옥살산 기반의 비소오염토양 정화 연구

이명은 · 전은기 · 김종국 · 백기태*

전북대학교 환경공학과 및 전북대학교 토양환경연구센터

Oxalic Acid-based Remediation of Arsenic-contaminated Soil

Myeong Eun Lee · Eun-Ki Jeon · Jong-Gook Kim · Kitae Baek*

Department of Environmental Engineering and Soil Environment Research Center, Chonbuk National University

ABSTRACT

Arsenic (As) usually is bound to amorphous iron oxides in the soils, and it can be removed via dissolution of iron oxides. Inorganic acid and chelating agent are widely used to extract As in the soil washing. However, the overall performance is highly dependent on the state of As fractionation. In this study, oxalic acid and inorganic acids (HCl, H_2SO_4 , and H_3PO_4) were applied to enhance the dissolution of iron oxides for remediation of As-contaminated soils. Oxalic acid was most effective to extract As from soils and removal of As was two times greater than other inorganic acids. Additionally, 75% of As bound to amorphous iron oxides was removed by 0.2 M oxalic acid. Arsenic removal by oxalic acid was directly proportional to the sum of labile fractions of As instead of the total concentration of As. Therefore, the oxalic acid could extract most As bound to amorphous iron oxides.

Key words: Chelating, Dissolution, Iron oxides, Fractionation

1. 서 론

비소는 발암독성 및 만성독성을 지닌 중금속으로써 토양 속에 존재할 때 다른 중금속에 비해 식물 및 지하수로 전이가 활발히 일어나 인체에 해로운 영향을 미칠 수있는 것으로 알려져 있다(Mandal and Suzuki, 2002; Bissen and Frimmel, 2003; Ma et al., 2014; Ryu et al., 2017). 비소의 이동성을 제어하기 위해서는, 토양 속에서 비소를 추출하거나 생물이용성을 줄이기 위해 비소를 안정화하는 방법들이 적용될 수 있다(Dermont et al., 2008; Kumpiene et al., 2008; Ali et al., 2013; Yoon et al., 2017). 현재, 우리나라의 토양환경보전법에서는 토양에 존재하는 중금속의 전체농도를 기반으로 규제하고 있으며, 토양환경보전법상 우려기준 이하로 중금속의 농도를 낮추기 위해서는 안정화나 고형화 방법보다는 토양에서 중금속을 추출하는 방법을 이용할 수 밖에 없다 (Shin et al., 2015). 토양 속 비소를 추출하는 방법으로는

토양세척, 전기동력학적 정화기술, 식물정화 등이 적용되고 있다(Dermont et al., 2008; Jeon et al., 2015). 이러한 방법 중 토양세척은 중금속을 토양으로부터 영구적으로 추출해낼 수 있고, 단기간에 정화가 가능하기 때문에 국내에서 중금속 오염토양의 정화에 가장 많이 적용되고 있다(Yoo et al., 2016a; Yoo et al., 2017). 토양세척에서 비소의 추출효율은 토양 속 비소존재형태 및 비소동도 그리고 세척제의 종류에 따라 크게 영향을 받는다(Dermont et al., 2008; Lee et al., 2016). 따라서 토양속 존재하는 비소의 화학적 특성에 따라 토양세척을 적용시 비소추출의 효율이 일관되지 않고 경우에 따라 차이가많다. 따라서, 효율적인 토양세척을 위해서는 토양 내에서비소의 존재형태를 살펴보고, 이를 기반으로 최적의 조건을 적용할 필요성이 있다.

비소는 철 산화물과 친화도가 높은 것으로 알려져 있으며(Pierce and Moore, 1982; Dixit and Hering, 2003), 토양에서 대부분의 비소는 철 산화물과 결합된 형태로 존

*Corresponding author: kbaek@jbnu.ac.kr

Received: 2018. 1. 10 Reviewed: 2018. 1. 21 Accepted: 2018. 2. 20

Discussion until: 2018. 4. 30

재하는 것으로 알려져 있다(Mandal and Suzuki, 2002; Ryu et al., 2017). 철 산화물은 비결정질과 결정질로 나눌 수 있으며, 철 산화물과 결합된 비소를 추출하는 방법 중 하나는 철 산화물을 용해시키는 기작을 통해 토양에서 추출하는 것이다. 철 산화물을 용해시키는 기작은 크게 3가지 종류로 나눌 수 있다. pH를 낮추어 철을 용해하는 방법과, 철 산화물과 킬레이트 결합을 통해 철을 용해하는 방법, 그리고 철을 환원시켜 용해하는 방법이다. 비결정질 철 산화물의 경우, 위의 3가지 기작을 통해 추출될수 있지만, 결정질 철의 경우 환원기작을 통해 추출될수 있지만, 결정질 철의 경우 환원기작을 통해 추출이 가능하며 강력한 환원력이 요구된다(Schwertmann, 1991; RM Cornell, 2003; Ryu et al., 2017).

토양 속 비소를 추출해내기 위해서 인산, 염산, 그리고 황산과 같은 무기산이나 EDTA(Ethylenediaminetetraacetic acid)와 같은 킬레이트제가 세척제로써 주로 적용되고 있 다(Dermont et al., 2008). 무기산의 경우 H⁺를 증가시켜 토양 속 철 산화물을 용해시킬 수 있지만 토양구조를 파 괴시킬 수 있다(Bronick and Lal, 2005; Yoo et al., 2016b; Yoo et al., 2017). 또한 강산으로 인하여 토양 표면전하가 양으로 하전 되어서 토양 속에서 추출된 비소 중 음이온형태로 존재하는 비소가 재 흡착 될 우려가 있 다. EDTA의 경우 토양 속 중금속추출에 매우 효과적인 것으로 알려져 있지만, 음이온 형태로 존재하는 중금속에 는 덜 효과적인 것으로 알려져 있다(Papassiopi et al., 1999). 또한 EDTA는 독성을 지닌 물질로써 토양에 적용 시 중금속이 추출되더라도 적용 후 독성이 잔존하여 토양 에 영향을 미칠 수 있다. 반면 옥살산의 경우 EDTA에 비해 독성이 낮으며(Wasay et al., 1998) 킬레이트 결합 을 통해 토양 속에 존재하는 철 산화물을 추출해 냄으로 써(Panias et al., 1996; Sparks, 2003; Lee et al., 2007; Lee et al., 2016) 무기산들에 비해 비소추출에 더 효과적인 것으로 알려져 있다(Lee et al., 2016). 또한 옥살산은 식물이나 채소 등을 통해 자연적으로 발생할 수 있고, 생물학적 분해가 가능한 물질로 알려져 있어 환경친화적이다(Jones, 1998; Kim and Baek, 2015). 하지만 옥살산을 토앙에 적용하였을 때 토양의 물리·화학적 특성에 의해 똑같은 비소농도의 토앙이더라도 비소추출효율이 다를수 있다.

본 연구에서는, 다양한 비소농도와 존재형태를 지닌 토양을 대상으로 옥살산을 적용하였을 때 비소추출효율에 토양 속 비소의 화학적 특성이 미치는 영향을 밝히고자하였다. 또한, 킬레이트제인 옥살산과 무기산들을 비소오염토양에 적용하여, 세척제에 따른 토양 속 비소추출효율과, 토양 속 비소농도 및 존재형태변화 변화를 확인하고자하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 토양 특성

본 실험에 사용된 토양(S1~S10)은 비소로 주로 오염된 토양으로써 충남 서천 장항제련소 부지 주변에서 채취하였다. 토양 시료들은 채취하여 건조 후 균질성을 고려하여 체질하였고, 0.075 mm 이하의 크기만을 이용하였다. 토양 속 비소 존재형태는 Wenzel et al.(2001)이 제안한다단계연속추출법을 통해 분석하였다(Table 3). 10가지의토양은 다양한 비소존재형태를 보였으며, 쉽게 용출될 수있는 비소(F1+F2+F3)의 양은 47-78% 정도였고 안정한비소(F3+F4)의 양은 22-53% 정도로 나타났다(Table 1). 총 비소, 철, 알루미늄의 함량을 파악하기 위하여 토양오염공정시험기준에 따라 추출하였으며, 추출액에서 원소들

Table 1. Distribution of As fractions in soil

Sample	As concentrations (mg/kg)	Fraction of As (%)				
		F1	F2	F3	F4	F5
S1	139.5	1	14	37	34	14
S2	77.7	0	10	67	5	18
S3	104.7	1	11	35	25	28
S4	281.7	1	11	38	22	27
S5	57.2	1	9	50	23	17
S 6	33.9	6	15	31	19	29
S7	165.6	1	11	49	21	18
S8	67	0	9	67	14	9
S9	85.9	1	8	64	14	15
S10	80	0	9	67	14	9

Table 2. Chemical properties of soil

Sample	CEC (meq/100 g)	EC (ds/m)	pН	Al (mg/kg)	Fe (mg/kg)
S1	40.3	0.3	4.8	15803.4	22087
S2	34.1	1.0	4.6	11079.5	19782.2
S3	36.5	0.6	4.8	17935.4	31591.8
S4	34.2	0.8	4.8	19885.8	35212.1
S 5	24.5	0.5	5.5	8104.9	20855.8
S6	12.2	0.3	6.9	8805.2	26400
S 7	13.7	0.2	6.2	9826.7	29465.3
S 8	18.0	0.4	5.3	15043.3	27084.6
S 9	14.0	0.4	5.2	21942.1	38951.2
S10	19.5	0.4	5.1	16172.6	25906.4

Table 3. Detailed procedure for sequential extraction of arsenic

	Steps	Experimental conditions	Extractant	S/L ratio ^{a)}
F1.	Non-specifically sorbed	4 h shaking	(NH ₄) ₂ SO ₄	1:25
F2.	Specifically sorbed	16 h shaking	$(NH_2)H_2PO_4$	1:25
F3.	Amorphous hydrous oxide of Fe and Al bound	4 h shaking in the dark	NH ₄ -oxalate buffer	1:25
F4.	Crystalline hydrous oxide of Fe and Al bound	0.5 h in a water basin	NH ₄ -oxalate buffer + Ascorbic acid	1:25
F5.	Residual	80°C	Aqua regia	1:50

a) S/L ratio : solid/liquid ratio

의 농도는 유도결합플라즈마발광분광기(ICP-OES, 720-ES, Agilent technologies, USA)를 통해 분석되었다. 토양 속비소농도는 33.9-281.7mg/kg로 나타났다(Table 1). 토양의물리·화학적 특성을 평가하기 위해서 CEC, EC, pH분석이 토양환경분석법을 통해 이루어졌다. EC, pH분석은 EC meter(ISTEK, KOREA)와 pH meter(ISTEK, KOREA)를 통해 이루어졌으며 CEC값은 유도결합플라즈마발광분광기(ICP-OES, 720-ES, Agilent technologies, USA)를통해 분석되었다. 토양의 EC, pH, CEC, Al, Fe의 값은 Table 2에 정리하였다.

2.2. 토양세척 효율 평가

토양세척에 사용된 세척제는 H₂C₂O₄·2H₂O(Oxalic acid dehydrate, SAMCHUN, KOREA), HCl(Hydrochloric acid, OCI, KOREA), H₂SO₄(Sulfuric acid, SAMCHUN, KOREA), 그리고 H₃PO₄(Phosphoric acid, JUNSEI, JAPAN)로 정 제과정 없이 사용하였다. 옥살산과 무기산(염산, 인산, 황산)을 비교하기 위한 실험은 0.01 M에서 0.2 M의 다양한 세척제 농도가 사용되었으며 90분간 세척을 진행하였다. 또한 옥살산이 토양 속 비결정질 철과 강력한 킬레이트 결합을 통해 효과적인 것을 고려하여 불안정한 부분의 비소의 양이 총 비소의 77%로 가장 많은 토양 S2가 사용되었다(Table 1). 옥살산을 토양에 적용하였을 때 적절한

반응시간을 확인하기 위해서 0.2 M의 옥살산을 10, 30, 60, 90, 120, 150, 180분의 반응시간동안 토양 S2에 적용하였다. 옥살산을 세척제로 사용할 때 토양 속 비소존 재형태 및 비소농도에 따른 세척효율을 평가하기 위해서 0.2 M 옥살산이 10가지의 토양에 적용되었다. 모든 실험은 3 g의 토양흙과 9 mL의 세척제를 사용하여 1:3의 고액비의 조건에서 오버헤드 교반기(Overhead shaker, FINEPCR, KOREA)로 40 rpm에서 교반을 통해 이루어졌다. 반응 후 현탁액은 6000 rpm에서 10분동안 원심분리후 0.45 μ m 실린지 필터를 통하여 고액분리 해주었다. 고액분리 후 유도결합플라즈마발광분광기를 통해 용액 속비소를 분석하였다.

3. 실험결과 및 토의

3.1. 옥살산 및 무기산의 비소추출효율 비교

토양에서 옥살산과 무기산을 이용하여 비소의 추출효율을 비교한 결과, 모두 세척제의 농도가 증가함에 따라 토양으로부터의 비소추출효율이 증가하였으며, 옥살산이 무기산에 비하여 비소의 추출효율이 높았다(Fig. 1) 세척제의 농도에 따라 비소의 추출효율(%)을 살펴보면, 염산의경우 0%에서 1%로, 황산의 경우 0%에서 21%로, 인산의경우 1%에서 18%로 증가하였고 옥살산의 경우 0%에

J. Soil Groundwater Environ. Vol. 23(1), p. 85~91, 2018

서 57%로 증가하였다(Fig. 1). 토양에 H⁺를 다량 공급하여 강력한 산성조건을 형성하여 토양 속 철 산화물을 용

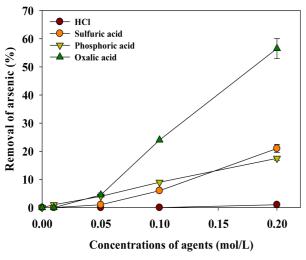


Fig. 1. Arsenic removal efficiencies by washing agents. Experimental conditions: Soil S2, S/L ratio = 1:3, room temperature and 90 min.

해시키는 기작이 주를 이루는 무기산을 비소오염토양에 적용한 경우 토양 속 비소추출효율이 효과적이지 않는 것 으로 나타났다. 하지만 무기산의 종류에 따라 비소추출효 율에서는 차이를 보였으며, 황산과 인산을 토양에 적용한 경우 염산을 적용한 경우보다 높은 추출효율을 나타냈다. 무기산을 토양에 적용할 때, H⁺ 공급으로 인하여 토양의 표면이 양으로 하전되며, 추출된 비소 중 음이온형태로 존 재하는 비소가 토양에 재 흡착 하는 현상이 발생할 수 있다. 무기산 중 인산과 황산을 토양에 적용하는 경우 용 액 속의 인산염(Phosphate)와 황산염(Sulfate)이 음이온 형 태의 비소와 경쟁이온으로 작용할 수 있다. 그 결과 인산 과 황산을 적용하였을 때 염산의 경우보다 높은 비소추출 효율을 나타냈다. 토양 속 비결정질 철 산화물과 강력한 킬레이트 결합을 통해 철 산화물을 용해시키는 시작이 주 를 이루는 옥살산의 경우 무기산에 비해 2배이상 높은 비 소추출효율을 나타냈으며 가장 효과적이었다(Fig. 1).

무기산과 옥살산을 적용한 후 토양 속 비소와 토양의

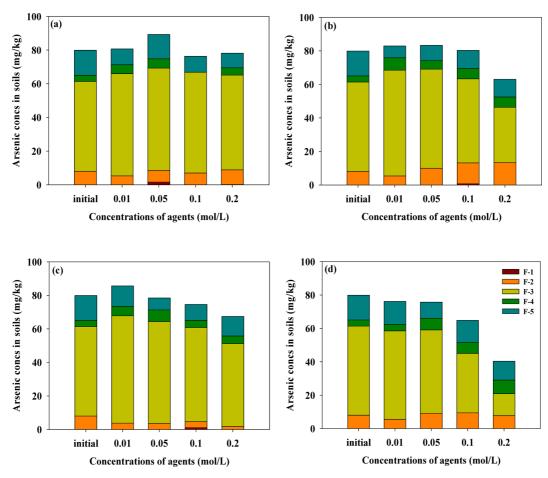


Fig. 2. Fractionation change of arsenic by (a) HCl, (b) H₃PO₄, (c) H₂SO₄, and (d) Oxalic acid in Soil S2. All extract agents were used from 0.01 M to 0.2 M.

J. Soil Groundwater Environ. Vol. 23(1), p. 85~91, 2018

결합형태 변화를 관찰한 결과, 무기산을 사용한 경우 변화가 미비하나 옥살산의 경우 비결정질 철산화물과 결합한 비소 비율의 감소가 두드러졌다(Fig. 2). 또한 옥살산의 농도가 증가함에 따라 더 많은 비결정질 철 산화물과 결합된 비소가 추출되었으며, 0.2M의 옥살산을 적용한 경우 약 75%의 비소가 추출되었다. 하지만 옥살산의 농도가 증가하더라도 결정질 철 산화물과 결합한 비소는 거의추출되지 않았다. 토양 속 비소 추출결과를 통해 볼 때옥살산은 강력한 킬레이트 결합을 통해 비결정질 철과 결합하고 있는 비소 추출에는 효과적이지만 강력한 환원력이 요구되는 결정질 철과 결합하고 있는 비소 추출에는 효과적이지 않은 것으로 나타났다.

3.2. 옥살산 적용시 최적의 반응시간

0.2 M의 옥살산을 비소오염토양에 적용하였을 때 반응 시간에 따라 비소추출효율이 증가하는 것으로 나타났다. 옥살산을 토양에 적용하였을 때 비소가 추출되어지는 반 응은 빠르게 일어났으며 10분의 반응시간에 약 40%의 비소가 추출되었다. 이후 90분의 반응시간까지 비소추출효

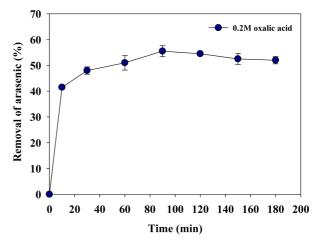


Fig. 3. Arsenic removal efficiencies according to the reaction time. Experimental conditions: Soil S2, S/L ratio = 1:3, room temperature and 10, 30, 60, 90, 120, 150, 180 min.

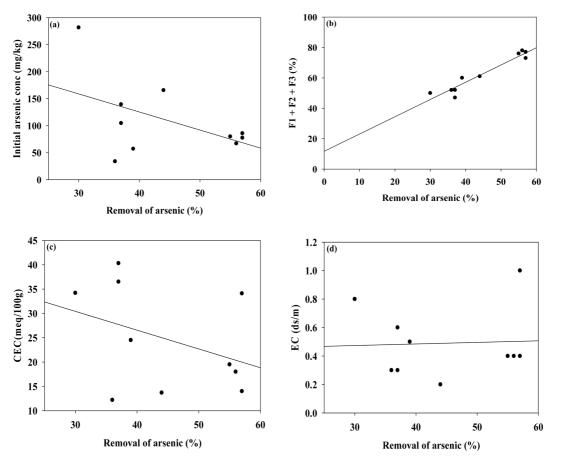


Fig. 4. Relationship (a) between arsenic removal by oxalic acid and arsenic concentrations in soils and (b) between arsenic removal by oxalic acid and labile fractions of arsenic and (c) between arsenic removal by oxalic acid and CEC (d) between arsenic removal by oxalic acid and EC. Ten soils were used at a ratio of 1:3 (soil: solution) for 90 min.

율 꾸준히 증가하여 약 60%의 비소가 추출되는 것으로 나타났으며 90분 이후의 반응시간을 토양에 적용할 경우 반응시간이 증가하더라도 비소추출효율이 일정한 것으로 나타났다(Fig. 3). 따라서 토양 속에 옥살산을 적용하였을 때 최적의 비소추출효율을 나타내는 반응시간은 90분으로 판단된다.

3.3. 옥살산 적용시 토양 속 비소존재형태가 비소추출에 미치는 영향

토양 중 비소존재형태와 추출효율과의 상관관계를 살펴 보았을 때, 옥살산을 이용한 경우 비소의 존재형태와 추 출효율간의 높은 상관성이 있었다(Fig. 4). 옥살산(0.2 M) 을 비소존재형태 및 비소농도가 각기 다른 10가지의 토양 에 적용하였을 경우, 토양 속 비소농도와 비소추출효율은 상관계수의 평균값이 0.230으로 매우 낮은 것으로 나타났 다. 또한 토양 속 CEC와 비소추출효율 그리고 EC와 비 소추출효율의 상관계수의 평균값 역시 각각 0.142, 0.002 로 매우 낮은 것으로 나타났다. 반면 토양 속 비소존재형 태와 비소추출효율은 상관계수의 평균값이 0.922로 높았 고 매우 높은 상관관계를 보였다(Fig. 4). 토양 속 물리· 화학적 특성 특히 비소의 존재형태 중 비결정질 철과 결 합한 비소를 포함한 불안정한 분율이 높을수록 옥살산을 통한 비소 추출효율이 높은 것으로 나타났다. 비소추출 결 과로 미루어 볼 때, 옥살산을 비소오염토양에 적용할 때 비소추출효율은 토양 속 비소의 비소존재형태에 크게 영 향을 받으며 특히 비결정질 철 산화물과 결합한 비소의 양에 의해 비소추출효율은 결정되는 것으로 판단된다. 또 한 옥살산을 통해 안정한 분율(F4+F5)에 해당하는 부분 의 비소 추출은 거의 이루어지지 않는 것으로 나타났다. 이는 토양에 옥살산을 적용할 경우, pH를 낮추어 철을 용해하는 방법과, 철 산화물과 킬레이트 결합을 통해 철 을 용해하는 방법, 그리고 철을 확원시켜 용해하는 방법 3가지를 통해 통해 토양 속 1~3단계에 해당하는 비소추 출이 가능하여 비롯된 것이라 보여지며 특히 강력한 킬레 이트 결합을 통해 3단계의 비소가 주로 추출되어 비롯된 결과라 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 옥살산을 비소로 오염된 토양의 세척제로 적용하였을 때, 비소존재형태 및 비소농도와 같은 토양의 화학적 특성이 비소추출효율에 미치는 영향을 확인하기 위한 실험을 진행하였다. 옥살산은 황산, 인산, 그리

고 염산과 같은 무기산에 비해 약 2배 이상의 비소추출효 율을 나타냈다. 0.2 M의 옥살산을 적용한 후 약 75%의 비결정질 철과 결합된 비소가 추출되는 것이 확인되었다. 이는 옥살산을 비소오염토양에 적용할 때 비결정질 철과 결합된 비소에 해당하는 부분을 강력한 킬레이트 결합을 통해 추출하는 기작이 주를 이루어 비롯된 결과라 판단된 다. 추가적으로, 다양한 비소오염농도와 비소존재형태를 지닌 토양을 대상으로 옥살산을 적용한 결과, 비소 제거 율은 토양 속 비결정질 철과 결합하고 있는 비소를 포함 한 불안정한 비소분율의 합에 비례하였으며 상관계수의 값이 0.922로 높은 상관관계를 나타내는 것으로 확인되었 다. 반면 토양 총 비소 농도와 비소제거율은 상관계수의 값이 0.230로 낮은 상관관계를 나타냈다. 또한 토양의 CEC 및 EC값과 비소제거율의 상관계수의 값은 각각 0.142, 0.002로 낮은 상관관계를 나타냈다. 옥살산을 적용 할 때 비소추출효율은 토양 속 물리·화학적 특성 중 특 히 비소존재형태와 비결정질 철 산화물과 결합하고 있는 비소의 양에 크게 영향을 받으며, 옥살산을 통한 토양 세 척 공정 설계시 비소존재형태 고려가 반드시 필요하다.

사 사

본 연구는 환경산업기술원 GAIA 연구개발사업 (2016000550001)의 지원으로 수행되었다.

References

Ali, H., Khan, E., and Sajad, M.A., 2013, Phytoremediation of heavy metals-Concepts and applications, *Chemosphere*, **91**, 869-881.

Bissen, M. and Frimmel, F.H., 2003, Arsenic - a review. - Part 1: Occurrence, toxicity, speciation, mobility, *Acta Hydroch. Hydrob.*, **31**, 9-18.

Bronick, C.J. and Lal, R., 2005, Soil structure and management: a review, *Geoderma*, **124**, 3-22.

Dermont, G, Bergeron, M., Mercier, G, and Richer-Lafleche, M., 2008, Soil washing for metal removal: A review of physical/chemical technologies and field applications, *J. Hazard. Mater.*, **152**, 1-31.

Dixit, S. and Hering, J.G., 2003, Comparison of arsenic(V) and arsenic(III) sorption onto iron oxide minerals: Implications for arsenic mobility, *Environ. Sci. Technol.*, **37**, 4182-4189.

Jeon, E.K., Jung, J.M., Kim, W.S., Ko, S.H., and Baek, K., 2015, In situ electrokinetic remediation of As-, Cu-, and Pb-con-

taminated paddy soil using hexagonal electrode configuration: a full scale study, *Environ. Sci. Pollut. Res.*, **22**, 711-720.

Jones, D.L., 1998, Organic acids in the rhizosphere - a critical review, *Plant and Soil*, **205**, 25-44.

Kim, E.J. and Baek, K., 2015, Enhanced reductive extraction of arsenic from contaminated soils by a combination of dithionite and oxalate, *J. Hazard. Mater.*, **284**, 19-26.

Kumpiene, J., Lagerkvist, A., and Maurice, C., 2008, Stabilization of As, Cr, Cu, Pb and Zn in soil using amendments - A review, *Waste Manage.*, **28**, 215-225.

Lee, J.C., Kim, E.J., Kim, H.W., and Baek, K., 2016, Oxalate-based remediation of arsenic bound to amorphous Fe and Al hydrous oxides in soil, *Geoderma*, **270**, 76-82.

Lee, S.O., Tran, T., Jung, B.H., Kim, S.J., and Kim, M.J., 2007, Dissolution of iron oxide using oxalic acid, *Hydrometallurgy*, **87**, 91-99.

Ma, J., Sengupta, M.K., Yuan, D.X., and Dasgupta, P.K., 2014, Speciation and detection of arsenic in aqueous samples: A review of recent progress in non-atomic spectrometric methods, *Anal. Chim. Acta*, **831**, 1-23.

Mandal, B.K. and Suzuki, K.T., 2002, Arsenic round the world: a review, *Talanta*, **58**, 201-235.

Panias, D., Taxiarchou, M., Paspaliaris, I., and Kontopoulos, A., 1996, Mechanisms of dissolution of iron oxides in aqueous oxalic acid solutions, *Hydrometallurgy*, **42**, 257-265.

Papassiopi, N., Tambouris, S., and Kontopoulos, A., 1999, Removal of heavy metals from calcareous contaminated soils by EDTA leaching, *Water Air Soil Pollut.*, **109**, 1-15.

Pierce, M.L. and Moore, C.B., 1982, Adsorption of Arsenite and Arsenate on Amorphous Iron Hydroxide, *Water Res.*, **16**, 1247-1253.

RM Cornell, U.S., 2003, The iron oxides: structure, properties, reactions, occurrences and uses.

Ryu, S.-R., Jeon, E.-K., and Baek, K., 2017, A combination of reducing and chelating agents for electrolyte conditioning in electrokinetic remediation of As-contaminated soil, *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.*, **70**, 252-259.

Schwertmann, U., 1991, Solubility and Dissolution of Iron-Oxides, *Plant and Soil*, **130**, 1-25.

Shin, Y.-J., Lee, C.-D., Yoo, J.-C., Yang, J.-S., Kim, H.-S., and Baek, K., 2015, Mechanism on Extraction of Heavy Metals from Soil by Ultrasonication, *J. Soil Groundwater Environ.*, **20**, 28-35.

Sparks, D.L., 2003, Environmental Soil Chemistry.

Wasay, S.A., Barrington, S.F., and Tokunaga, S., 1998, Remediation of soils polluted by heavy metals using salts of organic acids and chelating agents, *Environ. Technol.*, **19**, 369-379.

Wenzel, W.W., Kirchbaumer, N., Prohaska, T., Stingeder, G., Lombi, E., and Adriano, D.C., 2001, Arsenic fractionation in soils using an improved sequential extraction procedure, *Anal. Chim. Acta*, **436**, 309-323.

Yoo, J.-C., Kwak, S.-J., Lee, J.-S., Jeon, P.-Y., Park, E.-R., and Baek, K., 2016a, Remediation of Metal-Contaminated Soil Combined with In-Situ Soil Mixing and Soil Flushing Process, *J. Korean Soc. Environ. Technol.*, **17**, 1-10.

Yoo, J.-C., Park, S.-M., Yoon, G.-S., Tsang, D.C.W., and Baek, K., 2017, Effects of lead mineralogy on soil washing enhanced by ferric salts as extracting and oxidizing agents, *Chemosphere*, **185**, 501-508.

Yoo, J.-C., Shin, Y.-J., Kim, E.-J., Yang, J.-S., and Baek, K., 2016b, Extraction mechanism of lead from shooting range soil by ferric salts, *Process Saf. Environ. Prot.*, **103**, 174-182.

Yoon, G.-S., Yoo, J.-C., Ko, S.-H., Shim, M.-H., Cho, M.-H., and Baek, K., 2017, Feasibility Study on Stabilization Technique of Cr(VI)-contaminated Site, *J. Soil Groundwater Environ.*, **22**, 27-32.