa(2)	7.8	25.7	4.2	70.1
Yeonhwa(1)	7.6	29.8	3.3	66.9
Janggun(2)	7.8	10.6	42.1	47.4
Janggun(1)	7.1	5.9	32.7	61.4
Samkwang(2)	9.5	0.0	0.0	100
Samkwang(3)	9.1	7.6	0.0	92.4
Samkwang(1)	8.4	7.6	1.7	90.6
Sannae(2)	8.1	7.5	2.6	89.9
Deokchon	7.8	5.1	7.2	87.7
Sannae(1)	6.8	0.0	2.2	97.6
Yeosu	6.1	0.0	0.0	100
Dogsung	5.9	0.0	0.0	100
Yaro	5.7	0.0	14.9	85.0
Taechang	4.7	0.0	0.0	100.1
Baekweol	4.3	0.0	8.7	91.2
Keumkye	3.9	0.0	0.0	99.9
Munmyung	3.4	0.0	8.7	91.3
Daeheung	3.3	0.0	0.0	100.0
Shinrim	3.3	0.0	6.4	93.6
Gakhi	3.2	0.0	2.0	98.1
Ujin	3.0	0.0	91.2	8.7
Daeyang	3.0	0.0	96.5	3.6
Ilweol	2.6	0.0	79.7	20.3
Jangja	2.1	0.0	56.7	43.4

0.0%에서부터 96.5%까지 매우 다양한 특성이 관찰되었다(Table 5). 특히, 광물찌꺼기의 paste pH가 3.0 미만인 유진광산, 대양광산, 일월광산 및 장자광산 등의 경우에는 Potential pH-producing minerals의 함량이 56.7-96.5%까지 예외적으로 높게 나타났다. 이는 광물찌꺼기의 paste pH가 황화광물의 산화작용과 관련성이 높음을 지시한다. 한편, 광물학적 연구결과 광상유형과 구성광물의 조성비와는 밀접하게 관련되었으며, 이는 광물찌꺼기의 paste pH가 광상의 유형에 의해서 뚜렷하게 구분된다는 것을 지시한다(Table 5).

3.6. 총합량분석 결과

각 광산에서 채취한 광물찌꺼기의 총합량을 분석한 결과, 광상의 유형과 중금속의 총합량과의 관련성이 없는 것으로 파악되었으며, 각 광산에서 산출되는 광종

과 그 양에 따라 광물찌꺼기의 금속 함량의 차이가 발생하였음을 알 수 있었다(Table 6).

정마그마 광상 유형인 양양광산 광물찌꺼기의 미량 원소 중 함량이 상대적으로 높은 중금속은 없었다. 국내에서 정마그마광상 유형의 광산이 개발된 것은 철광산이외 다른 광종의 광산은 알려진 바 없는 것으로 파악되었으며, 철광체와 수반된 광석광물도 산화광물인 자철석 이외 기타 환경에 유해한 광물이 산출되지 않았으므로, 이러한 형태의 광상유형이 국내에서 중금속에 의한 환경 오염문제를 발생하는 경우가 없을 것으로 생각된다(Table 6).

스카른 광산인 상동광산에서 채취한 광물찌꺼기는 중금속 함량은 매우 낮았으며, 연화광산의 광물찌꺼기는 아연과 비소함량이 각각 5,800-6,800 ppm 및 230-270 ppm 으로 비교적 유의할 만한 함량을 보이는

Table 6. Total concentrations extracted by aqua regia of tailings in studied mines (mg/kg)

Mine	As	Cd	Cu	Pb	Zn
Yangyang	0.6	0.2	48.4	19.2	198.4
Sangdong	41.6	1.9	93.3	24.7	117.0
Yeonhwa(2)	229.4	40.6	181.1	448.8	6792.0
Yeonhwa(1)	271.7	31.8	192.7	485.2	5841.4
Janggun(2)	245.7	176.3	621.1	3569.0	39828.5
Janggun(1)	247.5	113.6	659.3	4902.5	28323.4
Samkwang(2)	58.6	17.9	23.9	376.1	239.5
Samkwang(3)	452.4	17.7	32.6	154.1	196.2
Samkwang(1)	4.5	91.0	96.2	1854.2	1541.5
Sannae(2)	7.4	2.2	22.0	129.5	56.9
Deokchon	49.1	90.0	437.8	8156.4	12776.6
Sannae(1)	8.8	2.0	20.8	70.7	81.8
Yeosu	37.5	12.0	20.5	33.1	31.9
Dogsung	23.8	13.0	34.7	531.8	41.0
Yaro	26.6	249.6	4466.8	43986.8	44192.5
Taechang	15.3	0.5	16.3	62.6	32.3
Baekweol	27.2	24.5	1801.2	22952.6	5083.2
Keumkye	674.0	0.3	16.4	39.8	17.8
Mummyung	515.4	1.7	21.7	588.0	509.5
Daehung	806.9	0.6	12.8	5928.8	42.8
Shinrim	1340.7	749.4	787.6	27478.9	2573.5
Gakhi	884.4	16.6	66.0	286.7	112.5
Ujin	196.6	630.4	1611.6	60667.4	4575.0
Daeyang	4492.5	348.4	245.0	1659.8	667.0
Ilweol	188.4	68.3	16288.1	57924.2	23425.3
Jangja	206.1	3.8	526.2	32707.9	4748.8

것으로 나타났다. 이들 스키른 형태의 광산들은 paste pH가 매우 높고 광물학적으로도 탄산염광물의 함량이 높은 것으로 나타났다. 한편, 열수교대광상의 유형에 속하는 장군광산에서 채취한 광물찌꺼기에서는 납 함량이 3,600-4,900 ppm인 것과 비교하여 아연과 카드뮴의 함량이 매우 높았으며 각각 28,300-39,800 ppm 및 113.6-176.3 ppm 이었다. 비소함량도 약 250 ppm으로 유의할 만한 농도를 보이고 있었다. 아연과 카드뮴의 함량이 높은 것은 장군광산 개발 당시 납 위주로 회수하고 아연은 회수하지 않았던 선광방법에 따른 결과이다. 그러나 장군광산의 광물찌꺼기의 paste pH는 7.1-7.8이었으나, 황철석과 자류철석 등 황화광물의 함량이 비교적 높아 앞으로 환경오염문제가 발생할 개연성이 있을 것으로 전망된다. 따라서 장군광산의 광물찌꺼기에 포함된 석아연석에 대한 재처리를 통하여 환경개선을 시도하는 것이 바람직할 것으로 생각된다 (Table 6).

paste pH가 높은 열수충진형 광상(pH≥7)인 삼광광산은 시료채취 장소에 따라 미량원소 함량의 변화를 보이고 있으나, 삼광(1)을 제외하고는 낮은 중금속 함량을 나타내고 있다. 삼광(1)은 납, 아연, 카드뮴의 함량은 높게 나타나고 있으나, 비소의 함량은 매우 적게 나타난다. 한편 삼광광산의 다른 두 지점의 광물찌꺼기는 전체적으로 미량원소의 함량은 낮으나, 비소의 함량은 높게 나타나고 있다. 특히 황철석이 발견된 삼광광산에서는 비교적 높은 비소 함량(452 ppm)이 검출된다. 산내광산에서 채취한 광물찌꺼기에는 함량이 높은 중금속 원소는 없으며, paste pH도 알칼리성을 나타내므로 환경오염문제가 발생할 가능성이 낮은 광산으로 보인다. 그러나 덕촌광산에서 채취한 광물찌꺼기에는 아연과 납 함량이 각각 12,700 ppm 및 8,100 ppm으로 높은 함량을 보이고 있으나 탄산염광물의 함량이 전체 구성광물 중 5.1%로 높아 pH를 중화시키는 능력이 높을 것으로 생각된다. 본 그룹에 속하는 광산은 중금속 함량이 비교적 낮거나 혹은 높다고 할지라도 pH를 중화할 수 있는 탄산염광물의 함량이 높아 현재로서는 광물찌꺼기에 의한 환경오염문제 발생의 우려가 크지 않을 것으로 생각되나, 탄산염광물이 완전히 소진될 경우, 미래에 환경오염문제가 발생할 것으로 평가되는 그룹으로 구분된다(Table 6).

paste pH가 7-4 사이인 열수충진광상 형태의 광산 중에서 여수광산과 태창광산에서 채취한 광물찌꺼기에서는 낮은 미량원소 함량을 보이고 있으나, 야로광산에서 채취한 광물찌꺼기에는 납 44,000 ppm, 아연 44,000 ppm, 구리 4,400 ppm 및 카드뮴 249.6 ppm이 함유되어 있으며, 이러한 결과는 광물분석 결과와도 일치한다(Table 6). 더욱이 이 광산의 광물찌꺼기에 황철석이 약 6.7%가 함유되어 있어 산화작용이 심화될 경우 환경오염문제가 우려된다. 백월광산의 경우에서도 납 22,900 ppm, 구리 1,800 ppm 등으로 높은 함량을 보이고 있으며, 탄산염광물이 산출되지 않으므로 환경오염문제가 발생할 개연성이 있는 광산이다. 일반적으로 일부 중금속 함량이 상대적으로 낮아 환경오염문제가 없을 것으로 예측되는 광산을 제외하면, 중금속 함량도 높고 pH를 완충할 수 있는 탄산염광물 함량도 미약하거나 혹은 검출되지 않는 특징이 관찰되어, 환경오염문제가 발생할 개연성이 높은 그룹으로 구분할 수 있다.

paste pH 값이 4 미만인 광산은 대부분 높은 중금속 함량을 보이고 있으며, paste pH도 낮거나 강산성의 특성이 관찰되나, 이를 중화할 수 있는 탄산염광물

이 검출되지 않으므로 현재에도 중금속 오염문제가 발생할 가능성이 높거나 발생하고 있는 광산 그룹으로 구분된다. 특히 일월광산(납 57,900 ppm, 아연 23,400 ppm, 구리 16,300 ppm)과 유진광산(납 60,700 ppm, 구리 1,600 ppm, 카드뮴 630 ppm)에서 중금속의 함량이 매우 높은 것으로 나타났으며, 이외 장자광산의 광물찌꺼기에서는 납 32,700 ppm, 신흘광산에서도 납 27,500 ppm, 카드뮴 749.4 ppm, 비소 1,300 ppm 등이 검출되었다. 이는 XRD 분석결과에서 황철석뿐만 아니라, 보이단타이트, 섬아연석, 앵글레사이트, 자로사이트가 발견된 것과 잘 일치하고 있다. 이외에도 대양광산에서 비소 4,500 ppm, 카드뮴 348.4 ppm, 대홍광산에서 납 5,900 ppm, 비소 800 ppm, 각희광산에서 비소 880 ppm, 금계광산에서 비소 670 ppm 및 문명광산에서 비소 510 ppm 등 이 그룹에 속하는 열수충진광상 유형의 금속광산 광물찌꺼기에서는 비소와 납 등의 함량이 높은 것으로 나타났다(Table 6).

3.7. 입도별 총함량 분석

광물찌꺼기의 입도에 따른 미량원소 함량의 차이를 알아보기 위해, 스킨광상 유형인 상동광산, 열수교대광상인 장군광산, 열수충진광상 중 pH \geq 7.0 그룹인 삼광광산, pH $<$ 4.0 그룹인 각희광산, 대양광산 및 장자광산 등 6개 광산에서 채취한 광물찌꺼기를 대상으로 입도분리 후, 각 입도 별로 총함량(양수법)을 분석하였다.

입도는 2 mm-200 μ m(coarse sand), 200-20 μ m(fine sand), 20 μ m 이하(silt+clay)로 구분하였으며, 총함량 분석 결과는 Table 7에 나타내었다.

스카른광상 유형인 상동 광산에서는 모든 원소가 입도에 상관없이 유사한 미량원소의 총함량을 보이고 있다. 열수교대광상 유형인 장군광산의 광물찌꺼기에서의 중금속 함량은 2 mm-200 μ m(coarse sand)와 200-20 μ m(fine sand) 입도에서의 함량이 높았다. 대양 광산에서 Cu 및 Pb가 20 μ m 이하(silt+clay)의 입도에서 2-3배 정도의 높은 함량을 보이며, 삼광 광산에서 Cd 및 Zn이 20 μ m 이하(silt+clay)의 입도에서 다소 높은 함량을 보이는 것을 제외하고는 입도와 총함량과의 뚜렷한 상관성을 발견할 수 없었다. 각희 광산에서는 Cu, Pb 및 Zn의 함량이 200-20 μ m(fine sand)의 입도에서 3-4배 정도 부화되어 있다. 장자광산의 광물찌꺼기에서도 2 mm-200 μ m(coarse sand)와 200-20 μ m(fine sand) 입도에서의 중금속 함량이 높았다. 비소의 함량은 모든 광산에서 입도와 관계없이 일정한 함량을 보이고 있었다.

3.8. 광물찌꺼기의 가용성 또는 용출 농도(토양오염 공정시험) 분석 결과

본 연구는 2010년부터 시행되는 토양오염공정시험법 이전의 토양오염공정시험법에 의해 수행되었다. 가용성 또는 용출농도에 따른 용출실험 결과, 광상의 유형과

Table 7. Total concentrations extracted by aqua regia of tailings classified by grain size (mg/kg)

Type	Mine	grain size	As	Cd	Cu	Pb	Zn
Skarn	Sangdong	200 μ m-20 μ m	63.6	0.4	28.7	4.6	168.9
		under 20 μ m	59.8	0.3	32.8	3.9	158.2
Replacement	Janggun(2)	2 mm-200 μ m	226.3	169.8	594.8	2944.9	38974.4
		200 μ m-20 μ m under 20 μ m	239.9 238.0	127.4 61.7	536.6 651.7	3473.5 10023.4	31799.7 11868.3
Hydrothermal (pH \geq 7.0)	Samkwang	2 mm-200 μ m	141.0	1.4	4.0	31.9	310.1
		200 μ m-20 μ m	184.8	2.1	7.8	76.3	458.5
		under 20 μ m	219.3	3.1	10.1	69.2	588.6
Hydrothermal (pH $<$ 4.0)	Gakhi	2 mm-200 μ m	525.2	0.0	17.1	59.7	101.3
		200 μ m-20 μ m	562.4	0.0	38.1	172.5	404.4
		under 20 μ m	464.7	0.0	13.6	48.4	116.4
Hydrothermal (pH $<$ 4.0)	Daeheung	2 mm-200 μ m	604.0	0.0	62.8	225.3	642.9
		200 μ m-20 μ m	595.6	0.0	62.0	344.2	714.5
		under 20 μ m	573.2	0.2	121.8	904.4	820.4
Hydrothermal (pH $<$ 4.0)	Jangja	2 mm-200 μ m	221.6	4.1	527.3	33392.4	4613.3
		200 μ m-20 μ m	224.2	2.9	622.6	33626.9	5224.0
		under 20 μ m	193.9	4.6	453.5	18938.0	2907.0

용출결과와의 관련성이 없는 것으로 파악되었으며, 각 광산에서 산출되는 광종과 그 양에 따라 용출함량의 차이가 발생하였음을 알 수 있었다(Table 8). 토양오염 처리 여부를 판단하기 위해 수행하는 토양오염공정시험법에 따른 용출실험에서 가장 문제될 수 있는 원소는 비소와 아연이었으며(Table 8), 비소는 특히 열수충진광상 유형 중 paste pH<4.0 그룹에 해당되는 대부분의 광산에서 대책기준을 초과하는 것으로 나타났으며, 아연은 정마그마광상 유형을 제외한 스키르광상, 열수교대광상 및 열수충진광상 등에 속하는 일부 광산에서 골고루 대책기준을 초과하는 것으로 나타났다. 이러한 것은 비소가 열수충진광상에서 금은광물과 밀접하게 산출되는 지구화학적 특성이 있기 때문이고, 아연의 경우 광물학적 특성상 섬아연석이 일반적으로 모든 광상유형에서 다량으로 산출되고, 또한 왕수법으로 분석하기 때문에 많은 양이 용출된 것으로 판단된다. 이외 납은 열수충진광상 유형에서 대책기준을 초과하는 정도의 함량이 용출되는 것으로 나타났다(Table 8). 정마그마 광상 유형인 양양광산 광물찌꺼기의 미량

원소 중 용출함량이 높은 중금속 원소는 없었으며, 이러한 형태의 광상유형이 국내에서 중금속에 의한 환경오염분제를 발생하지 않는 것으로 파악된다(Table 8).

스카른 및 열수교대광상의 경우, 상동광산에서 채취한 광물찌꺼기는 각 원소의 용출함량이 적어 대책기준을 초과하지 않은 반면에, 연화광산의 광물찌꺼기에서는 아연, 장군광산 광물찌꺼기에서는 아연과 비소 등이 대책기준을 초과하였다(Table 8). 이들 스카른 혹은 열수교대광상 형태의 광산들은 paste pH가 매우 높고 탄산염광물의 함량이 높아 구리, 카드뮴 및 납의 용출함량이 대책기준을 초과하지 않은 것으로 나타났다. 그러나 왕수법으로 분석한 것에 기인하여 아연은 대책기준을 모두 초과한 것으로 생각된다(Table 8).

열수충진광상은 세부적으로 paste pH \geq 7, 4 \leq paste pH<7 및 paste pH<4로 세 그룹으로 구분하였다. 토양오염공정시험법의 용출실험을 실시하여 검출된 용출함량을 대책기준과 비교한 결과, 각 그룹별로 대책기준을 초과한 원소와 초과한 함량정도가 일정하지 않았으며 어떤 규칙성도 관찰되지 않았다. 따라서 세 그룹의 구분도 뚜렷하지 않았다. 이러한 결과는 토양오염공정시험법으로 용출된 각 중금속의 함량과 대책기준과의 비교 방법으로는 열수충진광상의 세 그룹을 구분할 수 없다는 것을 의미한다. 그룹에 상관없이 총함량이 낮은 광산들(산내, 여수, 태창 등)을 제외하면, paste pH<4 그룹에 속하는 광산들은 비소와 아연 용출함량이 대책기준을 초과한 것으로 나타난 반면, 4 \leq paste pH<7 그룹에 속하는 광산들은 카드뮴을 제외한 모든 중금속 원소들이 대책기준을 초과하였다.

3.9. 광물찌꺼기의 paste pH 및 가용성 또는 용출 농도에 의한 오염지수 간 관계

토양오염공정시험법에 의한 용출실험은 광물찌꺼기로부터 용출된 중금속 함량이 규제농도를 초과하는지 여부를 파악하고, 용출 결과가 광상유형 및 광종에 따라 차이가 있는지를 확인하기 위하여 수행되었다. 또한 이 결과는 광상유형 및 광종에 따른 처리 순위를 결정하기 위하여 적용되었다. 토양오염공정시험법에 의해 분석한 As, Cd, Cu, Pb, Zn 등 중금속 함량을 토양오염공정시험법 변경전 토양오염시행규칙에 고시된 토양오염 대책기준의 “나 지역” 함량(즉, 비소 50 ppm, 카드뮴 30 ppm, 구리 500 ppm, 납 1,000 ppm, 아연, 2,000 ppm)으로 각각 나눈 각 원소의 비(ratios)들을 합하여 오염지수로 이용하였다. 이들 오염지수를 각 광상유형별, paste pH 및 광물조성(황화광물 및 탄

Table 8. Leaching contents of trace elements from tailings by Korean standard method for soils (mg/kg)

Mine	As	Cd	Cu	Pb	Zn
Yangyang	0.9	0.1	0.0	1.3	198.4
Sangdong	0.9	0.1	0.0	1.3	117.0
Yeonhwa(2)	8.0	0.8	0.1	1.7	6792.0
Janggum(2)	159.1	1.2	0.1	33.4	39828.5
Janggum(1)	180.2	1.8	0.1	52.3	28323.4
Samkwang(2)	38.8	1.2	0.9	22.5	239.5
Samkwang(3)	95.8	0.0	0.8	19.4	196.2
Samkwang(1)	110.6	2.4	1.0	22.9	1541.5
Deokchon	9.2	31.9	237.3	4535.5	12776.6
Sannae(1)	1.0	0.2	4.6	2.2	81.8
Yeosu	9.2	0.0	3.0	21.6	31.9
Dogsung	13.9	0.0	24.5	1466.6	41.0
Yaro	5.3	15.5	2450.3	5281.6	44192.5
Taechang	0.0	0.0	2.6	45.1	32.3
Backweol	1.3	2.2	100.9	2026.0	5083.2
Keumkye	9.7	0.0	2.6	0.7	17.8
Munmyung	237.3	0.3	2.3	7.5	509.5
Daeheung	460.3	0.0	10.9	62.9	42.8
Shinrim	442.3	0.0	1.7	43.1	2573.5
Gakhi	193.4	0.0	6.4	28.9	112.5
Ujin	8.2	4.2	24.9	160.8	4575.0
Daeyang	1269.8	0.0	1.1	31.2	667.0
Ilweol	160.5	18.0	325.9	97.4	23425.3
Jangja	168.3	1.1	18.8	56.8	4748.8

Table 9. Pollution Index (P.I.) of trace elements from tailings by Korean standard method for soils

Mine	As	Cd	Cu	Pb	Zn
Yangyang	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1
Sangdong	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1
Yeonhwa(2)	0.2	0.0	0.0	0.0	3.4
Janggun(2)	3.2	0.0	0.0	0.0	19.9
Janggun(1)	3.6	0.1	0.0	0.1	14.2
Samkwang(2)	0.8	0.0	0.0	0.0	0.1
Samkwang(3)	1.9	0.0	0.0	0.0	0.1
Samkwang(1)	2.2	0.1	0.0	0.0	0.8
Deokchon	0.2	1.1	0.5	4.5	6.4
Sannaec(1)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Yeosu	0.2	0.0	0.0	0.0	0.0
Dogsung	0.3	0.0	0.0	1.5	0.0
Yaro	0.1	0.5	4.9	5.3	22.1
Taechang	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Baekweol	0.0	0.1	0.2	2.0	2.5
Keumkye	0.2	0.0	0.0	0.0	0.0
Munmyung	4.7	0.0	0.0	0.0	0.3
Dacheung	9.2	0.0	0.0	0.1	0.0
Shinrim	8.8	0.0	0.0	0.0	1.3
Gakhi	3.9	0.0	0.0	0.0	0.1
Ujin	0.2	0.1	0.0	0.2	2.3
Daeyang	25.4	0.0	0.0	0.0	0.3
Ilweol	3.2	0.6	0.7	0.1	11.7
Jangja	3.4	0.0	0.0	0.1	2.4

산염광물의 존재유무)과 연관시켜, 간단하고 신속한 방법으로 환경에 미치는 광산의 영향정도를 평가하고자 하였다(Table 9).

토양오염공정시험법의 대책기준과 비교한 오염지수 값을 검토한 결과, 오염지수 값이 가장 큰 원소는 아연과 비소였다. 아연은 $4 \leq \text{paste pH} < 7$ 그룹에 속하는 야로광산과 열수교대광산에 속하는 장군광산이 각각 22.1과 14.2-19.9로 매우 높은 값을 보였으며, 비소는 $\text{paste pH} < 4$ 그룹에 속하는 광산 중 대양광산에서 25.4로 가장 높은 것으로 나타났다. 비소는 특히 열수충진광상 유형 중 $\text{paste pH} < 4.0$ 그룹에 해당되는 대부분의 광산에서 대책기준을 초과하여 오염지수 값이 1 이상 되는 것으로 나타났으며, 아연은 정마그마광상 유형을 제외한 스키르탄광상, 열수교대광상 및 열수충진광상 등에 속하는 일부 광산에서 골고루 오염지수 값이 높은 것으로 나타났다. 그러나 각 원소의 오염지수 값으로 광상유형의 특성을 규명하고 유형을 구분할 수 없었다.

4. 결 론

유/폐금속광산 광물찌꺼기의 기본 특성 규명을 위하여, 광물찌꺼기의 물리학적, 광물학적 및 화학적 특성을 분석하였다. 광물찌꺼기의 비중은 2.61-4.31(평균 3.04)의 범위를 보이며, 입도분포는 모래와 실트의 함량이 우세한 것으로 나타났다. 광물찌꺼기의 paste pH 는 2.1-9.5의 분포를 보인다. 정마그마광상, 스키르탄광상 및 열수교대광상의 경우에는 paste pH 가 7.1-9.2를 보이고 열수맥상광상 유형은 paste pH 에 따라 $\text{paste pH} > 7.0$, $4.0 < \text{paste pH} < 7.0$, $\text{paste pH} < 4.0$ 으로 세분화였다. 정마그마 광상, 스키르탄 및 열수교대 광상과 paste pH 가 7.0 이상의 열수맥상광상의 광물찌꺼기에서는 다량의 탄산염광물을 포함하고 있으나 paste pH 7.0-4.0인 광산은 탄산염광물이 산출되지 않았고, 황화광물이 검출되었으며, paste pH 4.0 미만의 광물찌꺼기는 2차산화광물이 산출된다. 이러한 결과는 pH 4.0 미만의 광물찌꺼기에 포함된 황화광물은 산화작용이 상당히 진행된 것임을 시사한다.

광물찌꺼기의 총함량을 분석한 결과, 정마그마형 양광산과 스키르탄형 상동광산의 광물찌꺼기는 중금속원소의 총함량이 매우 낮았다. 열수교대광상 유형에 속하는 장군광산에서 채취한 광물찌꺼기는 아연과 카드뮴의 함량이 매우 높고, 황철석과 자류질석의 함량이 비교적 높으므로 환경오염문제가 발생할 개연성이 있다. 열수맥상광상형 중에서 paste pH 가 7.0 이상인 광산은 중금속 함량이 높다고 할지라도 pH 를 중화할 수 있는 탄산염광물의 함량이 높아 현재로서는 광물찌꺼기에 의한 환경오염문제 발생에 대한 우려가 크지 않을 것으로 판단된다. paste pH 가 4-7 사이인 열수맥상광산은 대부분 중금속 함량도 높고 pH 를 완충할 수 있는 탄산염광물 함량도 검출되지 않으므로 환경오염문제가 발생할 개연성이 높은 그룹이며, paste pH 값이 4 미만인 광산은 현재에도 중금속 오염문제가 발생할 가능성이 높거나 발생하고 있는 광산 그룹으로 구분된다. 변경전 토양오염공정시험법에 따른 용출실험 결과, 용출실험에서 가장 문제될 수 있는 원소는 비소와 아연이었으며, 비소는 특히 열수맥상광상 유형 중 $\text{paste pH} < 4.0$ 그룹에 해당되는 대부분의 광산에서 대책기준을 초과하는 것으로 나타났다. 아연은 정마그마광상 유형을 제외한 스키르탄광상, 열수교대광상 및 열수충진 광상 등에 속하는 일부 광산에서 대책기준을 초과하는 것으로 나타났다. 낮은 열수맥상광상 유형에

서 대책기준을 초과하는 정도의 함량이 용출되는 것으로 나타났다.

사 사

본 논문은 한국광해관리공단 연구용역사업 “광물찌꺼기 특성평가 방법의 표준화(기술총서 2008-35)”의 지원을 받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

Choi, S.G., Park, S.J., Lee, P.K. and Kim, C.S. (2004) An Overview of Geoenvironmental Implications of Mineral Deposits in Korea. *Econ. Environ. Geol.*, v.37, p.1-19.

International Organization for Standardization (1995) *Soil quality - Extraction of trace elements soluble in aqua regia*.

Lee, P.K., Kang, M.J., Choi, S.H. and Touray, J-C. (2005) Sulfide oxidation and natural attenuation of arsenic and heavy metals in the waste rock impoundment of the abandoned Seobo tungsten mine, Korea. *Applied Geochemistry*, v.20, p.1687-1703.

Lee, P.K., Youm, S.J., Jung, M.C., Park, C.K., Park, J.H., Park, J.H., Lee, S.H., Ko, J.I. and Lee, J.S. (2008) Standardization of evaluation methods for tailing characteristics. *Mine Reclamation Corp.* 333p.

Jung, M.C. (2008) Contamination by Cd, Cu, Pb, and Zn in mine wastes from abandoned metal mines classified as mineralization types in Korea, *Environmental Geochemistry and Health*, v.30, n.2, p.205-217.

2010년 5월 19일 원고접수, 2010년 6월 22일 게재승인