Research Paper

Review of Fluoride Removal Appropriate Technology for Securing Safe Drinking Water in Africa

Younghan Yoon^{1,†} · Jae-Hyeoung Park²

¹Dept. of Environmental Research, Korea Institute of Civil Engineering and Building Technology, Republic of Korea

²G&C Environmental Solution, Republic of Korea

(Received September 23, 2021; Revised November 26, 2021; Accepted November 30, 2021)

Abstract : Making and securing safe drinking water is considered as the most important element and human right for sustainable human life. However, many countries in Africa still have low access to safe water, and in particular, fluorosis symptoms are severe from the people of Africa where there is a lot of groundwater and surface water contaminated with fluoride due to the geological natures. Fluoride is a colorless, tasteless, and odorless element with very strong reactivity and is emitted from the cleaning process of semiconductors and the fertilizer manufacturing industries. Various technologies such as chemical coagulation/precipitation, electrochemical method, ion exchange, separation membrane technology, nanotechnology, and adsorption may be proposed as a technology for removing fluoride for securing safe drinking water. The strengths and weaknesses of each element technology and recent research cases were investigated and analyzed, and an appropriate technology application plan for the sustainable development of emerging and developing countries in Africa was presented. Efficiency of fluoride removal may be important to secure drinking water for developing countries in Africa, but it is necessary to consider the local economic situation and cultural background first for sustainability of the applied technology. Therefore, animal bone-based adsorption process is advantageous in terms of sustainability and can be proposed as a fluoride removal technology suitable for the developing countries in Africa.

Keywords : drinking water, fluoride removal, appropriate technology, sustainability, Africa

The Korean text of this paper can be translated into multiple languages on the website of <http://jksee.or.kr> through Google Translator.

[†] Corresponding author

E-mail: yoyoon74@kict.re.kr

Tel: 031-910-0397 Fax: 031-910-0291

© 2021, Korean Society of Environmental Engineers

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

연구논문

아프리카의 안전한 먹는물 확보를 위한 불소제거 적정기술의 고찰

윤영한^{1,*} · 박재형²

¹한국건설기술연구원 환경연구본부

²(주)지엔씨환경솔루션

요약: 안전한 먹는물의 확보는 인간다운 삶을 위한 가장 중요한 요소이자 기본적인 인권으로 정의되고 있다. 그러나 아직까지 아프리카의 많은 국가들은 안전한 물의 접근성이 낮으며 특히 지반의 지질학적 특성으로 불소에 오염된 지하수 및 지표수가 많은 아프리카 지역의 국민들로부터는 불소증(fluorosis) 증상이 심각하게 나타나고 있다. 불소는 무색, 무미, 무취의 반응성이 매우 강한 원소로서 반도체의 세정공정 및 비료제조 공정 등에서 배출되지만 일부 국가에서는 자연적으로 지하수 및 지표수에서 높은 불소농도가 나타나고 있다. 안전한 먹는물 확보를 위하여 반응성 높은 불소를 제거하기 위한 기술로는 화학적 응집/침전법, 전기화학적 방법, 이온교환, 분리막 기술, 나노기술, 흡착법 등 다양한 기술이 제안될 수 있다. 각 요소기술에 대한 장단점과 최근 연구사례를 조사 및 분석하였고 이를 바탕으로 아프리카 신흥개도국의 지속가능한 발전을 위한 적정기술의 적용방안을 제시하였다. 아프리카 개도국 대상의 안전한 먹는물 확보를 위한 기술은 불소제거에 대한 효율도 중요할 수 있으나 적용 기술에 대한 효율적 운영과 지속가능성을 위해서는 현지의 경제상황 및 문화적 배경에 대한 고려가 먼저 필요하겠다. 따라서 동물뼈 기반의 흡착 기술 및 공정은 폐기물을 재이용하는 측면에서 유리하고 경제적 측면에서도 아프리카 개도국의 현지 상황에 맞는 지속가능한 불소 제거기술로 제안될 수 있겠다.

주제어: 먹는물, 불소제거, 적정기술, 지속가능성, 아프리카

1. 서론

깨끗한 물의 확보는 선진국 및 개발도상국의 모든 국민에게 먹는물 공급, 개인 보건위생 유지, 사회활동 및 경제발전을 위해서 필수적이며 없어서는 안되는 요소로써 UN 등의 세계 기구들은 안전한 물과 위생에 대한 접근성을 인간다운 삶의 향유와 모든 인권에 필수적인 요소임을 선언하여 깨끗한 음용수의 공급과 시설 제공을 위해 노력할 것을 요구하게 되었다.^{1,2)} 그만큼 안전하고 먹을 수 있는 물에 대한 접근성은 인간의 기본적인 인권으로 정의되고 있다. 그러나 JMP 보고서(UNICEF/WHO, 2019)에 따르면 전 세계 인구의 약 5.79억 명이 최소한의 먹는물에 대한 기본적인 서비스를 받지 못하고 있고 이들 대부분은 사하라 사막 이남 아프리카(Sub-Saharan Africa, SSA) 등의 개발도상국에 해당되고 2000년 이후 SSA 국민의 25% 정도만 최소한의 먹는물을 공급받고 있고 탄자니아, 남아공, 에티오피아, 수단 등의 아프리카 신흥개도국은 아직까지 불평등한 물 공급 혜택을 받는 것으로 나타나고 있다.³⁾

최근에는 기후변화에 의한 자연재해 발생과 경제성장에 따른 도시화 및 인구집중 현상으로 SSA의 국가들은 물 수요

급증에 의한 물 부족으로 국민보건 위생에 위협을 받고 있고 안전한 물 공급 및 하수 처리를 위한 환경 기초시설 인프라의 부족으로 공공수역의 부영양화와 수질환경오염이 심화되고 있다.^{3,4)} 이에 따라서 각국의 정부는 안전한 물 공급 및 증가하는 물 수요에 대응을 위해서 중앙집중식보다는 지역단위의 소규모 관정개발에 의한 지하수 공급으로 안전한 생활용수의 공급을 추진하고 있다.^{4,5)} 아프리카 대륙의 지하수는 이용 가능한 수자원의 15%를 차지하고 있고 많은 농촌지역과 건조지역의 주요 식수원으로 사용되고 있으며 지표수보다 낮은 온도로 유지되어 탁도가 낮고 외부 오염 가능성이 낮아서 아프리카 국민의 75%가 지하수를 주요 식수원으로 사용하고 있다. 그러나 과거 화산활동으로 조성된 동 아프리카 열곡대(The East African Rift Valley)가 SSA 지역을 관통하고 있어 지반의 지질학적 특성으로 인하여 지하수 내 불소의 함량이 높고 이를 지속적으로 음용하는 많은 영유아들과 주민들이 불소증(fluorosis)에 의한 피해 증상을 나타내고 있다.^{6,9)}

SSA 지역의 에티오피아 등 신흥개도국의 정부는 불소증에 의한 국민건강을 보호하고 안전한 먹는물의 공급을 위하여 당국의 불소저감 프로젝트(Fluorosis Mitigation Project)를 KOICA 등과 같은 국제기구 협력사업을 통해 지원을 요청하

고 있다. 우리나라에서도 이를 위하여 환경기술 국제공동 현지 사업화 지원사업(환경부) 및 산업통상 협력개발 지원사업(산업통상자원부) 등을 통하여 안전한 먹는물 공급을 위한 다양한 지원사업을 수행 중에 있다. 본 연구에서는 아프리카 지역의 불소로 오염된 지표 및 지하수를 대상으로 안전한 먹는물의 확보를 위하여 현지에 적용할 수 있는 불소제거 기술을 분석하여 현지의 지속가능한 불소제거 적정기술의 도입 방안을 제시하고자 한다.

2. 본 론

2.1. 수환경에서의 불소 특성과 영향

불소는 모든 화학물질과 비교하여 가장 전기음성도가 높고 반응성이 강한 특징을 갖는 물질로써 주기율표상 할로젠족에 속하는 원소이며 지표상에서 (-1)가의 산화상태를 가지는 13 번째로 양이 많은 원소이다. 전기적으로 강한 음성을 나타내기 때문에 다른 물질과 반응하여 플루오린화 수소(hydrogen fluoride, HF) 또는 플루오르화 나트륨(sodium fluoride, NaF)과 같은 극성 또는 이온성 물질을 생성시키고 이러한 화합물이 물에서 해리되어 음으로 하전된 불소이온을 생성하게 된다. 빗물이 지표면으로 유입되면 이산화탄소와 토양 내 염류들을 용출시켜 이온교환을 거치게 된다. 수중의 이산화탄소의 용해는 지하수에서 수소이온을 증가시켜 탄산칼슘(CaCO_3)을 용해시킨다. 알칼리성의 물은 주변에 존재하는 형석(CaF_2)의 불소를 용해시켜 이동하게 만들고 과량의 중탄산나트륨(NaHCO_3) 이온이 지하수에 존재하면 불소의 용해도가 증가하여 농도가 증가하게 된다.^{7,8)} 이러한 불소는 물에 용해될 때 색, 맛, 냄새가 나타나지 않아서 물리적 방법으로는 판별하기 어렵고 화학적 분석을 통해서만 용존 농도를 측정할 수 있다.^{9,10)} 일반적으로 불소의 함량이 풍부한 광물이 지반에 분포하면 불소의 화학적 특성, 광물의 물리화학적 구성, 상호 반응시간 등에 의해 지하수로 유입되기 때문에 높은 불소 농도의 요인으로 작용하게 된다. 또한 강우가 많은 지역보다 건조하여 지하수로 충전되는 빗물의 양이 적은 지역은 높은 증발 속도의 영향으로 높은 pH 환경을 유지하고 불소의 용해가 유리하게 되어 지하수에는 높은 불소 농도가 나타나게 된다.^{11,12)}

불소가 함유된 지하수의 음용으로 인체로 유입되면 치아 또는 뼈의 주요 미네랄 성분인 수산화인회석(hydroxyapatite, $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$)의 수산화 이온을 치환하여 플루오르인회석(fluorapatite, $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$)을 형성시킴으로써 더욱 견고하고 건강한 치아와 뼈를 유지할 수 있게 된다. 이와 같은 불소의 특징 때문에 특히 골격의 성장, 치아 유지, 신체 활동 등에 매우 중요한 영향을 미치는 성분으로 알려져 있다.^{13,14)} 신체의 불소 농도 95%가 뼈와 치아에서 발견되는 것과 같이 불소는 식물보다는 동물과 인간의 성장에 필수적인 성분으로써, 소량

의 불소(1.5 mg F/L 이하)는 인체에 중요한 역할을 갖지만 1.5 mg F/L를 초과하는 많은 양을 지속적으로 섭취하면 체내에 축적되어 치아불소증(dental fluorosis, 1.5-4.0 mg F/L) 및 골격불소증(skeletal fluorosis, 4.0-10.0 mg F/L)에 의하여 치아 변색과 뼈가 굳어져 관절이 굳게 되는 건강상 심각한 문제가 발생될 수 있다.^{14,15)} 불소의 이와 같은 특성으로 WHO는 먹는물 기준의 불소농도를 일정수준(1.5 mg F/L 이하)으로 규정하고 있고 대부분의 아프리카 국가들도 WHO의 권고기준으로 불소기준(1.0~1.5 mg F/L)을 수용하여 공중보건에 대한 위험을 예방하고 있다.¹⁶⁾

2.2. 아프리카 지역 지하수내 불소 검출 현황

많은 불소가 분포하는 국가로는 같이 중국, 멕시코, 몽골, 남아프리카 및 러시아에서 발견되고 있으며 이들 국가들은 불소증 발병률과 높은 상관관계를 갖는 것으로 알려져 있다. 지하수를 먹는물의 수원으로 이용하는 비율이 높은 국가에서는 이와 같은 증상이 더 높게 나타나고 있다.⁶⁾ 지하수는 농촌 지역에서 이용할 수 있는 음용수 공급의 주요 수원으로써 전 세계 담수의 30.1%에 해당한다. 그러나 인간의 건강에 유해한 영향을 주는 불소 및 비소와 같은 물질이 자연적인 지반 환경 또는 인위적 활동에 의해서 지하수에 유입될 수 있고 과거 화산지대의 지반인 경우, 지하수 내 높은 불소 농도의 원인이 되고 있다.^{17,18)}

일반적으로 불소는 알루미늄 제련, 유리 생산, 인산염 비료의 생산 등의 광산업 및 산업공정의 과정에서 사용되어 공기, 물, 토양으로 방출될 수 있고 부산물로도 발생되어 지하수 및 대기환경으로 유입된다.^{6,18)} 그러나 과거 화산지대의 특성을 갖고 있는 아프리카의 많은 지역의 지하수에서는 WHO가 권장하는 농도보다 높은 불소농도가 검출되는 것으로 보고되고 있다(Table 1). 특히 동 아프리카 아열곡대(East Africa Rift valley)의 국가들에 분포하는 대부분 지하수에 함유된 불소의 공급원은 인회석, 빙정석, 형석 등과 같은 불소 함유 광물과 관련이 있다. 이 지역은 과거 화산활동에 의해서 조성된 지반으로써 광물 내 불소 농도가 높고 온도가 높은 건조한 기후 조건에서 다양한 풍화작용 등으로 불소가 지하수의 대수층으로 이동하여 자연적으로 높은 불소 농도가 지하수뿐만 아니라 지표수에서도 나타나고 있다. 아프리카에서 식수원에 불소함유가 이슈화된 것은 1935년부터이고 가장 높은 지하수 불소 농도 분포는 에티오피아를 포함한 수단, 에리트리아, 케냐, 우간다, 탄자니아, 말라위 등에 걸쳐있는 동 아프리카 아열곡대의 화산지역과 남부 아프리카에서 나타나고 있다.^{4,8)}

아열곡대에 거주하는 1,000만명의 에티오피아인 중에 800만명은 불소 농도 1.5 mg/L를 초과하는 지하수를 지속적으로 음용하기 때문에 높은 불소 농도에 노출되는 것으로 조사되었고 케냐에서는 먹는물 확보를 위한 우물 시추공의 불소 농도가 2.0~20.9 mg/L로 나타났으며 재배하는 야채에서도

Table 1. Fluoride concentration by African countries (Malago et al., 2017).

Country	Fluoride concentration (mg/L)	Sampling region
Algeria	0.4–2.3	Southern Algeria
Eritrea	0.6–3.7	Keren
Ethiopia	0.3–14.1	Rift Valley areas
Ghana	0.9–2.3	Bongo township
Kenya	1.1–6.5	Coast and Nairobi
Malawi	0.5–7.2	Southern Malawi
Nigeria	0.1–7.1	Zango, Katsina State
Sudan	0.3–7.0	East of Blue Nile Communities
Tanzania	10.5–46.0	Northern Tanzania

7.9~59.3 mg/L의 높은 불소 농도가 조사되어서 아프리카 지역의 불소문제는 환경적으로나 사회경제적으로 매우 심각한 것으로 나타나고 있다.¹⁹⁾ 케냐에서도 하천과 우물 대상의 18개 시료에서 최소 0.75 mg/L(하천수), 최대 11.0 mg/L(우물)의 불소가 검출되었고 탄자니아의 일부 하천(12~26 mg/L), 우물(15~63 mg/L), 연못과 호수(60~690 mg/L)에서 높은 불소로 오염되어 있는 것으로 알려져 있다. 남부 말라위에서는 지하수내 높은 불소농도가 검출되어 0.1~14.0 mg/L의 분포를 보였고 우간다 서부지역에서도 0.5~2.5 mg/L의 지하수내 불소가 함유된 것으로 조사되었다.^{6,20,21)}

이와 같이 불소에 오염된 지표수 또는 지하수를 먹는물의 수원으로 이용하는 지역이 아프리카 대륙의 곳곳에 분포하고 있지만 불소가 제거된 안전한 먹는물을 공급하기 위한 적정 기술의 부족으로 지역사회의 불소 노출을 증가시키고 있으며 아프리카 아열곡대의 10~14세 어린이의 80%가 치아불소증의 증상을 보였고 이 중에서 32%의 어린이들에게서 심각한 증상을 나타냈으며 남성이 여성보다 더 심각한 영향을 보이는 것으로 나타났다.^{8,10)}

2.3. 안전한 먹는물을 위한 불소제거 기술

산업의 발전으로 경제성장이 있는 대부분의 국가에서는 산업공정으로부터 발생하는 불소에 의한 인위적인 오염을 방지하기 위하여 폐수처리 공정기술이 개발되어 왔다. 단일기술로는 응집/침전, 이온 교환, 흡착, 분리막 등이 있으며 각 기술의 단점을 보완하고 효율성을 높이기 위하여 복합공정으로 불소를 제거하기 위한 기술이 제안되어 실제로 적용되고 있다. 응집/침전 기술은 화학반응을 통하여 많은 슬러지가 발생하는 단점이 있고 분리막 기술은 막의 파울링 발생과 운영 및 유지관리를 위한 많은 에너지와 비용이 요구되는 문제점이 있다. 흡착은 가장 높은 효율성으로 지속가능성이 높은 방법으로 고려되고 있는 기술로 간주되고 있다.^{17,22)} 지금까지 불소제거를 위하여 개발된 기술들을 검토하고 아프리카 지역의 안전한 먹는물 확보를 위한 적정기술로 도입을 위해서 요구되는 사항을 분석하고자 한다.

2.3.1. 화학적 응집/침전 기술

아프리카의 많은 국가와 지역에서 불소제거를 위하여 사용되는 Nalgonda 기술은 응집/침전반응 기반의 제거기술로써 인도의 NEERI (National Environmental Engineering Research Institute)에서 처음 개발된 공정기술이다. 석회(lime)와 알룸(alum, $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$)을 사용하여 CaF_2 를 형성해 침전시켜 제거하는 방법으로써 간단하게 먹는물을 확보할 수 있어서 각 가정과 소규모 마을단위의 공동지역에서 보편적으로 사용하고 있다. 그러나 높은 농도의 불소 제거를 위해서는 다량의 알룸 주입이 필요하고, 이에 따른 슬러지 발생 및 운반문제, 높은 용존 고형물 존재시 화학적 특성에 따른 낮은 제거효율(18~33%), 원수의 알칼리도 및 오염도와 무관한 과량의 알룸주입으로 인한 알츠하이머 증후군 유발 가능성 등의 문제가 제기되고 있다. Nalgonda 공정에 의한 대용량의 효율적 운영을 위해서는 지속적인 모니터링과 함께 숙련된 작업자에 의한 관리가 요구된다. 그러나 아프리카 대륙의 주요도시를 제외한 대부분의 지역사회는 시설운영을 위한 도로 및 전력과 같은 기본적인 인프라 상황이 낙후되어 있고 전문인력이 부족하여 수처리시설을 통하여 생산된 물은 수질이 낮고 수요자의 만족도가 매우 낮은 것으로 조사되었다.^{17,23)} 이러한 단점들로 인해서 응집/침전에 의한 단일 기술로 적용하는 사례는 드물고 원수의 오염 부하를 줄이기 위한 전처리 공정으로써 일부 적용하고 있다.

2.3.2. 전기화학적 기술

불소오염 지하수를 대상으로 전기를 이용한 응집공정으로 불소를 제거시키는 방안도 고려될 수 있다. 알루미늄 또는 철로 만들어진 전극(양극)에 전류를 공급하여 전기적 산화반응으로 생성된 응집성분으로 불소를 제거하고 음극에서 기체(수소)가 발생하여 응집된 고형물을 부유시켜 제거하는 기술이다.²⁴⁾ 전기화학, 응집, 부상의 반응으로 불소를 제거할 수 있는 전기응집은 화학 응집제를 사용하지 않기 때문에 슬러지의 발생량이 적고 제거효율이 높으며 빠른 반응시간으로

기술의 집약화가 가능하여 처리시설을 위한 많은 공간이 불필요하다. 최적 반응을 위한 pH조정과 불소이온과 경쟁관계에 있는 음이온이 존재하면 제거율이 저하되며 안정적인 전력의 공급과 높은 초기 시설비 및 전극 오염 방지 등을 위한 유지관리의 대안이 요구되는 처리방법이다.^{24,25)} Emamjomeh 연구진(2009)은 연속흐름식 전기응집 파일럿 시설을 운전하여 불소제거능과 운영비용을 검토하였다. 전기응집공정은 많은 양의 불소제거를 위해서는 높은 전류밀도가 요구되지만 불소 초기 농도가 5 mg/L인 조건에서는 동일한 처리용량에 대한 Nalgonda 공정에 비하여 0.36~0.61배의 비용이 소요되어 경제적인 것으로 분석되었다.²⁶⁾ 그러나 전기응집에 사용되는 알루미늄 전극 유지관리에 소요되는 비용은 총 운영비의 53%를 차지하고 공급하는 전류밀도와 초기 불소오염 농도가 증가할수록 총 비용이 증가하는 것으로 분석되어 전기응집공정의 경제성 확보를 위해서는 초기 불소농도 및 전극의 오염을 고려한 재질의 선정과 최적 전류밀도가 고려된 공정의 선정이 필요하다.

2.3.3. 이온교환 기술

이온교환수지를 이용하여 오염물의 이온을 치환하여 제거하는 기술로써 유해이온을 무해이온으로 치환하여 제거, 용존된 다양한 이온을 수지와와 친화력으로 분리 제거, 양이온 수지 및 음이온 수지의 조합으로 제거하는 방안 등이 있다. 보일러 용수의 경도 제거, 폐수 내 중금속 제거 및 회수 등에 이온교환수지 기술이 적용되고 있으며 불소 제거를 위해서는 암모늄 작용기를 갖는 강한 음이온 교환 수지를 이용해 암모늄 내 불소 이온을 수지의 염소 이온과 대체하여 제거가 가능하다. 이 반응은 레진이 모두 소진될 때까지 진행되고 이후 과량의 NaCl이 용해된 용수로 세척시키면 불소이온이 새로운 염소이온으로 대체되어 강한 전기음성도를 갖는 불소를 연속으로 제거시킬 수 있다.²⁷⁾ 10 mg/L 이상의 불소로 오염된 오염수의 정화를 위해서는 화학 침전법으로는 한계가 있고 불소이온을 선택적으로 제거할 수 있는 응집제(CeO_2)는 있으나 경제성이 낮아 이를 위해서 수지에 의한 이온교환능을 증대시키는 연구가 수행되었다. Ho 연구진(2004)은 다공성 구조의 mesoporous $\text{TiOx}(\text{OH})_y(\text{Ti oxohydroxide})$ 을 제조하여 지르코니아(zirconia)와 실리카(silica)를 반응시켜 이온교환능을 개선시켰다.²⁸⁾ 그러나 음이온 교환수지를 이용한 불소제거는 불소이온에 대한 선택도가 낮아 제거율이 낮아지는 결과가 도출되어 많은 연구들이 실리카 및 알루미늄 겔과 같은 무기 양이온 교환제나 철(III), 란탄(III), 세륨(IV), 지르코늄(IV)과 같은 양이온 교환기를 포함한 고가의 금속을 활용한 연구가 수행되었고 실용화 단계로는 진행되지 못했다.²⁹⁾

2.3.4. 분리막 기술

분리막을 활용한 기술은 주로 담수를 얻기 위한 기술로 적

용되고 있으나 불소제거에도 활용이 가능한 기술로써 역삼투, 전기투석 등이 있다. 막을 중심으로 둘 이상의 오염물이 섞인 혼합물이 용매와 함께 반투과성 막을 통하여 서로 다른 속도로 이동하여 분리되며 막은 생산하고자 하는 용수의 수질에 따라서 다양한 재질로 제작되는 얇은 고분자 필름으로 용매에 의하여 용해되거나 구김이 발생하지 않는 특성을 갖는다.

역삼투는 반투막을 통과하는 공급수에 고압을 인가하여 음이온을 제거하는 물리적 공정으로써 많은 장점이 있지만 막 세정 및 유지를 위한 전처리 시설 및 높은 유지관리비 요구, 높은 압력 공급에 의한 에너지 필요, 처리 후 농축수 처리 및 탈염에 의한 미네랄 추가 필요 등이 요구되어 저개발국가에 도입하기 위해서는 사전에 검토되어야만 하겠다. Kettunen과 Kesitalo(2000)는 먹는물에서 불소와 알루미늄의 제거를 위하여 분리막(역삼투 및 나노여과) 기술과 석회석 여과 공정을 적용하여 각각 95%와 76% 정도의 불소 제거 효율을 보였다.³⁰⁾ Ndiaye 연구진(2005)은 전자기기 제조 과정에서 발생하는 불산폐수로부터 불소제거를 위하여 역삼투 공정을 적용하였고 불소 제거율이 98% 이상으로 유지될 수 있었으며 Diawara 연구진(2011)은 세네갈의 높은 불소와 염분이 포함된 지하수를 정화시키기 위하여 나노여과 및 저압역삼투 (Low Pressure Reverse Osmosis, LPRO) 공정을 적용하였고 97~98.9%의 불소 제거율을 달성하였다.^{31,32)} 한편 나노여과막은 역삼투막보다는 막의 기공이 커서 용매 및 용질의 통과에 대한 저항이 적다. 결과적으로 요구되는 압력과 에너지가 역삼투 공정보다 낮아서 일부 기수에서 높은 효과를 보이고 있다. 불소를 포함한 모든 염을 제거하는 역삼투 공정과 비교하여 나노여과 공정은 부분적인 불소제거가 가능하고 운전방법에 따라서 투과수 내 적정 불소함량 조절이 가능하다.³³⁾ Dolar 연구진(2011)은 비료 산업폐수로부터 불소와 인산염 부하를 감소시키기 위하여 역삼투/나노여과 공정을 적용하여 역삼투막에서는 96% 이상, 나노여과로부터는 50-90%의 불소 제거 성과를 보였다.³⁴⁾ Pontie 연구진(2012)은 나노여과가 다른 할로젠화물 이온으로부터 선택적으로 불소를 제거할 수 있고 역삼투막보다 낮은 에너지 소비로 총 염도를 줄이고 불소를 제거할 수 있다고 제시하였다.³⁵⁾

전기투석은 이온교환막을 설치하고 전기장을 형성시키면 수용액 내의 전해질 이온물질이 정제 또는 농축되는 기술로써 양이온 교환막과 음이온 교환막 등을 교대로 위치시킴으로써 염 물질의 분리가 가능하다. 상온에서 상(Phase)의 변화없이 운전이 가능하여 에너지 효율적이고 적은 에너지의 투입으로도 오염물의 제거가 가능한 방법으로 알려져 있다.³⁶⁾ Zeni 연구진(2005)은 셀레늄 음이온막과 광중합성 음이온막을 이용하여 전기투석으로 불소제거 실험을 진행하였고 전류밀도에 따라서 셀레늄 음이온막에 의한 불소제거율이 69~97%로 나타났다. 또한 막을 통한 불소의

이동은 전류밀도와 주입농도에 따라서 증가하는 결과를 보였다.^{37,38)}

2.3.5. 흡착 기술

흡착은 이온 물질간의 물리적 또는 화학적 상호 작용에 의해서 오염물이 분리되어 물질의 표면으로 고정되는 표면 현상으로써 지하수 및 지표수에 과량으로 함유된 불소를 제거할 수 있는 가장 선호하는 방법으로 알려져 있다. 물에서의 불소의 흡착은 pH, 온도, 흡착질의 종류와 농도, 흡착제의 비표면적 등에 의해서 영향을 받고 그 중에서도 pH 조건이 불소제거에 있어서 중요한 영향을 주는 것으로 알려져 있다.³⁹⁾ 특별한 재질의 분리막과 높은 에너지가 요구되는 역삼투 공정이나 슬러지 발생이 많은 화학적 응집/침전을 이용하는 방법에 비해서 제거효과가 우수하고 공정 설계 및 운영이 용이하며 경제적 측면에서 가장 높은 선호도를 갖는 기술이다.^{19,40)} 원수의 다양한 pH 조건에서도 응집/침전에 의한 제거보다 낮은 불소함량의 제거가 가능하고 활성 알루미늄, 활성탄, 코코넛 껍질, 왕겨, 골탄, 커피박 등과 같이 다양한 흡착제를 제조 및 선택할 수 있어서 더욱 활용도가 높은 기술이며 가장 많이 적용되는 흡착제는 활성알루미늄과 활성탄으로 대표되고 있다.^{38,41-43)} Ku와 Chiou (2002)는 불소제거를 위한 운전 조건의 영향을 살펴보기 위해서 활성알루미늄을 흡착제로 하는 Lab 반응기(2 L)를 통한 실험을 진행하였다.⁴⁴⁾ 음이온의 불소를 제거하기 위해서는 pH가 가장 중요하여 4.0~6.0 구간에서 가장 높은 제거율을 보였고 온도는 크게 영향을 주지는 않는다는 결과를 제시하였다. 또한 음으로 하전된 알루미늄 표면에 대한 불소 이온의 정전기적 반발로 인해서 불소의 흡착이 산성조건에서는 지연되고 평형조건의 pH가 7.0보다 높을 때, 불소 흡착이 감소되는 것을 실험을 통하여 밝혔다. Gebrewold 연구진(2018)은 왕겨와 옥수수대로부터 화학적으로 개량시킨 활성탄을 비교 연구하였다. Column 실험에서 옥수수대 활성탄(제거율: 89% (5.8 mg/g))에 비하여 왕겨 활성탄은 최대 91%의 불소 제거율(흡착능 7.9 mg/g)을 보였고 흡착 동역학의 결과는 높은 상관 계수를 갖는 유사 2차 동역학 모델을 따르는 것으로 나타났다.⁴⁵⁾ 화학적으로 제조한 커피박과 옥수수대 기반의 흡착제로 불소이온 제거 실험을 수행한 Getachew 연구진(2015)은 pH 2.0의 조건에서 커피박 흡착제 주입량은 18 g/250 mL(접촉시간, 3 hr)이었으며 초기 불소 농도 10 mg/L에 대하여 제거율은 86%로 나타나 반응시간 및 흡착제 주입량 측면에서 옥수수대보다 우수한 것으로 나타났다.⁴³⁾

골탄은 동물뼈를 약 600℃에서 탄화시킨 다공성 물질로써 칼슘성분을 다량 함유하고 있어서 아프리카의 많은 지역에서 불소제거를 위한 수처리 공정에 적용하고 있다. 육류 소비가 지속적으로 증가함에 따라서 폐기되는 뼈의 양도 증가되기 때문에 폐기물 재활용 측면에서도 유익한 방안이 될 수

있고 동물의 종류, 연령, 골격의 부위에 따라서 성분 및 조직이 다른 특성을 갖고 있어 흡착제로써의 유리한 측면이 있다.⁴⁶⁾ 주로 소각을 통해서 폐기되는 동물뼈의 무기 인산칼슘($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3^+$, apatite) 성분은 생물학적 형태로써 탄화 또는 소결과정에서 수산화인회석(hydroxyapatite (HAP))으로 형태가 변화되어 이온교환, 침전 및 정전기적 상호작용의 복합적 반응으로 불소인회석($\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{F}_2$, fluoroapatite)을 생성 및 침전시켜 불소를 제거시킬 수 있다. 최적의 흡착성능을 위해서는 인산칼슘의 양과 형태가 중요하고 이는 탄화 온도 및 체류시간이 중요한 요소이다. 소 대퇴골 골탄 소성시에 온도가 650℃에서 700℃로 증가되면 비표면적이 62에서 69 m^2/g 으로 증가하고 총 공극 부피가 0.2에서 0.23 cm^3/g 으로 증가되었다. 그러나 1000℃ 이상으로 증가되면 부피는 0.02 cm^3/g 로 감소하였고 불소 제거능도 5.92에서 0 mg F/g으로 감소하였다.⁴⁷⁾ 동물 뼈의 종류 및 크기에 따라 다양할 수 있으나 일반적인 적정 소성온도는 500-700℃로써 이보다 낮으면 골탄에 유기물이 불완전 연소되어 처리된 물에 더 많은 유기물이 유출되고 더 높은 온도로 소성 및 탄화되면 HAP의 디하이드록실화(dehydroxylation)가 진행되어 불소제거능이 저하된다. 또한 금속 양이온(Al^{3+} , Fe^{3+} 등)으로 골탄의 표면을 개질 또는 코팅하여 CaF_2 , AlF_3 , FeF_3 의 형태로 표면에 형성시켜 불소제거능을 증대시킬 수도 있다.^{48,49)} Shahid 연구진(2019)은 소뼈를 열분해(350℃) 및 표면처리하여 골탄을 제조하였고 79.34 m^2/g 의 비표면적으로 약 10.56 mg F/g의 불소를 제거하였다.⁴⁸⁾ Kaseva (2006)은 탄자니아의 식수로부터 불소제거를 위해 골탄을 500℃(2시간)에서 탄화시켜 제조하였고 0.5-1.0 mm로 분쇄시켜 불소제거능을 실험한 결과 0.75 mg F/g의 불소를 흡착시켜 2분 동안의 접촉시간으로 70.64% 불소제거 결과를 도출하였다.^{50,51)} 이와 같이 골탄은 불소에 오염된 지표수 또는 지하수를 경제적인 측면, 처리 용량, 지속가능성 측면 등에서 적용될 수 있는 가장 대표적인 방안이다. 불소오염 원수의 탁도, pH, 잔류 이온농도 등이 불소제거에 영향을 주는 것으로 연구를 통하여 밝혀졌으나 아프리카 현지에서 이러한 모든 조건을 고려하기는 어렵다. 주로 골탄 제조를 위하여 동물뼈 종류, 소성온도, 소성을 위한 가마의 형태, 체류시간, 탄화된 골탄의 입자크기 정도를 검토할 수 있으며 Maeng 연구진(2020)은 에티오피아 현지 적용을 위한 골탄 생산을 위하여 동일한 조건의 가마 구현을 통해 소뼈를 대상의 적정 탄화온도와 체류시간에 따른 골탄의 성상을 분석하였다. 또한 에티오피아에서 가장 많이 사용되고 있는 골탄과 성능비교를 통하여 골탄 제조방안과 골탄에 의한 흡착공정의 최적 운전조건을 도출하여 적정기술을 제안하였다.⁵¹⁾ 대상국의 현지에서 불소제거를 위하여 용이하게 적용할 수 있는 골탄에 의한 원료별 탄화조건에 대한 내용을 Table 2에 정리하였고 원료 및 탄화조건에 따라서 다양한 흡착능을 갖는 것으로 분석된다.

Table 2. Removal capacity and experimental conditions for F⁻ removal on bone char.

Bone char Source	F ⁻ removal, mg/g	Charring Temp., °C	Surface area, m ² /g	Contact time, hr	Reference
Fish BC	5.01	400	98.7	1 hr	Alkurdi et al. ⁴⁶⁾
Cow BC	7.32	700	85	2 hr	Rojas-Mayorga et al. ⁴⁷⁾
Cattle bone	10.56	350	79.34	2 hr	Shahid et al. ⁴⁸⁾
Cattle bone	0.75	500	-	2 hr	Kaseva et al. ⁴⁹⁾
Cow BC	7.3	450	70.9	3 hr	Maeng et al. ⁵¹⁾
Al sulfate doped BC	31	700	-	-	Rojas-Mayorga et al. ⁴⁷⁾

Table 3. Advantages/disadvantages and energy consumption of various F⁻ treatment processes.

Method	Advantages	Disadvantages	Energy or Cost Consumption	Reference
Precipitation/coagulation	Generally utilized technique Technique is more practical and easy to understand	Required chemical dosages are high, Moderate efficiency, Aluminum salt produces sludge, Health impact due to aluminum solubility, Release of aluminium in treated water which may bring about Alzheimer's syndrome.	AUD 1/m ³	[26]
Adsorption	Locally available adsorbent material, high efficiency, Adsorption procedure is worthwhile, cost effective	High pH dependent, ionic competition, Regeneration required, Disposal of fluoride laden sludge, High concentration of total dissolved salts (TDS) can brings about fouling of the alumina bed.		
Ion Exchange	High fluoride Removal 90-95%, Retain the taste and color of water intact	Interference of the anion slat (sulphate, carbonate, phosphate and alkalinity), Longer reaction period, Higher cost		
Dialysis	Good potential	Membrane fouling, Frequent cleaning requires, Technology is not mature enough for application on large scale		
Electrodialysis	Effective technique, No chemical required, Works under wide pH range, High water recovery	Higher power consumption, Potential formation of H ₂ in the electrode rinse, Skilled labors require	0.8-1.7 kWh/m ³	[37]
Electro-coagulation	Good efficiency	Costly process, Higher power consumption, frequent replacement of anode required	AUD 0.6/m ³	[26]
R/O and NF Membrane separation	High water productivity, No chemicals requires, Works under wide pH range,	Highly expensive technique when contrasted with other defluoridation techniques, Membrane fouling, scaling or membrane degradation, energy consumption, Remineralization of treated water requires	2.4-8.2 kWh/m ³	[55]
Biotechniques (biochar, bone char etc)	Economical, High efficiency, environment friendly, No regeneration required	Decomposition/degradation of biosorbents		

2.3.6. 나노기술

나노물질은 넓은 표면적, 전기화학적 특성, 크기에 의한 물리화학적 특성변화 등으로 수처리 기술에 다양하게 적용되고 있다. 나노물질을 이용한 기술은 원자 및 분자 규모(1-100 nm)에서 대상물질을 제거하는 재료나 이를 이용한 시스템에 대한 기술을 포함하며 높은 비표면적, 우수한 선택성, 가변적인 세공크기, 빠른 반응속도 등으로 다양한 흡착공정에 적용되고 있다. Sundaram 연구진(2009)은 생체 고분자인 키틴을 이용한 나노하이드록시아파타이트/키틴(n-HApCh) 합성물을 이용하여 표면에 불소를 흡착시키는 연구를 수행하였다. n-HApCh 합성물에 의한 불소의 흡착속도는 유사 2차 및 기공 확산 패턴을 따르고 나노하이드록시아파타이트(n-HAp)의 흡착능

(1.30 mg/g)보다 더 높은 2.84 mg/g의 흡착능을 갖는 것으로 나타났다.⁵²⁾ Bhaumik 연구진(2010)은 Fe₃O₄/polypyrrole 조성 나노 복합체를 흡착제로 불소제거 실험을 수행한 결과, 나노 입자의 매우 작은 비표면적에 의해서 빠른 불소 흡착력을 보였고 온도, 반응 pH, 흡착제 주입량에 대해서 높은 친화성을 갖는 것으로 나타났다. 20.0 mg/L의 불소 잔류농도에 대하여 제작된 흡착제 주입으로 0.3 mg/L까지 제거 가능한 것으로 나타났다.⁵³⁾ Chen 연구진(2009)은 고분자 라텍스를 바인더로 하는 나노크기의 Fe-Al-Ce를 모래에 코팅한 흡착제를 사용하여 pH 7.0에서 2.22 mg/g (27.5% 코팅)의 불소 흡착능을 보였고 컬럼 테스트에서는 초기 불소농도 5.5 mg/L의 조건에서 최종 유출수가 1.0 mg/L 이하로 처리되는 결과를 보였다.⁵⁴⁾

Nanomagnesia의 제조를 통하여 수질정화 가능성을 실험한 Maliyekkal 연구진(2008)은 개발 소재에 의한 불소 흡착 제거가 매우 우수하고 지하수에서 일반적으로 발생하는 pH 범위에서 흡착량이 변하지 않는다는 것을 보였다. 다양한 이온들의 존재에 대한 불소 제거율에 미치는 영향도 조사하여 인산염은 가장 큰 경쟁 이온이었고 다음이 중탄산염 이온으로 나타났다.⁵⁵⁾ 이와 같은 나노기술에 의한 불소제거는 원수의 온도, pH의 영향, 흡착제 주입량, 반응속도 등의 내부의 측면에서 우수한 흡착제거능을 나타내는 것으로 연구결과를 나타내고 있다. 그러나, 아프리카 지역과 같이 높은 오염도를 보이는 지하수 및 지표수를 대상으로 안전한 먹는 물 확보를 위한 적용 방안으로 좋은 대안 일수 있으나 지속가능성을 위해서는 흡착제 합성을 위한 기술력 확보, 현지의 대량 생산 및 먹는물 처리 시설운영을 위한 인프라 구축 등이 함께 고려된 유지관리 방안 및 계획의 고려가 요구된다. 이상의 기술에 대한 장단점과 경제성을 Table 3에 요약 정리하였다.

2.4. 불소 제거를 통한 안전한 먹는물 공급 적정기술의 제안

불소에 의한 지표수 또는 지하수 오염은 국내의 경우 반도체 및 비료 생산 등의 산업공정의 산업폐수에서 주로 발생되는 반면 아프리카 대륙의 많은 국가에서는 불소함유가 높은 지반의 특성으로 인해서 먹는물의 원수에 불소오염이 빈번하게 발생되고 있다. 이를 제거하기 위한 기술의 도입은 대상국의 경제 사회적 배경과도 밀접한 관련이 있다.⁴⁾ 아프리카 신흥개도국의 저소득 지역사회에 적정기술의 도입을 위해서는 다음과 같은 고려사항이 검토될 수 있다; 1) 현지에서 쉽게 마련될 수 있는 재료와 기술의 선정, 2) 대부분의 지역사회가 저소득층임을 감안한 낮은 초기 투자 및 유지관리 비용, 3) 전력공급 없이도 가능한 운영방식의 기술, 4) 물리화학적 오염물질과 병원성 미생물의 동시 제거, 5) 처리된 물에 대한 부작용,⁵⁰⁾ 이러한 요건을 만족시킬 수 있는 저비용의 현지기술로는 염소처리(chlorination)와 가열(boiling)이 있으나 잠재적인 발암물질의 생성 또는 용존물질의 증가를 유발할 수 있다. 앞에서 조사된 분리막(RO, Reverse Osmosis)을 이용한 수처리 기술은 오염물 제거를 위한 높은 에너지(2.4~8.2 kWh/m³)가 요구되고 유지관리 측면에서도 많은 비용이 필요한 공정으로써 대규모 플랜트 공정 시스템으로 도입을 선호하는 방안이다.⁵⁶⁾ 대부분 선진국으로부터 수입하여 적용가능하고 전문지식을 갖춘 인력이 필요하여 저소득 지역사회에 도입을 위해서는 추가 검토가 필요하다. 반면에 화학적 응집제를 이용한 불소제거 기술은 전문적인 배경지식이 없어도 적용이 용이하며 비용 측면에서도 유리하여 아프리카의 많은 신흥개도국 마을 공동체에서 소규모로 활용하고 있는 기술이다. 그러나 불소 이외의 용존이온, pH, 알칼리도 등의 화학적 특성에 따라서 투입 해야할 약품의 양이 증가하고 이에 따른 슬러지의 양도 증가되는 문제점이 발생된다. 그래서 전문가들은

앞에서 언급한 바와 같이 현지에서 제작이 가능한 흡착제에 의한 바이오차 흡착필터나 영가철과 같은 금속이온 필터를 활용한 불소 제거방안을 주로 제안하고 있으며 일부 긍정적인 결과가 도출되고 있다.^{15,22,38,43)} 바이오매스 기반의 폐기물(커피박 및 야자수 껍질 등)을 활용하는 골탄은 흡착성능도 우수하고 경제성 측면에서도 상용화된 활성탄 제품의 1/6 수준으로 가격 경쟁력이 높은 것으로 평가되고 있다.⁵⁷⁾ 그러나 대 상국에 따라서 골탄의 원료물질에 대하여 종교 및 문화적인 배경이 영향을 미칠 수 있으므로 제조 기술의 완성도(소성온도 및 체류시간 등) 뿐만 아니라 종교적 이슈문제도 충분히 고려되어야 하겠다.⁴⁾

3. 결론

불소로부터 안전한 먹는물의 확보를 위한 적정기술의 제안을 위하여 불소 원소의 물리화학적 특성, 아프리카 대륙 중심의 환경오염 현황, 공중보건상 피해 영향 등의 조사를 바탕으로 지표 및 지하수로부터 오염물질인 불소를 제거하기 위한 기술 현황 및 최근 연구사례를 조사하였고 아프리카 대륙 현지의 조건을 고려한 적정기술의 적용방안을 제시 및 검토하였다.

아프리카 대륙의 많은 국가들은 최근에 인구증가 및 도시화에 따른 경제성장이 빠르게 진행되고 있고 이에 따라 용수의 수요도 급증하고 있다. 그러나 도로 및 전력공급과 같은 사회 전반적인 인프라와 정수장 및 하수처리장과 같은 환경기초시설의 부족으로 지표수보다는 지하수가 마을단위의 먹는물의 수원으로 이용되고 있고 미처리된 오염하수가 하천으로 배출되어 방류수역의 부영양화가 심화되고 있어 공중위생 및 국민 복지 수준이 개선되지 못하고 있다.

특히 아프리카 SSA지역을 중심으로 분포하는 지하수와 지표수는 지반 특성상 불소 함유량이 높고 해당 지역 주민들은 불소에 오염된 지하수를 지속적으로 이용해 왔기 때문에 특히 유아 및 여성들에게서 심각한 불소중독(fluorosis)에 의한 고통을 받고 있다. 아프리카 각 국가의 정부는 이를 해결하기 위하여 국제협력기구를 통하여 불소문제를 해결하고자 노력하고 있고 우리나라를 포함한 다국적 기업들도 국제협력사업을 통해서 지원을 하고 있다.

불소를 제거하는 높은 수준의 기술이 제시될 수 있으나 분리막 기술과 같은 높은 에너지 및 운영관리비와 기술력이 요구되는 선진기술보다는 현지에서 용이하게 생산과 자급이 가능하여 지속가능한 발전이 가능한 기술의 적용이 필요하겠다. 최근 아프리카의 사회경제적인 조건과 기술환경적인 여건에서 가능한 적정기술로는 농작물 및 동물 폐기물로 제조가능한 바이오차나 골탄에 기반한 흡착제를 활용한 불소 제거가 경제적으로나 지속가능성 측면에서 가장 적합한 것으로 판단된다. 그리고 폐기물의 탄화 및 소성과 같은 제조과정의 조건에 따

라서 생산되는 흡착제의 흡착능이 저하될 수 있으므로 기술력 확보가 필요하고 원료가 되는 동물뼈에 대한 종교적인 문제도 충분히 고려되어야 하겠다.

경제발전예에 따라서 국민들의 환경보건 의식수준이 높아지고 환경분야의 오염물질에 대한 규제법령과 사회제도가 정비된다면 지금의 아프리카의 도시환경은 개선될 것이며 공중보건의 향상과 함께 영유아의 불소증도 감소할 것으로 판단된다. 이를 위해서는 다각도의 국제협력을 통한 아프리카 각국의 정부 및 지자체와 함께 지속가능성이 확보될 수 있는 자구책 마련도 필요할 것으로 사료된다.

Acknowledgement

본 연구는 환경부의 재원으로 한국환경산업기술원의 환경시설 재난재해 대응기술개발사업(2019002870001)의 연구비 지원으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

References

1. K. H. Ryu, The definition of human right to water and its effect on water rights, *dong-a Law review*, 64, 279-308 (2014).
2. C. Brown, P. Neves-Silva, L. Heller, The human right to water and sanitation: a new perspective for public policies. *Ciencia & saude coletiva*, 21, 661-670(2016).
3. World Health Organization, Progress on household drinking water, sanitation and hygiene 2000-2017: special focus on inequalities. World Health Organization(2019).
4. Y. H. Yoon, A study on strategies to disseminate standard technology for sustainable drinking water purification in developing countries of Africa, KICT Institutional Research Project final report (KICT 2020-125), KICT(2020).
5. Beles Engineering PLC, Environmental and social impact assessment of the wastewater treatment plant and sewer lines expansion and rehabilitation in the Kaliti catchment. Addis Ababa Water and Sewerage Authority (AAWSA), Addis Ababa, Ethiopia(2014).
6. N. R. Johnston, S. A. Strobel, Principles of fluoride toxicity and the cellular response: A review, *Archives of toxicology*, 94(4), 1051-1069(2020).
7. 2019 Global Market Entry Strategy II, China, Latin America, Africa, 18-078, KOTRA Global Market, 2018.
8. J. Malago, E. Makoba, A. N. Muzuka, Fluoride levels in surface and groundwater in Africa: a review. *Am J Water Sci Eng*, 3(1), 1-17(2017).
9. V. Kimambo, P. Bhattacharya, F. Mtalo, J. Mtamba, A. Ahmad, Fluoride occurrence in groundwater systems at global scale and status of defluoridation - state of the art, *Groundwater for Sustainable Development*, 9, 100223(2019).
10. K. Brindha, L. Elango, Fluoride in groundwater: causes, implications and mitigation measures. In: Monroy, S.D. (Ed.), *Fluoride properties, applications and environmental management*, ACADEMIA, pp.111-136 (2011).
11. K. Kim, G. Y. Jeong, Factors influencing natural occurrence of fluoride-rich groundwaters: a case study in the southeastern part of the Korean Peninsula, *Chemosphere*, 58(10), 1399-1408(2005).
12. N. Das, A. Das, K. P. Sarma, M. Kumar, Provenance, prevalence and health perspective of co-occurrences of arsenic, fluoride and uranium in the aquifers of the Brahmaputra River floodplain. *Chemosphere*, 194, 755-772 (2018).
13. E. H. Lugwisha, G. Lunyungu, Water defluoridation capacity of Tanzanian kaolinfeldspar blend adsorbents, *American J. Appl. Chem.* 4(3), 77-83(2016).
14. L. Lv, J. He, M. Wei, D. G. Evans, X. Duan, Factors influencing the removal of fluoride from aqueous solution by calcined Mg-Al-CO₃ layered double hydroxides. *Journal of Hazardous Materials*, 133(1-3), 119-128(2006).
15. B. Thole, Ground water contamination with fluoride and potential fluoride removal technologies for East and Southern Africa, *Perspectives in water pollution*, Imran Ahmad Dar, Mithas Ahmad Dar(Eds.), InTech, Croatia, pp. 65-95(2013).
16. WHO, Guidelines for Drinking-Water Quality, 4th Ed. World Health Organization, Geneva, Switzerland, pp.104-108 (2011).
17. T. L. Yami, J. F. Chamberlain, F. Z. Beshah, D. A. Sabatini, Performance enhancement of Nalgonda technique and pilot testing electrolytic defluoridation system for removing fluoride from drinking water in East Africa, *Afr. J. Environ. Sci. Technol.*, 12(10), 357-369 (2018).
18. S. Roy, G. Dass, Fluoride contamination in drinking water - a review, *Resour. Environ*, 3(3), 53-58(2013).
19. K. M. K. Kut, A. Sarswat, A. Srivastava, C. U. Pittman Jr, D. Mohan, A review of fluoride in African groundwater and local remediation methods, *Groundwater for Sustainable Development*, 2-3, 190-212(2016).
20. E. N. Nyanchaga, T. Bailey, Fluoride contamination in drinking water in the Rift Valley, Kenya and evaluation of the efficiency of a locally manufactured defluoridation filter, *J. Civ. Eng. JKUAT*, 8, 79-88(2003).
21. A. I. Ndé-Tchoupé, R. Tepong-Tsindé, M. Lufingo, Z. Pembe-Ali, I. Lugodisha, R. I. Mureth, M. Nkinda, J. Marwa, W. Gwenzi, T. B. Mwamila, M. A. Rahman, White teeth and healthy skeletons for all: The path to universal fluoride-free drinking water in Tanzania. *Water*, 11(1), 131(2019).
22. S. Jagtap, M. K. Yenkie, N. Labhsetwar, S. Rayalu, Fluoride in drinking water and defluoridation of water. *Chemical reviews*, 112(4), 2454-2466(2012).
23. S. Lunge, R. Biniwale, N. Labhsetwar, S. S. Rayalu, User perception study for performance evaluation of domestic defluoridation techniques for its application in rural areas, *J. Hazard. Mater.*, 191(1-3), 325-332(2011).
24. S. S. Waghmare, T. Arfin, Fluoride removal from water by various techniques, *Int. J. Innov. Sci. Eng. Technol.*, 2(3), 560-571(2015).

25. J. Zhu, H. Zhao, J. Ni, Fluoride distribution in electrocoagulation defluoridation process, *Sep. Purif. Technol.*, 56(2), 184-191 (2007).
26. M. M. Emamjomeh, M. Sivakumar, Fluoride removal by a continuous flow electrocoagulation reactor, *J. Environ. Manage.*, 90(2), 1204-1212(2009).
27. R. C. Maheshwari, Fluoride in drinking water and its removal, *J. Hazard. Mater.*, 137(1), 456-463 (2006).
28. N. L. Ho, T. Ishihara, S. Ueshima, H. Nishiguchi, Y. Takita, Removal of fluoride from water through ion exchange by mesoporous Ti-oxohydroxide, *J. Colloid Interface Sci.*, 272(2), 399-403(2004).
29. S. Meenakshi, N. Viswanathan, Identification of selective ion-exchange resin for fluoride sorption, *J. Colloid Interface Sci.*, 308(2), 438-450(2007).
30. R. Kettunen, P. Keskitalo, Combination of membrane technology and limestone filtration to control drinking water quality, *Desalination*, 131, 271-283(2000).
31. P. I. Ndiaye, P. Moulin, L. Dominguez, J. C. Millet, and F. Charbit, Removal of fluoride from electronic industrial effluent by RO membrane separation, *Desalination*, 173, 25-32(2005).
32. C. K. Diawara, S. N. Diop, M. A. Diallo, M. A. Farcy, Determination performance of nanofiltration (NF) and low pressure reverse osmosis (LPRM) membranes in the removal of fluorine and salinity from brackish drinking water, *J. Water Resour. Prot.*, 3, 912-917(2011).
33. K. Hu, J. M. Dickson, Nanofiltration membrane performance on fluoride removal from water, *Journal of Membrane Science*, 279(1-2), 529-538(2006).
34. D. Dolar, K. Košutić, B. Vučić, RO/NF treatment of wastewater from fertilizer factory—removal of fluoride and phosphate, *Desalination*, 265(1-3), 237-241(2011).
35. M. Pontie, H. Dach, A. Lhassani, C. K. Diawara, Water defluoridation using nanofiltration vs. reverse osmosis: the first world unit, Thiadiaye (Senegal), *Desalin. Water Treat.*, 51(1-3), 164-168(2013).
36. B. Y. Cho, A Study on Seawater Desalination Using Electrodialysis Reversal, *KSCE J. Civ. Eng.*, 25(5B), 393-399 (2005)
37. L. Serra, J. Uche, G. Raluy, Desalination as a sustainable source of fresh water provision?. In *Sustainable Development Of Energy, Water And Environment Systems*, 373-392(2007)
38. M. Zeni, R. Riveros, K. Melo, R. Primieri, S. Lorenzini, Study on fluoride reduction in artesian well - water from electrodialysis process, *Desalination*, 185, 241-244(2005).
39. P. Loganathan, S. Vigneswaran, J. Kandasamy, R. Naidu, Defluoridation of drinking water using adsorption processes. *Journal of hazardous materials*, 248, 1-19(2013).
40. P. Pillai, S. Dharaskar, S. Pandian, H. Panchal, Overview of fluoride removal from water using separation techniques, *Environ. Technol. Innovation*, 101246(2020).
41. R. S. Sathish, N. S. R. Raju, G. S. Raju, G. Nageswara Rao, K. A. Kumar, C. Janardhana, Equilibrium and kinetic studies for fluoride adsorption from water on zirconium impregnated coconut shell carbon, *Sep. Sci. Technol.*, 42(4), 769-788 (2007).
42. V. Ganvir, K. Das, Removal of fluoride from drinking water using aluminum hydroxide coated rice husk ash, *J. Hazard. Mater.*, 185(2-3), 1287-1294(2011).
43. T. Getachew, A. Hussien, V. M. Rao, Defluoridation of water by activated carbon prepared from banana (*Musa paradisiaca*) peel and coffee (*Coffea arabica*) husk, *Int. J. Environ. Sci. Technol.*, 12(6), 1857-1866 (2015).
44. Y. Ku, H. M. Chiou, The adsorption of fluoride ion from aqueous solution by activated alumina, *Water, Air, Soil Pollut.*, 133(1), 349-361(2002).
45. B. D. Gebrewold, P. Kijjanapanich, E. R. Rene, P. N. Lens, A. P. Annachhatre, Fluoride removal from groundwater using chemically modified rice husk and corn cob activated carbon, *Environ. Technol.*, 40(2), 2913-2927(2019).
46. S. S. Alkurdi, R. A. Al-Juboori, J. Bundschuh, I. Hamawand, Bone char as a green sorbent for removing health threatening fluoride from drinking water, *Environ. Int.*, 127, 704-719 (2019).
47. C. K. Rojas-Mayorga, J. Silvestre-Albero, I. A. Aguayo-Villarreal, D. I. Mendoza-Castillo, A. Bonilla-Petriciolet, A new synthesis route for bone chars using CO₂ atmosphere and their application as fluoride adsorbents, *Micropo. Mesopo. Mater.*, 209, 38-44(2015).
48. M. K. Shahid, J. Y. Kim, Y. G. Choi, Synthesis of bone char from cattle bones and its application for fluoride removal from the contaminated water, *Groundwater Sustain. Develop.*, 8, 324-331(2019).
49. M. E. Kaseva, Optimization of regenerated bone char for fluoride removal in drinking water: a case study in Tanzania. *J. Water Health*, 4(1), 139-147(2006).
50. K. Singh, D. H. Lataye, K. L. Wasewar, C. K. Yoo, Removal of fluoride from aqueous solution: status and techniques, *Desalin. Water Treat.*, 51(16-18), 3233-3247 (2013).
51. M-S Maeng, J-S. Byun, H-J. Park, G-A. Shin, Optimum operating conditions of drinking water treatment system for fluoride removal using high adsorption bone char, *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 42(11), 520-528(2020).
52. C. S. Sundaram, N. Viswanathan, S. Meenakshi, Fluoride sorption by nano-hydroxyapatite/chitin composite, *J. Hazard. Mater.*, 172(1), 147-151(2009).
53. M. Bhaumik, T. Y. Leswiti, A. Maity, V. V. Srinivasu, M. S. Onyango, Removal of fluoride from aqueous solution by polypyrrole/Fe₃O₄ magnetic nanocomposite, *J. Hazard. Mater.*, 186(1), 150-159(2011).
54. L. Chen, H. Wu, T. Wang, Y. Jin, Y. Zang, X. Dou, Granulation of Fe-Al-Ce nano adsorbent for fluoride removal from drinking water by spray coating on and in a fluidized bed, *Powder Technol.*, 193, 59-64(2009).
55. M. S. Maliyekkal, S. Shukla, L. Philip, I. M. Nambi, Enhanced fluoride removal from drinking water by magnesite-amended activated alumina granules, *Chem. Eng. J.*, 140, 183-192(2008).
56. P. G. Youssef, R. K. Al-Dadah, S. M. Mahmoud,

Comparative analysis of desalination technologies, Energy Procedia, 61, 2604-2607(2014).

57. S. S. Alkurdi, I. Herath, J. Bundschuh, R. A. Al-Juboori, M. Vithanage, D. Mohan, Biochar versus bone char for a sustainable inorganic arsenic mitigation in water: What needs to be done in future research?, Environ. Int., 127, 52-69 (2019).

Declaration of Competing Interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Authors and Contribution Statement

Younghan Yoon

Department of Environmental Research, Korea Institute of Civil Engineering and Building Technology, Senior Researcher, ORCID[®]: 0000-0002-8187-8223, Conceptualization, Methodology, Project administration, Supervision, Visualization, Writing - original draft, Writing - review and editing.

Jae-Hyeoung Park

G&C Environmental Solution, CEO, ORCID[®]: 0000-0001-9466-7604, Data curation, Data analysis.