## 동-시안화물-암모니아체계에서 금침출의 안정성을 높이기 위한 연구

김창덕, 동성일, 심영석

경애하는 최고령도자 김정은동지께서는 다음과 같이 말씀하시였다.

《과학연구부문에서는 나라의 경제발전과 인민생활향상에서 전망적으로 풀어야 할 문제들과 현실에서 제기되는 과학기술적문제들을 풀고 첨단을 돌파하여 지식경제건설의 지름길을 열어놓아야 합니다.》

동-시안화물-암모니아(Copper-Cyanid-Ammonia(CCA))체계에서의 금침출방법은 산화된 함동금광석에서 금을 선택적으로 침출시킬수 있는 유일한 방법으로 인정되고있지만 광석의 특성에 따라 그 효과성이 다르게 나타난다.[1, 2]

론문에서는 CCA체계에서 금침출에 미치는 pH의 영향을 밝히고 금침출의 안정성을 높이기 위한 방법을 서술하였다.

### 1. CCA체계에서 금침출에 미치는 pH의 영향

CCA체계에서 금의 침출과 동의 침전과정을 반응식으로 표시하면 다음과 같다.[2]

$$Au + [Cu(CN)_2 NH_3]^- + Cu(NH_3)_4^{2+} \rightarrow Au(NH_3)CN \cdot CuCN_{\frac{2}{3},\frac{2}{3}} + Cu(NH_3)_2^+ + 2NH_3$$
 (1)

$$\operatorname{Au}(\operatorname{NH}_3)\operatorname{CN}\cdot\operatorname{CuCN}_{\frac{\pi}{4},\frac{\pi}{4}}+\operatorname{NH}_3\to\operatorname{Au}(\operatorname{CN})_2^-+\operatorname{Cu}(\operatorname{NH}_3)_2^+\tag{2}$$

$$Cu(NH_3)_2^+ + Cu(CN)_2^- \to 2CuCN + 2NH_3$$
 (3)

$$2Cu(NH3)2+ + 1/2O2 + 2NH3 + 2NH4+ \rightarrow 2Cu(NH3)42+ + H2O$$
 (4)

$$2Cu(NH_3)_4^{2+} + Cu(CN)_2^{-} \rightarrow CuCN + 1/2(CN)_2 + Cu(NH_3)_2^{+} + 2NH_3$$
 (5)

$$2Cu(NH_3)_4^{2+} + CuCN + 2OH^- \rightarrow Cu(OH)_2 + 1/2(CN)_2 + Cu(NH_3)_2^+ + 2NH_3$$
 (6)

우의 반응식들에서 보는것처럼 CCA체계에서 금침출을 위한 시안기의 원천은 Cu(I)의 시안화물이며 산화제는  $O_2$  또는  $Cu(NH_3)_4^{2+}$ 이다.

또한 NH<sub>3</sub>은 식 (2)에서와 같이 금겉면에 형성되는 AuCN-CuCN의 부동태화충을 파괴하는 작용을 한다. 그러나 이러한 작용은 Cu(CN)<sub>2</sub> 용액에서만 가능하며 구체적으로는 CN<sup>-</sup> 과 Cu사이의 농도비가 3:1보다 작고 NH<sub>3</sub>의 농도가 50mmol/L인 조건에서 효과적이다.[2] 그것은 Cu(NH<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>2+</sup>의 농도가 지나치게 높으면 반응계의 산화전위가 높아져 시안화물이 분해되기때문이다. 통계자료에 의하면 CCA체계에서 금침출에 유리한 Cu(NH<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>2+</sup>의 농도는 5mmol/L정도이다.[2]

이와 같이 CCA체계에서 금의 침출률은 기본적으로 유리시안기와 암모니아, Cu(II)의 농도에 의존하며 광석에 들어있는 동함량의 영향을 받는다. 그러므로 유리시안기와 암모니아, Cu(II)의 농도를 조절하는 방법으로는 높은 금침출률을 안정하게 유지할수 없다. 따라서 시안화물과 암모니움의 농도가 일정할 때 침출액의 pH가 금침출에 주는 영향을 연

구하였다.

선행연구들에서는 CCA체계에서 침출액의 pH에 따라  $NH_3$ 과  $NH_4$ <sup>+</sup>사이의 농도비가 변하므로 pH가 금과 동의 침출률에 영향을 준다는것을 밝혔다.

실례로 금의 침출률은 pH=11.5인 조전에서 최대로 되였고 동의 침출률은 pH=10.5인 조건에서 최소로 되였다. 이러한 pH(10.5~11.5)조건에서는  $NH_4$ +보다  $NH_3$ 의 함량이 훨씬 높다.[2] 즉 CCA체계에서는  $NA_3$ 의 함량이 일정할 때  $NA_3$ 과  $NA_4$ +사이의 농도비 값이 커야 금침출에 유리하다. 그러나 암모니아의 함량이 높아지면 동의 침출률도 높아지면 따라서 동의 함량변화가 심한 광석이 침출될 때에는  $NA_3$ 과  $NA_4$ +사이의 농도비값과  $Cu(NH_3)_4^2$ +의 함량을 예측하기 힘들다. 또한 침출을 열린계에서 진행하면 휘발에 의한 암모니아의 손실이 많아져 그 농도를 조절하기 힘들고 작업환경이 나빠진다. 그러므로 보다 낮은  $PA_3$ 는  $PA_4$ 는

침출액에서  $Cu(NH_3)_4^{2+}$ 의 농도와 안정성은 pH와 암모니아의 농도에 관계되는데  $(NH_3+NH_4^+)$ 의 농도가 낮을 때 낮은 농도의  $Cu(NH_3)_4^{2+}$ 이 안정한 pH범위는 9정도이다.[2] 그러므로 침출액의 pH를 9정도로 낮추면  $Cu(NH_3)_4^{2+}$ 의 농도를 일정하게 유지하면서도  $NH_3$ 과  $NH_4^+$ 사이의 농도비값을 크게 할수 있다. 다시말하여 광석에서 동의 함량변화에 관계없이 안정한 금침출률을 보장할수 있다. 그러나 침출액의 pH가 낮을 때에는 금침출률이 떨어진다.

#### 2. CCA체계에서 금침출의 안정성을 높이기 위한 방도

식 (1)에서 알수 있는것처럼 CCA체계에서 금은 자유시안기에 의해서가 아니라 동의 시안화물에 의하여 용해된다. 그러므로 반응초기 침출액의 pH를 높이는것은 동과 함께 금의 침출률을 다같이 높이는데 유리하다. 그러나 침출액의 동합량이 일정한 조건에서는 침출액의 pH를 낮추어야 금침출에 유리하다. 그러므로 침출액의 초기 pH는 11이상으로, 마지막 pH는 8.5~9정도로 조절하면 금침출의 안정성을 높일수 있다.

이러한 해석에 기초하여 침출액의 pH를 고정하지 않고 반응과정에 맞게 조절하는것이 금의 침출률을 높이면서도 안정성을 보장할수 있다는것을 제기하고 그것을 증명하기 위하여 시안화물의 각이한 농도에서 비교실험을 진행하였다.

비교실험을 위하여 어느 한 광산의 산화된 함동금광석을 리용하였다. 이 광석은 산화동이 많고(평균 동품위 약 0.4%) 함량변화가 심한 난침출성금광석에 속하는데 금품위는 평균 0.7~1g/t이다. 광산에서는 이러한 광석을 일반적인 시안화법으로 더미침출하고있는데 같은 침출조건에서도 광석에 따라 침출률변화가 심하고 시약소비량이 많아(NaCN 6kg/t, 석회 12kg/t) 경제적실리를 보장하기 힘들다. 침출방법으로는 더미침출법을 선택하였는데 100kg의 규모로 3개의 더미를 만들고 더미 1의 NaCN소비량은 0.7kg/t, 더미 2의 NaCN소비량은 1.5kg/t, 더미 3의 NaCN소비량은 3kg/t으로 하였으며 침출액의 량은 다같이 25L로 정하였다. 그리고 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>의 소비량은 모든 더미에 대하여 1.5kg/t으로 정하였다. 이렇게 시안화물의 농도만 각이하게 설정한 조건에서 모든 더미에 대하여 침출액의 pH를 초기에는 12이상, 16h 지나서는 8.5로 조절하였다. 침출시간도 다같이 48h로 정하였으며 침출된 금은 아연으로 치환한 후 용융하여 금정으로 만들었다.

금정의 질량을 측정한 결과 더미 1에서는 0.09g, 더미 2에서는 0.09g, 더미 3에서는 0.07g이 얻어졌다.

실험결과에서 보는바와 같이 침출액의 pH를 시간에 따라 조절하면 높은 금침출률을 안정하게 보장할수 있다. 그리고 이 방법을 리용하면 생산원가를 훨씬 낮추면서도 금침출의 선택성을 높일수 있다. 결과 생산원가는 종전의 1/10정도로 낮아졌으며 은은 거의나침출되지 않았다.

#### 맺 는 말

침출액의 pH를 고정하지 않고 반응과정에 맞게 조절하면 CCA체계에서 높은 금침출률을 안정하게 보장할수 있다는것을 실험적으로 확증하였다.

침출액의 pH를 초기에는 12이상, 16h 지나서는 8.5로 조절하면 높은 금침출률을 안정하게 보장할수 있다.

#### 참고문 헌

- [1] 김일성종합대학학보(자연과학), 59, 3, 156, 주체102(2013).
- [2] D. M. Muir; Minerals Engineering, 24, 576, 2011.

주체107(2018)년 1월 5일 원고접수

# Study for Improving the Stability of Gold Leaching in Copper-Cyanide-Ammonia System

Kim Chang Dok, Tong Song Il and Sim Yong Sok

The high leaching rate of gold can be safely kept when in CCA system the initial pH is controlled at pH>12 and at pH=8.5 after 16h.

Key words: gold, CCA, cyanide heap leaching