

황화광물로부터 유용금속 침출을 위한 Acid Bake-water Leaching System 내 황산염 용매제의 적용성

Application of Sulfate Solvent in Acid Bake-water Leaching System for Valuable Metal Leaching from Sulfide Mineral

고진석(Chin Surk Ko) · 톡토흐마(B. Togtokhmaa) · 박천영(Cheon-Young Park)*

조선대학교 에너지 · 자원공학과

(Department of Energy and Resource Engineering, Chosun University, Gwang-ju, Republic of Korea)

요약 : 본 연구는 acid bake-water leaching system (AWS)를 이용하여 Au 정광으로부터 경제적이고 친환경적인 유용금속 용출을 위하여 황산염 용매제의 적용성을 파악하는 것이다. AWS 실험은 전기로를 이용하여 다양한 baking 온도(100°C ~ 500°C)와 황산염 용매제(H_2SO_4 , K_2SO_4 , $(NH_4)_2SO_4$, $MgSO_4$, $CaSO_4$) 조건에서 수행하였다. Baking 온도가 400°C 까지 증가할수록 유용금속의 용출률은 증가하였다. 용출시간에 따른 AWS 실험결과, 최대 용출률 조건은 $(NH_4)_2SO_4$ 용매제이었다. 본 연구를 통하여 $(NH_4)_2SO_4$ 용매제가 AWS를 이용한 유용금속 용출에 있어 효과적인 용매제로 사용가능함을 입증하였다.

주요어 : 유용금속, acid bake, 수침출, 황산염용매제, 황산암모늄

ABSTRACT : The objective of this study was to investigate the application of sulfate solvents for the economic and eco-friendly leaching of valuable metals from Au concentrate using an acid bake-water leaching system (AWS). AWS experiments were performed using an electric furnace with various baking temperatures (100-500°C) and sulfate solvents (H_2SO_4 , K_2SO_4 , $(NH_4)_2SO_4$, $MgSO_4$, and $CaSO_4$). The efficiency of the valuable metal leaching increased as the baking temperature was increased to 400°C. Based on the AWS leaching time experiments, the maximum leaching rate occurred with the aqueous $(NH_4)_2SO_4$ solvent. This study demonstrates that aqueous $(NH_4)_2SO_4$ could be used as an effective solvent for valuable metal leaching using an AWS.

Key words : valuable metal, acid bake, water leaching, sulfate solvents, $(NH_4)_2SO_4$

서 론

비-가시성 Au 정광은 Cu, Zn, Pb, Fe 등과 같은 유용금속들을 함유한 복합황화광물로 구성되어 있다. Au는 주로 황철석(Pyrite, FeS_2)과 황비철석(Arsenopyrite, $FeAsS$)에 포함되어 있지만 황철석과 황비철석은 황동석(Chalcopyrite, $CuFeS_2$), 코벨

라이트(Covellite, CuS), 휘동석(Chalcocite, Cu_2S), 섬아연석(Sphalerite, ZnS), 자류철석(Pyrrhotite, $Fe_{1-x}S$), 방연석(Galena, PbS), 사면동석(Tetrahedrite, $Cu_{12}Sb_4S_{13}$) 등과 함께 산출된다. Au 정광 내 Au 품위 및 회수율 증대를 목적으로 적용되는 소성법(Roasting method)에 의하여 생성되는 소성광물에는 Fe, Cu, Zn 및 Pb 등과 같은 유용금속이

*Corresponding author: +82-62-230-7119, E-mail: cybpark@chosun.ac.kr

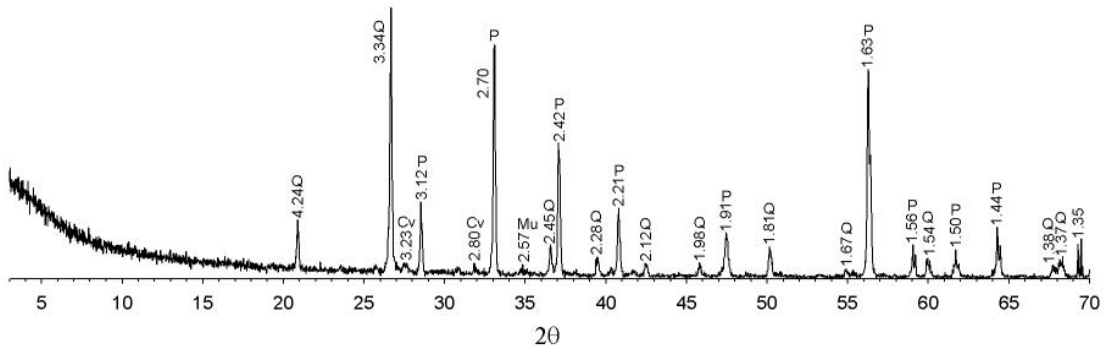


Fig. 1. XRD patten of Au concentrate (Cv; covellite, P; pyrite, Q; quartz, Mu; muscovite).

포함되어있으며, 이러한 광물들은 광미로 대부분 처분된다. 즉, Au 용출 및 회수 과정에서 Au를 제외한 유용금속들의 존재와 가치가 거의 무시되어 왔다. 그러므로 Au 정광에 포함된 이들 유용금속을 효과적으로 용출하면서 Au品位 및 회수율을 향상시키는 친환경적인 전처리 기술이 요구되고 있다.

최근 국외에서는 acid bake-water leaching system (AWS)을 이용하여 황비철석, 황비동광(Enargite, Cu_3AsS_4), 비사면동광(Tennantite, $Cu_{12}As_4S_{13}$), 휘수연석(Molybdenite, MoS_2), 저品位 니켈광석, 폐촉매 및 니켈함유-laterite로부터 유용금속을 용출하는 연구가 진행되었다. AWS는 황산용액에 황화광물을 혼합하고 전기로를 이용하여 비교적 낮은 온도인 300~500°C에서 약 4시간 이상 baking하고, 이 baking 생성물을 70°C의 물로 용해하여 Cu, Fe, Zn, As, Co, Ni, Mn, Al, Mg 및 Cr 등의 유용금속을 용출하는 방법이다(Guo *et al.*, 2009; Safarzadeh *et al.*, 2012; Liu *et al.*, 2012; Safarzadeh *et al.*, 2014a, 2014b, 2014c; Parhi *et al.*, 2015). 황화광물을 700°C 이상의 매우 높은 온도로 가열하여 황화광물을 모두 산화시키는 소성법에 비하여 에너지 소비가 적다. 또한 AWS에서는 SO_2 가 sulfation로 작용하여 유용금속 용출에 기여하며, As_2O_3 는 water leaching에서 수용액상으로 용출-회수된다. 추가적으로 황동석, 황철석 및 황비철석에 함유된 Fe는 소성으로 인하여 적철석(Hematite, Fe_2O_3)과 자철석(Magnetite, Fe_3O_4)으로 변환되기 때문에 Fe 제거 및 회수가 어렵게 되지만 acid baking을 하게 되면 $FeSO_4$ 나 $Fe_2(SO_4)_3$ 가 변환되기 때문에 water leaching으로 쉽게 용해-회수할 수 있다(Spedden *et al.*, 1971).

AWS를 이용한 유용금속을 회수한 국내 연구는

전무하며, 이와 유사하게 Barik 등(2012)이 폐촉매인 hydrodesulphurization에서 몰리브덴과 코발트를 회수할 목적으로 50~80°C의 온도 조건에서 H_2SO_4 를 이용하여 다양한 실험조건(교반속도, 온도, 농도 등)에서 최적의 회수조건을 파악하였다. 국외에서는 다양한 복합 황화광물이 포함되어 있는 정광으로부터 유용금속을 회수하기 위하여 H_2SO_4 를 이용한 연구가 활발히 진행되고 있다. 하지만 연구결과, 최적의 acid bake 조건을 파악하기 위하여 고농도의 H_2SO_4 (1 M 이상)과 산화제를 이용한 연구가 진행됨에 따라 연구 수행자의 위험 노출과 대용량 처리시 추가적인 시설이 필요한 실정이다.

따라서 본 연구에서는 acid bake-water leaching system (AWS) 공정을 이용하여 Au 정광 내 존재하는 Au 외 기타유용광물을 친환경적이고, 효과적으로 회수하기 위하여 다양한 황산염 용매제의 이용 가능성을 파악하는 것이다.

실험재료 및 방법

Au 정광

본 연구에 사용된 Au 정광 시료(75 μm 이하)는 현재 가행 중인 금광산(Haenam, Korea)에서 부유선별공정을 통하여 획득된 정광이다. 시료의 광물 조성을 파악하기 위하여 XRD (X'Pert Pro MRD, Panalytical, Netherlands) 분석을 실시한 결과, 석영, 황철석, 코벨라이트 및 백운모 등의 회절 peak가 관찰되었다(Fig. 1).

Kim 등(2013) 및 Kim 등(2014)은 본 연구에 사용된 Au 정광시료의 부유선별공정전 광석광물에 Au의 존재형태를 파악하기 위하여 현미경 관찰결

Table 1. Chemical composition of Au concentrate

Elements	Au	Ag	As	Cu	Fe	Zn	Bi
Content (mg/kg)	130.2	986.6	2456.1	1899.4	86793.1	2709.6	140.1

과 석영, 황철석, 황동석, 반동석, 휘동석, 방연석, 섬아연석 및 코벨라이트 등이 관찰되었다고 하였다. 광석광물 내 존재하는 Au의 형태는 자연금(Native gold) 또는 엘렉트럼(Electrum)이 아닌 황화광물 속에서 극미립자로 혹은 고용체로 존재한다고 하였다.

또한 본 연구지역의 산화대 광석광물에서 석영(quartz), 적철석(hematite), 백운모(muscovite) 등이 현미경으로 관찰되었다(Kim *et al.*, 2016).

시료의 화학분석은 왕수(HNO₃ (V) : HCl (V) = 1 : 3)분해를 통하여 원자흡광분광광도계(AAS, AA-7000, Shimadzu, Japan)를 사용하였다(Table 1).

Acid bake-water 용출 실험

5가지의 bake 온도(100°C~500°C)에 따른 황산염 용매제를 이용한 bake의 효과를 파악하기 위하여 10.0 g의 시료에 1 M의 5가지 황산염 용매제(H₂SO₄, K₂SO₄, (NH₄)₂SO₄, MgSO₄, CaSO₄) 5 mL를 각각 알루미늄 도가니(내경 = 4.4 cm, 높이 = 3.2 cm)에 넣고, 전기로(Ceber사, ceramic fiber SF-series)를 이용하여 3시간 동안 baking 하였다. 황산염 용매제 선정에 있어 기존의 선행연구, 인체 위해성 및 시료와의 상호영향을 고려하였다. 각 조건별로 baking된 시료의 수침출 효율을 알아보기 위하여 2%의 광액농도(M/W), 70°C 및 250 rpm의 교반조건에서 3차 증류수를 이용한 용출실험을 수행하였다. 수침출 반응 시간에 따른 As, Fe, Cu 및 Zn의 용출농도를 파악하기 위하여 채취된 용출시료는 원자흡광분광광도계(AA-7000, Shimadzu, Japan)를 이용하여 화학분석을 실시하였다.

결과 및 고찰

Baking 온도의 영향

Fig. 2는 baking 온도에 따른 각 용매제 조건별 AWS 실험 결과를 나타낸 것이다.

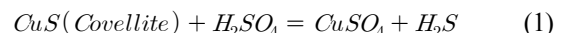
Cu의 경우, 100°C의 온도조건을 제외하고, 200~500°C의 온도조건에서 모든 용매제 조건에서 Raw에 비하여 용출률이 증가하였다. 모든 용매제는 400°C의 온도조건까지 용출률이 증가하였으나 500°C

에서는 감소하였다.

500°C의 온도조건에서 용출률이 감소한 이유는 황산염 용매제에 의하여 정광시료 내 Cu함유광물이 sulfation됨에 따라 copper sulfate로 변화되어 수침출이 용이해졌으나, 온도가 증가됨에 따라 산화광물로 변화되었기 때문이다. Guo *et al.* (2009)는 lateritic 광석으로부터 sulfation-roasting-leaching process를 이용하여 Ni과 Co를 회수연구를 수행한 결과, 100~700°C까지의 소성온도조건에서 온도가 증가됨에 따라 Ni, Co, Mn, Zn 등의 용출률이 증가하였으나 700°C 이상의 조건에서 용출률이 감소하였다. 이는 소성에 의하여 침철석(goethite, FeOOH)으로 이루어진 lateritic 광석이 100~700°C까지의 소성온도조건에서 sulfation반응으로 mikasaite (Fe₂(SO₄)₃)와 basic ferric sulfate (Fe(OH)SO₄)로 상변화가 일어나 용출률이 증가하였으나 700°C 이상의 조건에서 적철석으로 변화되었기 때문이다.

용매제 조건별 용출률은 용매제 H₂SO₄와 (NH₄)₂SO₄가 다른 용매제인 K₂SO₄, MgSO₄ 및 CaSO₄보다 용출률이 높았다. 특히, (NH₄)₂SO₄는 400°C에서 83.6%의 용출률로 79.6%의 H₂SO₄, 60.2%의 MgSO₄, 52.0%의 CaSO₄ 및 48.9%의 K₂SO₄ 보다 높게 나타났다(Fig 2(a)). Safarzadeh 등(2012)의 연구결과에 의하면 baking 온도가 100°C에서 400°C로 증가함에 따라 고체 시료의 무게는 약 14% 감소하는데, 그중 100°C에서 300°C 구간에서 약 13%, 300°C에서 400°C 구간에서 약 1% 감소가 일어났다. 또한 Cu의 용출률은 100°C에서 400°C 구간에서 62%에서 79%로 약 17% 증가하였다.

본 연구에 사용된 Au 정광에 대하여 광물학적, 화학적 특성분석 결과를 바탕으로 Au 정광 내 Cu, Fe, Zn 등의 유용금속이 함유되어있는 주요황화광물은 황철석, 황동석, 코벨라이트, 섬아연석 등이다. 이러한 황화광물로부터 유용금속을 효과적으로 회수하기 위하여 H₂SO₄ 용매제를 이용한 acid baking을 할 경우, 화학반응기작은 식 (1)~식 (4)과 같다(Prater *et al.*, 1970).



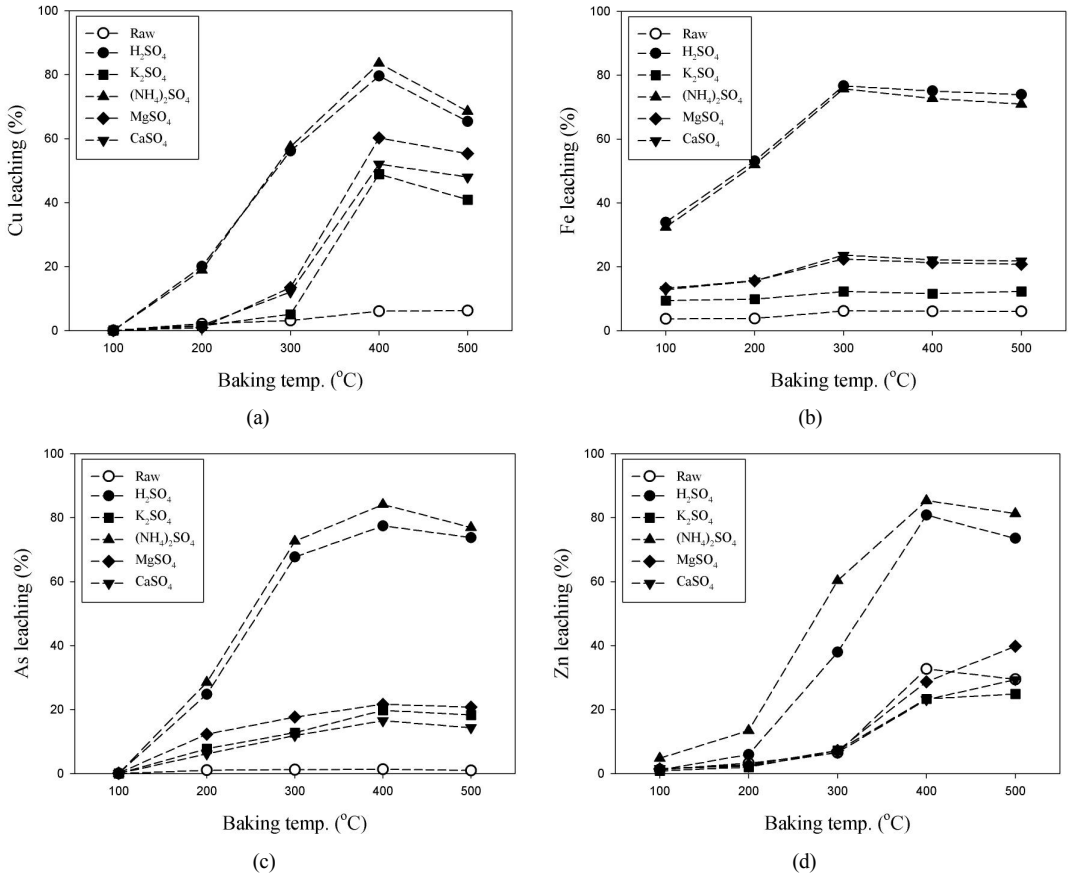
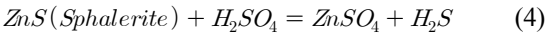
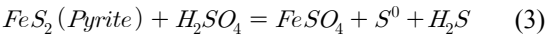
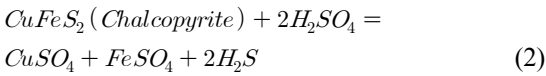
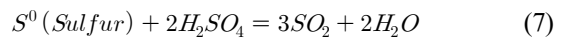
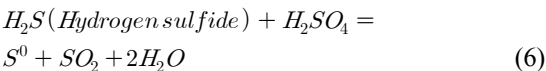
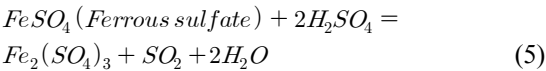


Fig. 2. The results of valuable metal leaching (%) on the baking temperature ((a) Cu; (b) Fe; (c) As; (d) Zn).

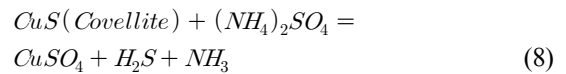


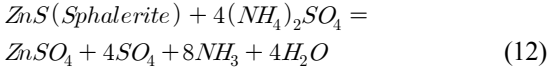
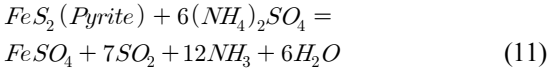
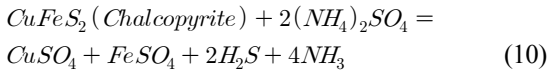
식 (5)~식 (7)은 식 (1)~식 (4)의 반응으로 생성될 수 있는 생성물과 H₂SO₄의 화학반응기작이다.



H₂SO₄를 이용한 acid backing을 하게 되면 유용금속을 함유하고 있는 주요 황화광물은 식 (1)~식 (7)의 반응으로 친수성의 SO₄와 결합되어 용출이 용이해지며, 가스형태의 SO₂가 생성된다(Habashi, 2005).

가장 높은 용출률을 보인 (NH₄)₂SO₄ 용매제의 경우, 본 연구에서 사용된 정광시료 내 Cu 함유광물인 코벨라이트와의 화학반응기작은 식 (8)와 같으며, 그 외 광물의 화학반응기작은 식 (10)~식 (12)이다.





Fe의 경우, 용매제별 용출률은 Cu 용출결과와 유사하게 용매제 H₂SO₄와 (NH₄)₂SO₄에서 가장 높은 용출률을 보였으나, baking 온도는 300℃에서 가장 높은 용출률(H₂SO₄-76.7%, (NH₄)₂SO₄-75.7%)을 나타냈다(Fig. 2(b)). Fe의 최대 용출 온도조건이 Cu보다 낮은 것은 시료 내 Fe 함유광물의 구조 내 As, Bi 등과 같은 녹는점이 낮은 원소가 포함되어있고, baking에 의한 시료 내 온도증가로 As와 Bi가 용해됨에 따라 Fe 용출에 영향을 준 것으로 생각되어진다. 또한 시료 내 황철석 등의 황화광물이 온도 증가와 황산염에 의한 용해도 증가로 인하여 열분해(thermal decomposition)되어 S가 SO₂로 휘발 및 제거되었기 때문이라 사료되어진다(Uslu and Atalay, 2003; Amankwah *et al.*, 2005; Pickles, 2009). Fig 2(c)의 As 용출실험 결과에서 200~300℃의 온도조건에서 가장 용출률이 높게 증가하였고, Safarzadeh 등(2012)은 baking의 온도가 증가될수록 Fe의 용출은 증가되었지만 300℃ 이상에서는 큰 변화가 없는 이유는 Fe의 구조가 불용성의 황비철석으로 이루어져 있기 때문이라 하였다.

As의 경우, 400℃의 H₂SO₄와 (NH₄)₂SO₄의 용매제 조건에서 각각 84.1%와 77.4% 용출률을 나타내었다. 황화광물을 소성하면 SO₂와 As₂O₃와 같은 대기 오염물질이 생성되지만 AWS에서는 SO₂가 대기오염물질로 방출되지 않고 sulfation로 작용하여 용융금속 용출에 기여하며, As₂O₃는 쉽게 용출-회수된다.

Zn의 경우, Cu 경우와 유사하게 400℃의 H₂SO₄와 (NH₄)₂SO₄의 용매제 조건에서 각각 85.3%와 80.8%의 용출률을 나타내었다. 일반적으로 섬아연석을 소성시키면 불용성의 ZnO가 생성되어 Zn을 용출-회수하기 어렵지만, AWS를 적용하면 ZnSO₄가 형성되어 쉽게 물로 용출-회수할 수 있다(Safarzadeh and Miller, 2014a).

시간에 따른 ASW 실험

다양한 황산염 용매제를 이용한 baking 온도별 ASW 실험결과에서 최적의 용출효율을 보인 400℃의 baking 온도 조건에 따른 용출반응시간별 용출실험 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 용출반응시간에 따른 유용금속 용출결과, Cu는 용출반응시간 모든 용매제 조건에서 10분만에 용출반응이 급격히 감소되었으며, 그 외 Fe와 As는 50분, Zn는 30분에 반응이 급격히 감소되었다. 금속별 용출반응이 급격히 감소되는 시간의 차이는 복합황화광물 내 존재하는 S가 baking에 의한 온도증가로 분해/제거되는 과정에서 시료 내 각 황화광물의 분해온도가 다르고, 이로 인하여 용출에 기여하는 sulfation의 공급 원인 분해/제거되는 S의 차이가 나기 때문이다. 또한 황화광물에 대한 온도증가는 광물의 상변환, 공극률 증가, 열응력 및 열파쇄작용 등을 발생시켜 용출률이 향상시킬 수 있지만 복합 황화광물 내에서 각 황화광물의 열적 특성의 영향을 받는다(Choi *et al.*, 2017). Cu의 최대 용출률은 (NH₄)₂SO₄의 용매제 조건에서 84.2%로 가장 높게 나타났으며, Fe와 As의 최대 용출률은 H₂SO₄ 용매에서 75.1%, 78.2% 나타났으며, (NH₄)₂SO₄ 조건에서는 72.8% 84.7%로 각각 나타났다. Zn의 최대 용출률은 (NH₄)₂SO₄에서 85.4%로 가장 높게 나타났다. (NH₄)₂SO₄ 용매제의 용출 효율이 높은 것은 황동석과 섬아연석 등과 같은 황화광물에 적용하여 유용금속을 용출시킬 수 있고, 비용이 저렴하고, 효율이 매우 뛰어나며, 낮은 독성과 부식성 그리고 용해성의 금속 복합물을 형성하는 능력이 뛰어나기 때문이다(Kim *et al.*, 2016).

결론

Au 정광 내 존재하는 Au 외 기타유용광물을 친환경적이고, 효과적으로 회수하기 위하여 다양한 황산염 용매제의 이용 가능성을 파악하기 위하여 다양한 황산염 용매제조건에서 실내 ASW 실험을 수행한 결과, 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다. 용매제별 baking 온도증가에 따라 유용금속을 함유하고 있는 주요 황화광물은 친수성의 SO₄와 결합되어 용출이 용이해졌고, 용출률은 H₂SO₄와 (NH₄)₂SO₄의 용매제 조건에서 Cu, As 및 Zn는 400℃에서 가장 높게 나타났으며, Fe는 300℃에서 가장 높았다. 400℃의 baking 온도조건에서 용출반응시간에 따른 용매제별 용출양상은 황화광물의 분해온도 차

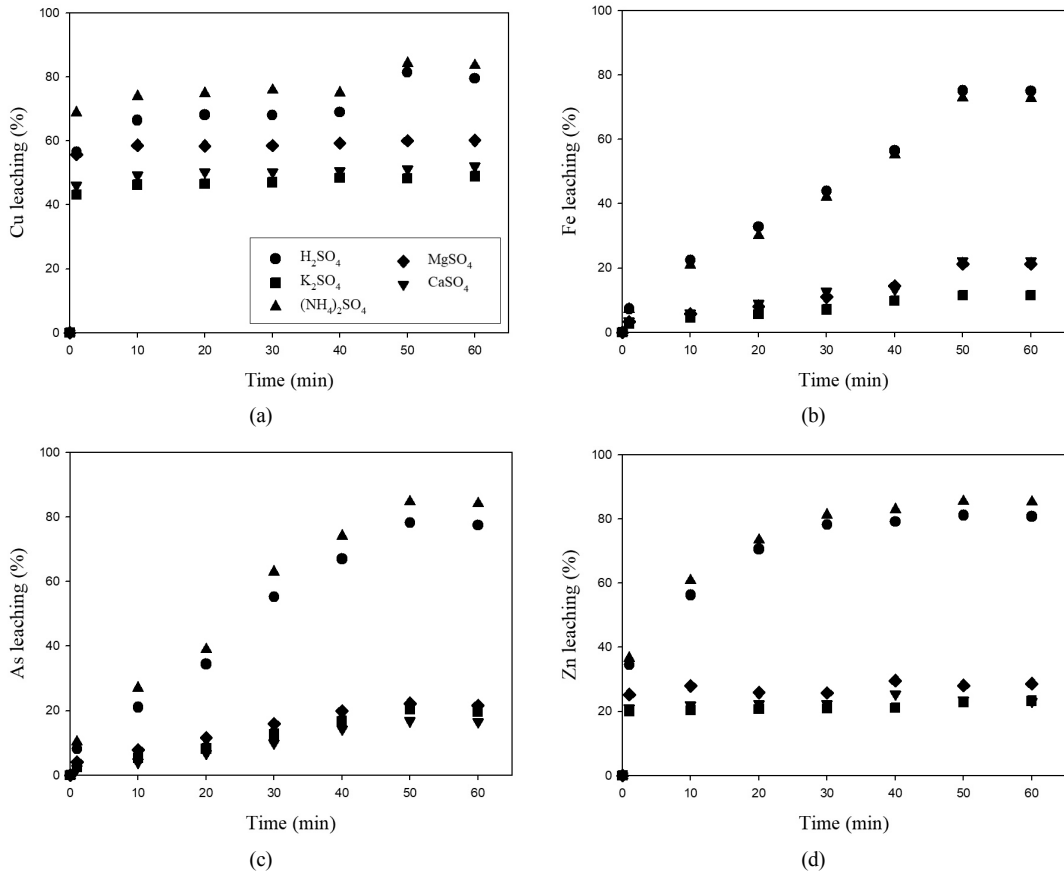


Fig. 3. The results of valuable metal leaching on the time at baking temperature of 400°C ((a) Cu; (b) Fe; (c) As; (d) Zn).

이, sulfation의 공급원인 분해/제거되는 S의 차이 및 광물의 상변환, 공극률 증가, 열응력 및 열파쇄 작용 등의 열적 특성 차이로 인하여 유용금속별 차이 차이가 났다. 시간에 따른 각 용매제별 유용금속의 최대용출률을 추정한 결과, (NH₄)₂SO₄ 용매제가 가장 높게 나타났다.

따라서, 기존의 AWS를 이용하여 친환경적이고, 경제적인 용출을 목적으로 사용되는 용매제인 H₂SO₄보다 (NH₄)₂SO₄을 용매제를 사용한다면 저비용, 고효율 및 낮은 독성과 부식성의 효과를 볼 수 있을 것이다.

사 사

본 논문은 2017년도 조선대학교 학술연구비 지원을 받아 수행된 연구이며, 연구비를 지원해준 조선대학교에 감사한다.

REFERENCES

- Amankwah, R.K., Khan, A.U., Pickles, C.A., and Yen, W.T. (2005) Improved grindability and gold liberation by microwave pretreatment of a free-milling gold ore, *Mineral Processing and Extractive Metallurgy (Trans. Inst. Min. Metall. C)*, 114, C30-C36.
- Barik, S.P., Park K.H., Parhi, P.K., and Park, J.T. (2012) Direct leaching of molybdenum and cobalt from spent hydrodesulphurization catalyst with sulphuric acid, *Hydrometallurgy*, 111-112, 46-51.
- Choi, N.C., Kim, B.J., Cho, K., Lee, S., and Park, C.Y. (2017) Microwave pretreatment for Thiourea leaching for gold concentrate, *Metals*, 7(10), 404-413.
- Guo, X., Li, D., Park, K.H., Tian, Q., and Wu, Z.

- (2009) Leaching behavior of metals from a limonitic nickel laterite using a sulfation-roasting-leaching process, *Hydrometallurgy*, 99, 144-150.
- Habashi, F. (2005) Recent advances in the hydrometallurgy of copper, Elsevier, 43p.
- Kim, B.J., Cho, K., Choi, N.C., and Park, C.Y. (2016) The Efficiency of Fe Removal Rate from Gold Ore in the Oxidation Zone by Ammonia Leaching, *Journal of the mineralogical society of korea*, 29(3), 113-122.
- Kim, B.J., Cho, K., Jo, J.Y., Choi, N.C., and Park, C.Y. (2014) The Characteristic of Te Recovery in Gold Concentrate Using Electrolysis, *Economic and Environmental Geology*, 47(6), 645-655.
- Kim, B.J., Cho, K., Oh, S.J., On, H., Kim, B.J., Choi, N.C., and Park, C.Y. (2013) Application of Roasting Pretreatment for Gold Dissolution from the Invisible Gold Concentrate and Mineralogical Interpretation of their Digested Products, *Journal of the mineralogical society of korea*, 26(1), 45-54.
- Liu, X.W., Feng, Y.L., Li, H.R., Yang, Z.C., and Cai, Z.L. (2012) Recovery of valuable metals from a low-grade nickel ore using an ammonium sulfate roasting-leaching process, *International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials*, 19, 377-383.
- McLaughlin, J. and Agar, G. (1991) Development and application of a first order rate equation for modelling the dissolution of gold in cyanide solution, *Minerals Engineering*, 4, 1305-1314.
- Parhi, P.K., Sethy, T.R., Rout, P.C., and Sarangi, K. (2015) Selective dissolution of copper from copper-chromium spent catalyst by baking-leaching process, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 21, 604-609.
- Pickles, C.A. (2009) Microwave in extractive metallurgy: part2-a review of applications, *Minerals Engineering*, 22, 1112-1118.
- Prater, J.D., Queneau, P.B., and Hudson, T.J. (1970) The sulfation of copper-iron sulfides with concentrated sulfuric acid, *The Journal of The Minerals, Metals and Materials Society*, 22, 23-27.
- Safarzadeh, M.S. and Miller, J.D. (2014a) Reaction of enargite (Cu_3AsS_4) in hot concentrated sulfuric acid under an inert atmosphere. part I: Enargite concentrate, *International Journal of Mineral processing*, 128, 68-78.
- Safarzadeh, M.S. and Miller, J.D. (2014b) Reaction of enargite(Cu_3AsS_4) in hot concentrated sulfuric acid under an inert atmosphere. part II: high-quality enargite, *International Journal of Mineral Processing*, 128, 79-85.
- Safarzadeh, M.S. and Miller, J.D. (2014c) Reaction of enargite (Cu_3AsS_4) in hot concentrated sulfuric acid under an inert atmosphere. part III: Reaction stoichiometry and kinetics, *International Journal of Mineral processing*, 130, 56-65.
- Safarzadeh, M.S., Moats, M.S., and Miller, J.D. (2012) Acid bake-leach process for the treatment of enargite concentrates, *Hydrometallurgy*, 119, 30-39.
- Spedden, H.R., Prater, J.D., Queneau, P.B., Foster, G.G., and Pickles W.S. (1971) Acid bake-leach-flotation treatment of offgrade molybdenite, *Metallurgical and Materials Transactions B*, 2(11), 3115-3122.
- Uslu, T. and Atalay, U. (2003) Microwave heating of coal for enhanced magnetic removal of pyrite, *Fuel Processing Technology*, 85, 21-29.

Received March 2, 2018, Revised June 18, 2018, Accepted June 26, 2018, Associate Editor: Chul-Min Chon