

산 처리에 의한 파래(*Enteromorpha* sp.)의 유해 중금속 제거

목종수* · 손광태¹ · 이태식 · 권지영 · 박근바위 · 김지회

국립수산과학원 식품위생가공과, ¹국립수산과학원 남동해수산연구소

Elimination of Harmful Heavy Metals from Sea Lettuce *Enteromorpha* sp. with Acid Treatment

Jong Soo Mok*, Kwang Tae Son¹, Tae Seek Lee, Ji Young Kwon, Kunbawui Park and Ji Hoe Kim

Food Safety and Processing Research Division, National Institute of Fisheries Science, Busan 46083, Korea
¹Southeast Sea Fisheries Research Institute, National Institute of Fisheries Science, Tongyeong 53085, Korea

The elimination of harmful heavy metals (Cd, Cr, and Pb) from sea lettuce *Enteromorpha* sp. was evaluated in filtered seawater over a pH range of 2.0-4.0 using citric, hydrochloric, and nitric acids. We also evaluated the quality of sea lettuce samples after release of their internal constituents into seawater solutions containing acids. The heavy metals that accumulated in raw sea lettuce after incubation for 3 days in seawater containing Cd, Cr, and Pb were, in descending order, Pb (120.45 µg/g), Cr (86.04 µg/g), and Cd (18.35 µg/g). The rate of elimination of heavy metals from sea lettuce was higher at lower pH for all of the acids used. However, the color of the sea lettuce changed adversely at below pH 2.5. The heavy metals in sea lettuce samples after 10 min in seawater at pH 3.0 containing the three acids were eliminated in the order Pb (42.2-78.0%), Cd (51.8-55.3%), and Cr (14.0-32.8%). The quality of the sea lettuce was not affected when it was incubated for 30 min at pH above 3.0. The maximum elimination of heavy metals from sea lettuce occurred when it was soaked for 10 min in seawater at pH 3.0 containing citric acid.

Key words: Sea lettuce, Heavy metal, Citric acid, Elimination, Organic acid

서론

우리나라는 세계에서 해조류를 가장 많이 섭취하는 국가 중의 하나로 오래 전부터 해조류를 즐겨 이용해 왔다. 최근 해조류 양식기술이 발달되어 생산량이 크게 증가되고 있으며, 우리나라는 2014년에 약 110만톤을 생산하여 세계에서 4번째로 많은 생산량을 보였다(FAO, 2014). 특히, 해조류 중에서 파래(*Enteromorpha* sp.)는 2005년에 1,060톤이 생산되던 것이 10년이 지난 2015년에는 7,661톤이 생산되어 7배 이상 증가하였다(Statistics Korea, 2015). 바다에 서식하는 해조류는 Mg, Ca, I, Fe, Zn 등 인체에 필요한 필수 미량원소를 많이 함유하고 있으며, 해조류 종류에 따라서 인체에 유용한 생리활성을 나타내는 각종 유효성분도 많이 함유하고 있다. 특히, 성인병과 비만 예방 등에 효과가 있다는 것이 많은 연구자에 의해서 보고되었고, 건강식품으로서도 주목을 받고 있다(Cho et al., 1995; Im et al., 2006; Shon, 2009; Son et al., 2012; Mok et al., 2016).

한편, 육상에서 바다로 유입되는 오염물질들은 희석, 확산, 분

해 등의 과정을 통하여 감소되지만, 이와는 반대로 생물에 있어서는 생물농축 과정을 통하여 오히려 중금속 등의 오염 물질들이 농축하게 된다. 이에 연안 해역에서 서식하는 파래, 김, 미역 등의 해조류는 중금속 오염에 노출되기 쉽고, 중금속을 체내 축적하여 이를 섭취하는 사람에게 건강상 유해를 미칠 우려가 있다(Mok et al., 2005; Son et al., 2012). 특히, As, Cd, Cr, Hg, Pb 등의 유해 중금속은 미량이 존재하더라도 인체에 위해를 일으킬 수 있다(EOS Ecology, 2012; Mok et al., 2014; Mok et al., 2015a, 2015b). 우리나라에서 파래, 김 등의 해조류에 존재하는 유해 중금속(Cd, Cr 및 Pb)의 함량에 관하여는 많은 연구가 수행되었다(Choi et al., 1998; Kim et al., 2003; Kim et al., 2005; Mok et al., 2005; Hwang et al., 2007; Son et al., 2012). 또한, 해조류가 유해 중금속을 잘 축적하는 특성을 이용하여 해조류를 이용한 오염수 중에 존재하는 중금속 제거에 관한 연구는 다수 보고되어 있으나(Suzuki et al., 2005; Ahmady-Asbchin et al., 2009; Mithra et al., 2012), 파래 중에 존재하는 중금속 제거에 대한 논문은 확인 할 수 없었다.

<http://dx.doi.org/10.5657/KFAS.2017.0001>



This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

Korean J Fish Aquat Sci 50(1) 001-007, February 2017

Received 10 January 2017; Revised 14 February 2017; Accepted 22 February 2017

*Corresponding author: Tel: +82. 51. 720. 2630 Fax: +82. 51. 720. 2619

E-mail address: mjs0620@korea.kr

본 연구에서는 우리나라에서 소비자들이 많이 섭취하는 파래의 안전성을 확보하기 위하여 파래에 함유된 유해 중금속(Cd, Cr, Pb)을 효과적으로 제거하고자 하였다. 이를 위하여 파래에 인위적으로 유해 중금속을 축적시켰으며, 이들 유해 중금속의 제거를 위하여 질산, 염산 및 구연산 등의 산을 이용한 최적 제거 조건을 검토하였다.

재료 및 방법

시료 및 시약

파래(*Enteromorpha* sp.) 시료는 창원시 용원 소재 위판장에서 판매되고 있는 것을 직접 구입하여 Whirl-Pak bag (25.4×50.8 cm, Nasco)에 담아 아이스박스에 넣고 10℃ 이하로 유지시키면서 실험실로 운반하였다. 실험실로 운반된 시료는 즉시 여과해수로 조체에 부착된 혐잡물을 제거한 다음 탈수하여 중금속 제거 시험을 위하여 사용하였다.

중금속 분석을 위한 전처리 시약으로 질산(Merck, supra-pure grade, Darmstadt, Germany)을 사용하였고, 물은 초순수장치(Milli-Q Biocel, Millipore, Billerica, MA, USA)로 제조한 초순수를 사용하였다. 모든 초자기구는 5% 질산 용액에 24시간 이상 침지시킨 후 초순수로 깨끗이 씻어 건조시켜서 사용하였다. 중금속 분석을 위한 표준용액(Merck, Darmstadt, Germany)은 초순수로 희석하여 사용하였다.

유해 중금속(Cd, Cr, Pb) 및 미네랄 함량 분석

파래 중의 유해 중금속 및 미네랄 함량 분석을 위한 시료의 전처리는 식품공전(KMFDS, 2016)에 언급된 습식분해법을 일부 변경하여 사용하였다. 즉, 파래 시료를 초순수로 가볍게 씻어 동결건조기(FDU-2100, EYELA, Tokyo, Japan)로 건조한 후 분쇄하여 사용하였다. 그리고 파래 분말 시료 1 g을 테프론 튜브에 넣고 65% 질산 10 mL를 첨가하여 상온에서 150분간 방치한 후 80℃에서 400분간 가열 분해하였다. 가열 분해한 시험용액의 질산은 완전히 휘발시키고, 2% 질산으로 재차 용해하여 여과한 다음 100 mL로 조정하여 실험에 사용하였다.

중금속 및 미네랄 함량은 유도결합플라즈마 질량분석기(ICP-MS, Perkin Elan DRC II, Waltham, MA, USA)로 분석하였으며, working 표준용액은 1,000 mg/kg의 표준용액(Merck, Darmstadt, Germany)을 희석하여 사용하였다. 유해 중금속(Cd, Cr, Pb)의 회수율은 표준인정물질인(Certified Reference Material)인 Dorm-3 (National Research Council, Nova Scotia, Canada)를 사용하여 측정하였으며, 회수율은 92.1-98.3%로 AOAC International (2002)에서 요구하는 수준을 만족하였다.

파래 중의 유해 중금속 제거를 위한 최적 산처리 조건 검토

파래 시료에 유해 중금속(Cd, Cr, Pb)을 인위적으로 농축시

킨 후 파래 중에 농축된 중금속을 산을 이용하여 제거시켰다. 즉, 유해 중금속의 농축 정도를 측정하였으며, 산의 종류 및 첨가량에 따른 제거 효과 정도를 검토하여 최적 산처리 조건을 검토하였다.

유해 중금속 농축을 위하여 중금속을 각각 0.5 µg/mL 농도가 되도록 첨가한 여과해수(pH 8.2)에 탈수한 파래 시료를 넣고, 온도 10±2℃, 조도 550±10 lx에서 정치 배양하면서 중금속을 인위적으로 농축시켰다. 이때, 파래는 해수에 1:30 (w/v)비율로 첨가하였으며, 동일한 중금속을 함유한 해수를 1일 1회 환수하였다. 또한, 유해 중금속을 인위적으로 농축시킨 파래 시료는 조체에 부착한 중금속을 제거하기 위하여 충분한 양의 여과해수로 세정한 후 탈수하였다. 그리고 탈수한 파래 시료는 구연산(citric acid), 염산(hydrochloric acid), 질산(nitric acid)을 첨가하여 pH를 2.0, 2.5, 3.0 및 4.0으로 조정된 해수에 넣고 처리시간에 따른 중금속의 제거효율과 품질변화를 측정하였다. 이때, 파래의 품질변화 지표로서는 세포 내부 물질의 용출 정도를 측정하기 위하여 산 처리액의 흡광도를 265 nm에서 측정하였다.

통계처리

실험결과의 통계처리는 SAS 프로그램(SAS Institute, Cary, NC, USA)을 이용하였으며, 시료간의 차이 검증은 일원배치 분산분석(ANOVA)을 사용하였다. 또한, Duncan's multiple range test에 따라 $P<0.05$ 수준에서 중금속 농도 간의 유의성을 검증하였다(Steel and Torrie, 1980).

결과 및 고찰

파래의 유해 중금속 농축

파래에 유해 중금속을 인위적으로 농축시키기 위하여 유해 중금속(Cd, Cr, Pb)을 첨가한 해수에서 파래를 넣어 시간 경과에 따른 유해 중금속의 농축 함량 변화는 Fig. 1에 나타내었다. 유해 중금속 중에서 파래는 Pb를 가장 잘 농축하였으며, 다음으로 Cr, Cd 순이었다($P<0.05$). 또한 시간 경과에 따른 파래 중의 중금속 함량은 초기 농도가 건조중량 당 Cd이 0.08 µg/g, Cr이 2.57 µg/g 및 Pb이 0.51 µg/g이었던 것이, 배양기간이 연장될수록 증가하는 경향을 나타내었다. 그러나 장기간 배양을 하면 파래의 조체 변색 등 파래 조직에 부정적 영향이 미칠 수 있으며, 시험 3일 후에는 Pb를 제외하고는 큰 변화가 없었다. 또한 3일간만 배양하여도 중금속 제거 시험을 위한 유해 중금속이 충분히 농축되는 것으로 확인되었다. 따라서 향후 실험에 있어서 3일 동안 농축시킨 시료를 중금속제거 시험을 위한 시료로 사용하였다. 중금속을 인위적으로 첨가한 해수에서 파래 시료를 3일간 배양하였을 때 중금속 농도는 건조중량 당 Pb (120.45 µg/g), Cr (86.04 µg/g), Cd (18.35 µg/g) 순으로 농축하였다. Mok et al. (2016)은 중금속을 인위적으로 첨가한 해수에서 김을 3일간 배양하였을 때 중금속 농도는 김 시료 건조중

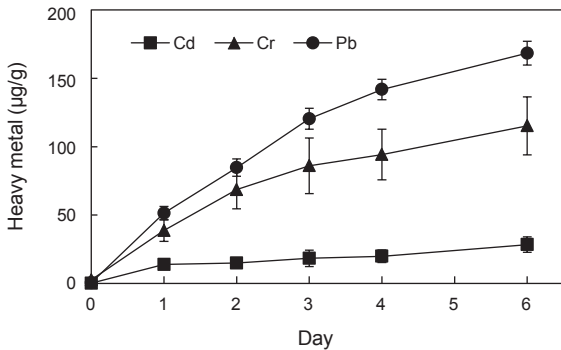


Fig. 1. Accumulation of heavy metals in sea lettuce *Enteromorpha* sp. during incubation in seawater including Cd, Cr, and Pb.

량 당 Pb (117.79 µg/g), Cr (33.53 µg/g), Cd (10.54 µg/g) 농축한다고 보고하여 파래가 김보다 유해 중금속을 더 잘 농축하는 것으로 확인되었다. 또한, 우리나라 연안에서 수집한 주요 식용 해조류(김, 미역, 다시마, 파래) 중의 중금속 함량 조사에서도 파래는 Cr, Ni 및 Pb를 가장 많이 함유하고 있었으며, Cr과 Pb도 다른 해조류에 비하여 많이 농축하는 것으로 보고(Mok et al., 2005)하여 본 결과와 유사한 결과를 나타내었다. 한편, 본 연구에서 파래에 인위적으로 농축된 유해 중금속 함량은 Mok et al. (2005)이 보고한 우리나라 연안에서 수집한 파래 중의 유해 중금속(Cd, Cr 및 Pb)의 평균함량 보다 각각 약 52.4, 21.2 및 86.7 배 높은 값이었다.

유해 중금속이 파래의 세포 내로 농축되어 있는지 아니면 조체 외부에 부착되어 있는 지를 알아보기 위하여 3일간 유해 중금속을 농축시킨 파래 시료를 여과 해수에 30분 및 금속 킬레이트제인 0.1 mM EDTA 용액에 10분간 침지시킨 것의 중금속 농도를 비교하였다(Table 1). 파래 시료는 Cd (12.34 µg/g), Cr (65.73 µg/g) 및 Pb (118.72 µg/g)이 각각 농축되었으며, 이를 해수 및 0.1 mM EDTA 용액에 침지한 후에는 Cd는 각각 10.21 및 11.70 µg/g, Cr은 각각 58.03 및 64.11 µg/g, 그리고 Pb는 각각 116.25 및 97.99 µg/g이었다. 이상의 결과 유해 중금속을 인위적으로 농축시킨 파래 시료는 해수 및 EDTA 용액에 침지한 후에도 대조구와 유의할 만한 차이를 나타내지 않았다. 즉, 이들 중금속은 파래의 세포 내에 잘 농축되어 있는 것으로 확인되었다.

산의 종류 및 농도에 따른 파래의 유해 중금속 제거 효과

구연산, 염산 및 질산을 사용하여 pH 2.0-4.0으로 조정된 해수에 유해 중금속(Cd, Cr, Pb)을 인위적으로 농축시킨 파래를 1:30 (w/v) 비율로 첨가하여 시험한 결과는 Fig. 2, 3, 4에 나타내었다. 파래 중의 유해 중금속의 제거효과는 사용한 산의 종류에 관계없이 Pb이 가장 잘 제거되었으며, 다음으로 Cd, Cr 순이었다. 실험에 사용된 유해 중금속 중에서 Pb과 Cd는 사용한 산

Table 1. Stability of heavy metals concentrated in sea lettuce *Enteromorpha* sp.

Heavy metal	Concentration (µg/g dry weight) ¹		
	Control (non-treatment)	Seawater (30 min)	0.1 mM EDTA (10 min)
Cd	12.34±2.42 ²	10.21±3.25	11.70±2.45
Cr	65.73±8.02	58.03±7.02	64.11±7.62
Pb	118.72±6.52	116.25±7.62	97.99±8.98

¹ Heavy metal concentrations in sea lettuce samples were determined after soaked in seawater and EDTA (Ethylenediaminetetraacetic acid) solution using sea lettuce samples accumulating heavy metals for 3 days. ² Mean value±SD.

의 종류에 관계없이 pH 2.0-4.0에서는 각 비교적 잘 제거되었으며, pH가 낮을수록 그 경향은 뚜렷하였다. 처리시간에 따라서는 중금속에서 초기 10분 처리에 많은 양이 제거되고, 그 이후에는 제거효과가 적었다. 그러나 Cr은 다른 중금속과는 달리 제거율이 훨씬 낮았다. 한편, 파래는 pH 2.0에서 구연산과 염산 처리구에서는 5분 후, 질산 처리구에서는 10분 후, 그리고 pH 2.5에서 구연산과 질산에서는 15분 후, 염산 처리구에서는 30분 후에 각각 조체에 약간 변색되는 경향을 나타내었으나, pH 3.0 이상에서는 30분까지 시각적으로 변색은 관찰되지 않았다. 따라서 산을 이용하여 중금속을 제거할 경우 파래는 pH 3.0에서 10분 정도 처리하는 것이 가장 바람직할 것으로 생각되었으며, 이때 각 유해 중금속의 제거율은 산의 종류에 따라 다소 차이는 있었으나, Pb (42.2-78.0%), Cd (51.8-55.3%), Cr (14.0-32.8%)로 순으로 제거되었다. 또한, 유기산인 구연산을 이용하여 파래를 pH 3.0에서 10분 처리하였을 때 유해 중금속 제거율은 Pb (75.6%), Cd (55.3%) 및 Cr (18.2%)이었다.

한편, 우리나라 식품의약품안전처(KMFDS, 2016)에서는 해조류 중에서 김(조미김 포함)에 대해서만 Cd 기준을 0.3 µg/g (생물 기준, 건물중량으로 환산하면 약 3.03 µg/g에 해당)으로 설정하고 있으며, 파래에 대하여는 중금속 기준이 설정되어 있지 않다. 또한, Mok et al. (2005)의 보고에 의하면 Cr과 Pb은 주요 식용해조류(김, 미역, 다시마 및 파래) 중에 파래에서 가장 높게 검출되었다고 하였다. 따라서 파래에 대한 유해 중금속 기준은 설정되어 있지 않으나, 일부 유해 중금속이 파래에서 높게 검출되고 있으므로 이에 대한 관리 및 적절한 제어기술이 필요할 것으로 판단된다.

이상의 결과, 유기산인 구연산과 다른 무기산의 유해 중금속 제거 효과는 큰 차이가 없으므로 인체에 무해한 유기산인 구연산을 사용하는 것이 가장 바람직할 것으로 판단되었다.

산 처리에 의한 파래의 품질변화

산(구연산, 염산 및 질산)을 이용하여 파래 중의 유해 중금속을 제거할 때에 조체의 품질변화 지표로서 처리액의 흡광도 (265 nm) 변화를 측정하여 Fig. 5에 나타내었다. 예비 시험에

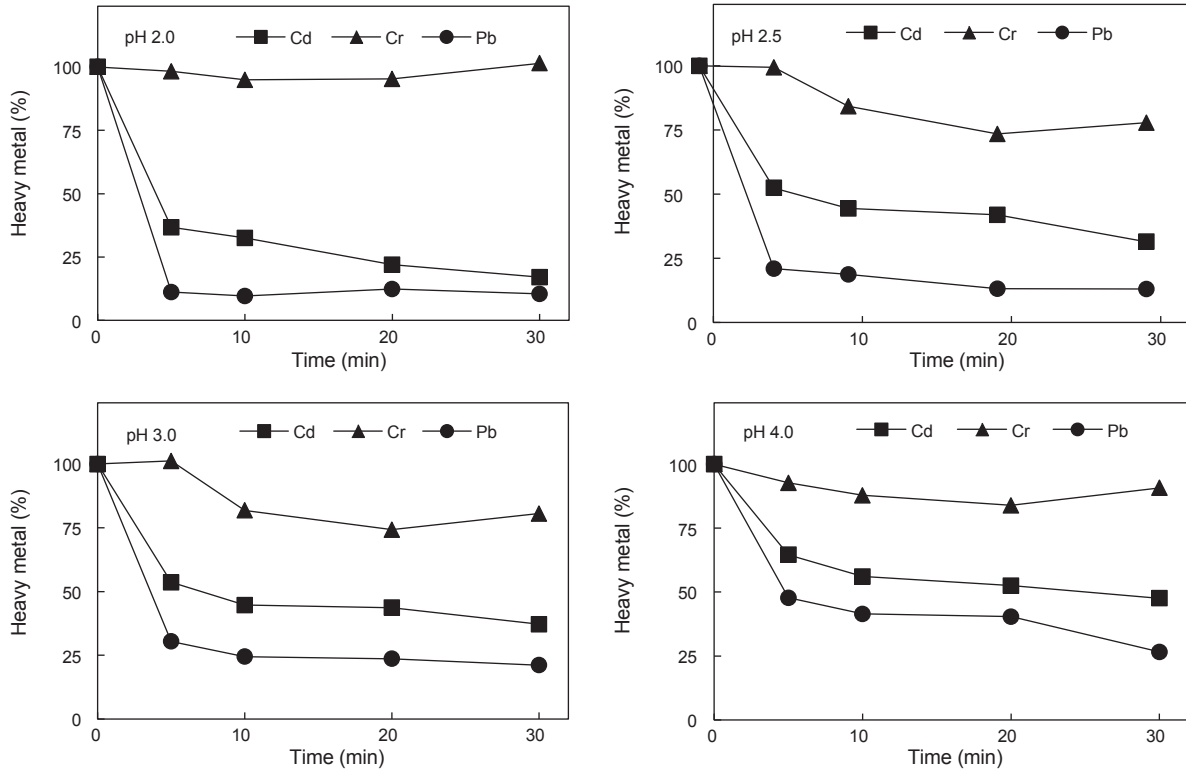


Fig. 2. Elimination rate of heavy metals in sea lettuce *Enteromorpha* sp. using citric acid.

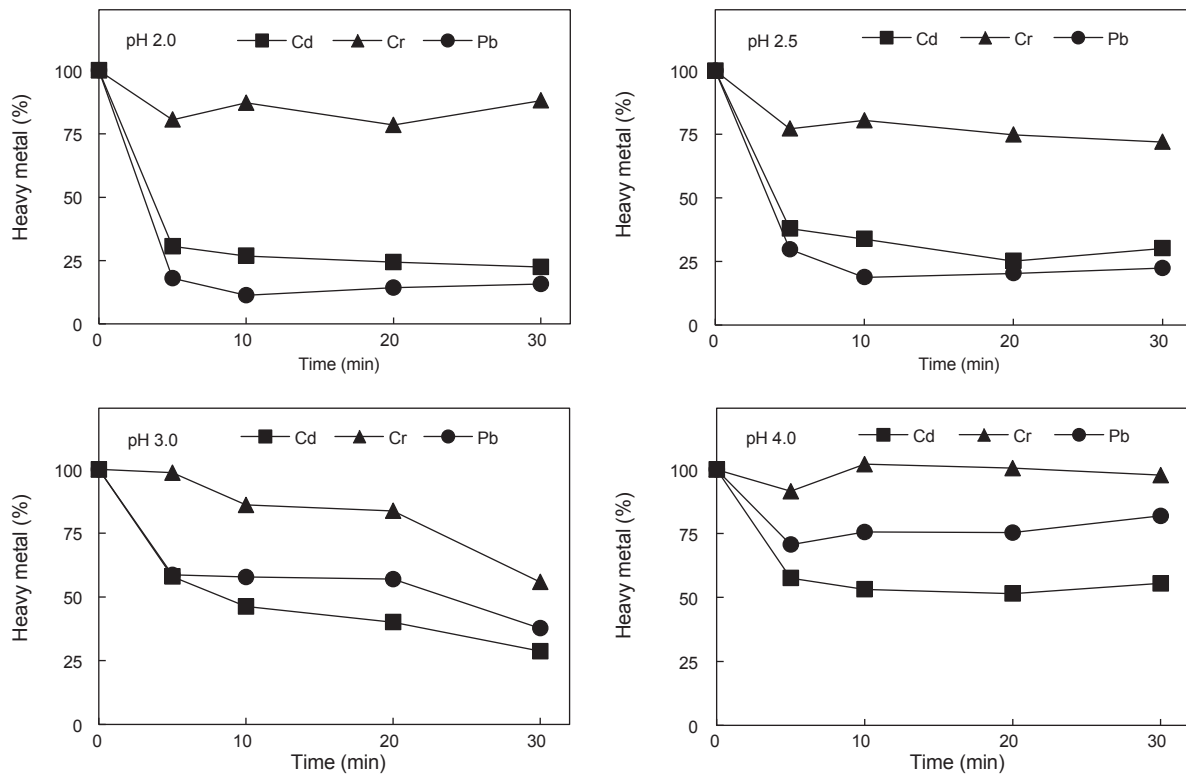


Fig. 3. Elimination rate of heavy metals in sea lettuce *Enteromorpha* sp. using hydrochloric acid.

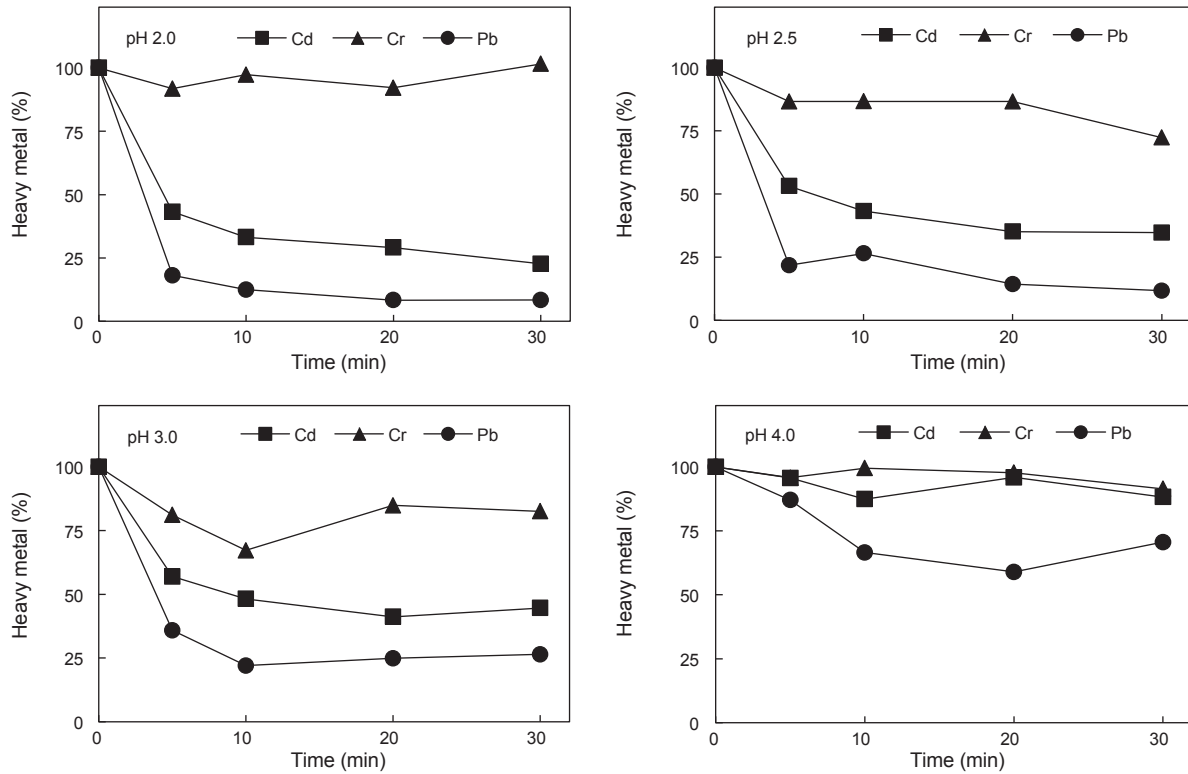


Fig. 4. Elimination rate of heavy metals in sea lettuce *Enteromorpha* sp. using nitric acid.

서 산을 첨가한 해수 용액에 파래를 침지시키면 용액 중으로 미량 물질들의 용출이 추정되었으며, 처리액의 파장을 검색한 결과 265 nm에서 가장 높은 흡광도 값을 나타내어 이를 지표로 선정하였다. 파래 세포 내부 물질의 용출을 나타내는 처리액의 흡광도 값은 산의 종류에 관계없이 유사한 경향을 보였으며, pH 2.0 처리구에서는 처리시간 20분까지는 증가하였으나 그 이후는 변화가 없었다. 반면, pH 2.5에서는 지속적으로 증가하여 1시간 후 pH 2.0보다 오히려 더 높은 값을 나타내었으나, pH 3.0 이상에서는 처리시간 30분까지 거의 변화가 없어 세포 내부 물질의 용출이 거의 없는 것으로 판단된다. 또한, 파래의 클로로필 농도 변화는 처리하기 전인 대조구의 클로로필 함량은 건조중량당 약 17,000 µg/g이었고, 산을 처리한 파래의 클로로필 함량은 산의 종류에 관계없이 pH 2.0 처리구를 제외하면 대조구와 유의할 만한 차이는 관찰되지 않았다(결과 미제시).

이상의 결과에서 산 처리에 의한 파래의 품질변화 지표로 사용된 용출되는 세포 내부 물질의 함량은 pH 3.0 이상에서는 모든 산에서 처리시간 30분까지 거의 변화가 없었다. 또한, 파래의 클로로필 함량도 pH 3.0 이상에서는 대조구와 유사하였다. 따라서 산을 이용하여 중금속을 제거할 경우에는 품질변화 및 식용 등을 고려하여 유기산인 구연산으로 pH 3.0에서 10분 이내로 처리하면 안정할 것으로 판단된다.

최적 처리조건에서 파래의 주요 미네랄함량 변화

파래의 산처리 최적 조건으로 판단된 구연산을 이용하여 pH 3.0으로 조정된 해수에서 처리시간에 따른 주요 미네랄 성분 변화를 측정하여 Table 2에 나타내었다. 구연산을 처리하지 않은 대조구의 주요 미네랄 성분의 함량은 건조중량으로 Ca (2,747 µg/g), Cu (8.7 µg/g), Fe (828 µg/g), Mg (8,409 µg/g), Mn (23.1 µg/g), Zn (21.8 µg/g) 이었다. 최적 처리 시간인 10분 이내에는 Mg 7%, Ca 12%, Fe 15%, Cu 16%, Mn 20%, Zn 22%의 감소율을 보였으며, Mg 및 Ca과 같이 파래에 많이 함유되어 있는 미네랄 성분일수록 대체로 적게 감소하는 경향을 나타내었다. 한편, 예비 시험에서 파래는 자연해수에 30분간 처리하였을 때 약 5% 내외의 미네랄 성분이 자연적으로 감소하는 것으로 확인되었다.

Kim et al. (2005)은 해조류는 해수 중에 많이 존재하는 Na, Mg, Ca, K 등의 해수로부터 다른 금속에 비하여 적게 농축하는 반면, 해수 중에 적게 존재하는 미량금속은 많이 농축한다고 하였다. 우리의 결과에서는 파래에서의 제거율도 해수에 많이 들어 있는 미네랄 성분인 Mg은 가장 적게 제거되는 반면, 해수에 거의 없는 인위적으로 농축시킨 유해 중금속의 제거율이 이들보다 더 높은 것은 해조류의 농축과 제거는 해수 중의 미네랄 농도와 밀접한 관계가 있는 것으로 추정된다.

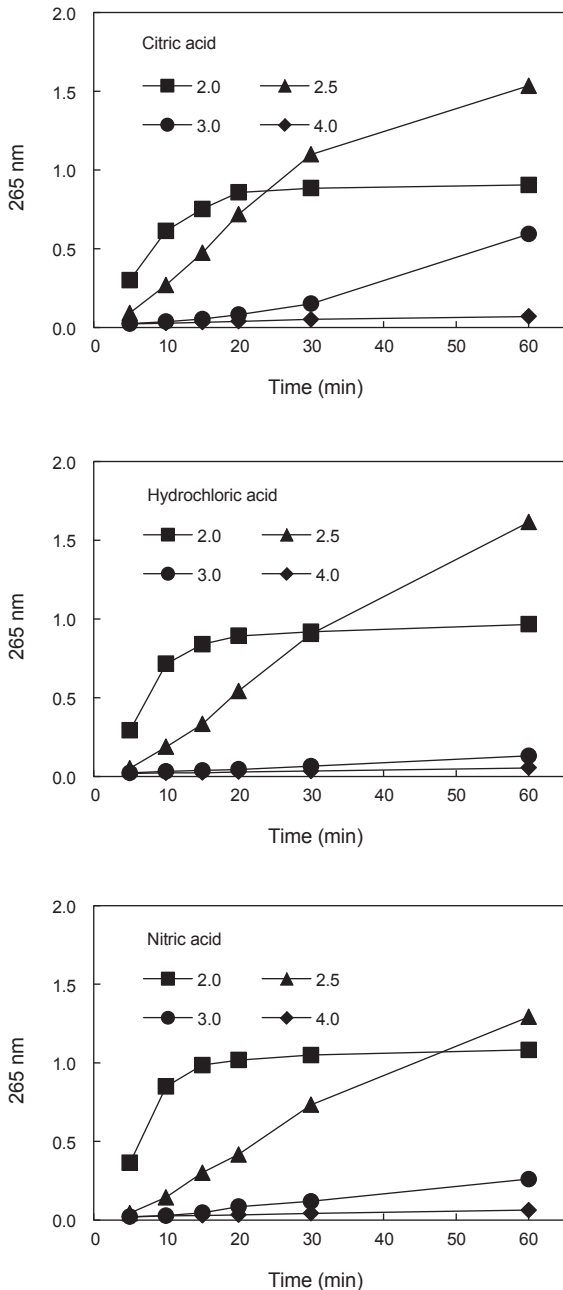


Fig. 5. Absorbance change of seawater during eliminating heavy metals in sea lettuce *Enteromorpha* sp. using citric acid, hydrochloric acid, and nitric acid.

사 사

이 논문은 2017년도 국립수산물학원 수산과학연구사업 (R2017057)의 지원으로 수행된 연구이며 연구비 지원에 감사드립니다.

Table 2. Change of mineral concentrations in sea lettuce *Enteromorpha* sp. by soaking times in pH 2.5 seawater adjusted by citric acid *Enteromorpha* sp.

Mineral	Mineral concentration ($\mu\text{g/g}$ dry weight)				
	0 min	5 min	10 min	20 min	30 min
Ca	2,747 \pm 42 ¹	2,506 \pm 51	2,414 \pm 78	2,306 \pm 65	2,358 \pm 86
Cu	8.7 \pm 0.6	8.2 \pm 0.4	7.2 \pm 0.5	6.8 \pm 0.7	6.6 \pm 0.6
Fe	828 \pm 15	817 \pm 8	705 \pm 6	682 \pm 11	679 \pm 9
Mg	8,409 \pm 124	8,062 \pm 205	7,820 \pm 356	7,621 \pm 422	7,661 \pm 326
Mn	23.1 \pm 1.8	21.4 \pm 1.4	18.5 \pm 1.0	17.9 \pm 0.8	17.9 \pm 1.2
Zn	21.8 \pm 1.6	18.5 \pm 0.8	16.9 \pm 0.6	16.6 \pm 0.8	17.0 \pm 0.4

¹ Mean value \pm SD.

References

- Ahmady-Asbchin S, Andres Y, Gerente C and Le Cloirec P. 2009. Natural seaweed waste as sorbent for heavy metal removal from solution. *Environ Technol* 30, 755-762. <http://dx.doi.org/10.1080/09593330902919401>.
- AOAC International. 2002. AOAC guidelines for single laboratory validation of chemical methods for dietary supplements and botanicals. Gaithersburg, MD, U.S.A.
- Cho DM, Kim DS, Lee DS, Kim HR and Pyeon JH. 1995. Trace components and functional saccharides in seaweed. 1. Changes in proximate composition and trace element according to the harvest season and places. *Bull Kor Fish Soc* 28, 49-59.
- Choi SN, Lee SU, Chung KH and Ko WB. 1998. A study of heavy metals contents of the seaweeds at various area in Korea. *Korean J Soc Food Sci* 14, 25-32.
- EOS Ecology. 2012. Heavy metals in fish and shellfish, EOS Ecology, Christchurch, New Zealand.
- FAO (Food and Agriculture Organization of the United Nations). 2014. Global Statistical Collections. Retrieved from <http://www.fao.org/fishery/statistics/en> on July 11, 2016.
- Hwang YO, Kim MS, Park SG and Kim SJ. 2007. Contents of lead, mercury, and cadmium in seaweeds collected in coastal area of Korea. *Analytic Sci Technol* 20, 227-236.
- Im YG, Choi JS and Kim DS. 2006. Mineral contents of edible seaweeds collected from Gijang and Wando in Korea. *J Kor Fish Soc* 39, 16-22.
- Kim JH, Mok JS and Park HY. 2005. Trace metal contents in seaweeds from Korean coastal area. *J Korean Soc Food Sci Nutr* 34, 1041-1051.
- Kim SY, Sidharthan M, Yoo YH, Lim CY, Jin HJ, Yoo JS and Shin HW. 2003. Accumulation of heavy metals in Korean marine seaweeds. *Algae* 18, 349-354. <http://dx.doi.org/10.4490/algae.2003.18.4.349>.
- KMFDS (Korea Ministry of Food and Drug Safety). 2016. Korea food code. Retrieved from http://fse.foodnara.go.kr/residue/RS/jsp/menu_02_01_01.jsp on July 11, 2016.

- Mithra1 R, Sivaramakrishnan1 S, Santhanam P, Dinesh Kumar S and Nandakumar R. 2012. Investigation on nutrients and heavy metal removal efficacy of seaweeds, *Caulerpa taxifolia* and *Kappaphycus alvarezii* for wastewater remediation. *J Algal Biomass Utln* 3, 21-27.
- Mok JS, Kwon JY, Son KT, Choi WS, Kim PH, Lee TS and Kim JH. 2015a. Distribution of heavy metals in internal organs and tissues of Korean molluscan shellfish and potential risk to human health. *J Environ Biol* 36, 1161-1167.
- Mok JS, Park HY and Kim JH. 2005. Trace metal contents of major edible seaweeds and their safety evaluation. *J Kor Soc Food Sci Nutr* 34, 1464-1470.
- Mok JS, SonKT, Lee TS, Lee KJ, Jung YJ and Kim JH. 2016. Removal effect of hazardous heavy metals (Cd, Cr, Pb) in laver (*Porphyra* sp.) by acid treatment. *Korean J Fish Aquat Sci* 49, 556-563. <http://dx.doi.org/10.5657/KFAS.2016.0556>.
- Mok JS, Yoo HD, Kim PH, Yoon HD, Park YC, Lee TS, Kwon JY, Son KT, Lee HJ, Ha KS, Shim KB, Jo MR and Kim JH. 2014. Bioaccumulation of heavy metals in mussels in the Changseon area, Korea, and assessment of potential risk to human health. *Fish Aquat Sci* 17, 1-6. <http://dx.doi.org/10.5657/FAS.2014.0001>.
- Mok JS, Yoo HD, Kim PH, Yoon HD, Park YC, Lee TS, Kwon JY, Son KT, Lee HJ, Ha KS, Shim KB and Kim JH. 2015b. Bioaccumulation of heavy metals in oysters from the southern coast of Korea: Assessment of potential risk to human health. *Bull Environ Contam Toxicol* 94, 749-755. <http://dx.doi.org/10.1007/s00128-015-1534-4>.
- Sohn JW. 2009. A study on Korean seaweed foods by literature review. *Korean J Food Nutr* 1, 75-85.
- Son KT, Kwon JY, Jo MR, Choi WS, Kang SR, Ha NY, Shin JW, Park KBW and Kim JH. 2012. Heavy metals (Hg, Pb, Cd) content and risk assessment of commercial dried laver *Porphyra* sp. *Korean J Fish Aquat Sci* 45, 454-459. <http://dx.doi.org/10.5657/KFAS.2012.0454>.
- Statistics Korea. 2015. Korean statistical information service (KOSIS). Retrieved from <http://kosis.kr> on July 11, 2016.
- Steel RGD and Torrie JH. 1980. Principle and procedure of statistics; a biometrical approach (2nd ed.). MacGraw-Hill Book Company, New York, U.S.A.
- Suzuki Y, Kametani T and Maruyama T. 2005. Removal of heavy metals from aqueous solution by nonliving *Ulva* seaweed as biosorbent. *Water Res* 39, 1803-1808. <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2005.02.020>.