

Article

<https://doi.org/10.7850/jkso.2018.23.4.179>  
pISSN : 1226-2978

## 황해 동부해역 표층퇴적물의 중금속 농도 분포

선철인<sup>1</sup> · 박건우<sup>1</sup> · 박현실<sup>2</sup> · 박준건<sup>1</sup> · 김성길<sup>1</sup> · 최만식<sup>3\*</sup><sup>1</sup>해양환경공단 해양수질팀, <sup>2</sup>해양환경공단 해양생태팀, <sup>3</sup>충남대학교 해양환경과학과

# Distribution of Heavy Metal Concentrations in Surface Sediments of the eastern Yellow Sea

CHUL-IN SUN<sup>1</sup>, GEON-WOO PARK<sup>1</sup>, HYEON-SIL PARK<sup>2</sup>, JUN KUN PARK<sup>1</sup>, SEONG GIL KIM<sup>1</sup> AND MAN SIK CHOI<sup>3\*</sup><sup>1</sup>Marine Environment Monitoring Team, Korea Marine Environment Management Corporation, Busan 49111, Korea<sup>2</sup>Marine Ecosystem Management Team, Korea Marine Environment Management Corporation, Seoul 05718, Korea<sup>3</sup>Department of Marine Environmental Science, Chungnam National University, Daejeon 34134, Korea\*Corresponding author: [mschoi@cnu.ac.kr](mailto:mschoi@cnu.ac.kr)

Editor Dong-Sun Kim

Received 28 May 2018; Revised 10 September 2018; Accepted 24 October 2018

### ABSTRACT

황해 동부해역 표층퇴적물의 중금속 분포 특성을 파악하기 위하여 입도, 유기탄소(TOC)와 함께 중금속 원소들(Cu, Pb, Zn, Cd, Cr, Mn, As, Ni, Co, Li, Fe, Al)의 농도를 분석하였다. 연구결과에 따르면, 일부 정점에서 Pb, Mn, As를 제외하면 모든 중금속 농도의 분포는 입도 및 TOC의 분포와 유사하게 황해 중앙해역에서 상대적으로 높고, 한국 연안으로 갈수록 감소하는 경향을 보였다. 입도와 중금속 농도간의 관계를 통하여 대부분의 금속은 입도가 세립할수록 농도가 높게 나타나는 일반적인 경향을 보였다. 그러나 일부 정점에서 Pb는 조립질 퇴적물에서의 암석기원(feldspar) 영향, Mn은 생물기원(CaCO<sub>3</sub>) 영향, As는 중광물(pyrite) 특성에 따라 분포 양상이 다르게 나타났다. 과거에 조사한 자료(2000년)와 비교했을 때, 황해 동부해역에서 지난 15년 동안의 추가적인 중금속 농축은 없었고, 투기해역에 대한 저질환경은 과거에 비해 크게 개선되지 못한 것으로 나타났다. 연구해역 내 모든 중금속의 농도는 한국과 중국에서 규정하고 있는 최소기준(TEL, MSQ-1)보다 낮았지만, 농축지수(enrichment factor; EF), 농집지수(geo-accumulation index; I<sub>geo</sub>), 생태위해성지수(ecological risk index; ERI)는 Cu, Pb, Zn, Cr이 황해 중앙해역에서 상대적으로 높게 나타났다.

In order to determine the distribution characteristics of the heavy metals in surface sediments of the eastern Yellow Sea, heavy metal concentrations (Cu, Pb, Zn, Cd, Cr, Mn, As, Ni, Co, Li, Fe and Al) together with grain size and total organic carbon (TOC), were analyzed. The concentrations of all heavy metals, with the exception of Pb, Mn and As in some stations, were relatively high in the central area of the Yellow Sea and tended to decrease toward the Korean coast. A significant relationship between grain size and concentrations of heavy metals suggested that they were mostly controlled by quartz dilution effect. However, at some stations, Pb, Mn and As exhibited different distribution patterns. For Pb, the differences were caused by petrogenetic influences (feldspar) in coarse-grained sediments. In the case of Mn, biogenetic influences (CaCO<sub>3</sub>) affected distribution patterns. As was distributed differently because of the existence of a heavy mineral (pyrite). A comparison with previous data (collected in 2000) shows that the heavy metal concentration in the eastern Yellow Sea has not increased over the past fifteen years. The sedimentary environment of dumping sites in the Yellow Sea has not been significantly improved during this period. The results of the pollution assessment revealed that the concentrations of heavy metals in the study area were lower than lower criteria (TEL, MSQ-1) in Korean and Chinese sediment quality guidelines. The enrichment factor (EF), geo-accumulation index (I<sub>geo</sub>) and ecological risk index (ERI) of Cu, Pb, Zn and Cr were higher in the central area of the Yellow Sea.

**Keywords:** Eastern Yellow Sea, Heavy metals, Surface sediments characteristic, Pollution assessment

## 1. 서론

중금속은 강, 대기 침적, 해양투기 등 다양한 경로를 통해 해양퇴적층으로 유입되며, 퇴적물 재부유, 흡착 및 탈착 그리고 산화-환원 과정에 의해 다시 수층으로 용출되어 해양환경에 영향을 미친다(Lee *et al.*, 2008). 특히, 퇴적물 내 중금속은 쉽게 생분해 되지 않고 지속적으로 축적되기 때문에 연안환경 오염을 대표할 수 있으며, 저서생물의 서식지 환경과 밀접한 관련이 있어 저서생태계를 평가하는 지표로 이용되기도 한다(Lim *et al.*, 2013). 따라서 연안에서 효율적인 퇴적물 관리 및 오염도를 파악하기 위해서는 중금속의 분포와 기원에 관한 연구가 필연적으로 요구된다.

퇴적물의 오염도 및 생태위해성을 평가하기 위해 다양한 지화학적인 평가방법이 보고되어 왔으며, 주로 sediment quality guidelines (SQGs), enrichment factor (EF), geo-accumulation index ( $I_{geo}$ ), ecological risk index (ERI) 등이 이용되었다(Hakanson, 1980; Müller, 1981; Long *et al.*, 1998; Zhang and Liu, 2002). 이러한 평가방법들은 해양환경에서 잠재적 위해성을 갖는 유해 중금속을 규명하는데 유용한 정보를 제공한다.

황해는 한국과 중국 대륙사이에 위치하고, 북쪽으로는 발해만과 경계를 이루는 반폐쇄성 해역이다. 황해의 면적은 약 38만  $km^2$ , 평균 수심은 약 44 m, 최대 수심은 제주도 북쪽 해역에서 140 m 정도이다(Yang *et al.*, 2003). 황해는 중국과 한국의 주요 강(황하강, 양자강, 한강, 금강 등)으로부터 연간 수백만 톤의 입자성 물질이 유입되고 있으며, 중금속을 포함한 대기 분진의 유입이 황해 퇴적물 오염의 상당 부분을 차지하고 있다(Choi *et al.*, 2007). 중국 국가해양국(state oceanic administration) 통계에 따르면, 2010년부터 2012년까지 황해 연안의 오염면적(수질등급 4등급 이상)은 각 6530  $km^2$ , 9540  $km^2$ , 16530  $km^2$ 로 매년 급격히 증가하고 있는 것으로 나타났고, 이 면적은 지난 2009년(2150  $km^2$ )에 비해 상당히 넓게 분포하고 있는 것으로 보고되었다(Jiang *et al.*, 2014). 그리고 황해 중앙해역에 위치한 폐기물 투기해역은 지난 1988년부터 2015년까지 육상 폐기물을 지속적으로 배출하였고, 이로 인하여 퇴적물 내 중금속 오염이 보고되었다(Koh *et al.*, 2013). 해양투기로 인한 중금속 오염은 퇴적환경 및 해양생태계에 잠재적으로 악영향을 미치며, 해저에 쌓인 유기물은 특정 환경에서 적조를 간헐적으로 야기시킬 수 있다(Song *et al.*, 2007).

황해 해저퇴적물 내 중금속에 관한 기존 연구는 황해 북부, 서부 및 남부해역에서 중금속의 분포 및 오염에 대해 광범위하게 수행되었다(He *et al.*, 2009; Yuan *et al.*, 2012; Huang *et al.*, 2014; Jinag *et al.*, 2014). 하지만 동부해역은 지난 2000년에 YSLME 사업을 통한 조사가 단편적으로 이루어 졌고(UNDP/GEF YSLME, 2000), 대부분 투기해역 및 육지에 인접한 연안 퇴적물에 국한되어 조사가 이루어 졌다(Kim *et al.*, 2009; Koh *et al.*, 2013; Hwang *et al.*, 2016). 한편, 황해 투기해역은 2006년부터 폐기물 배출량을 점진적으로 감소시킨 이후 2016년에 준설토를 제외한 폐기물 해양배출을 전면 금지시켰다. 이로 인하여 투기해역의 해양환경에 대한 개선효과가 예상됨에도 불구하고 이를 검토한 연구는 부족한 실정이다.

따라서 이 연구는 황해 동부해역 표층퇴적물에서 중금속의 분포 특성과 함께 중금속 분포를 조절하는 요인에 대해 파악하고, 기존 연구결과와의 비교를 통하여 황해 동부해역을 포함한 폐기물 투기해역에 대한 중금속 농도 변화 양상을 살펴보고자 한다.

## 2. 재료 및 방법

### 2.1 시료 채취 및 분석

퇴적물 내 중금속 분석을 위하여 2016년 10월 황해 동부해역 18개 정점에서 채니기(van Veen grab sampler)를 이용하여

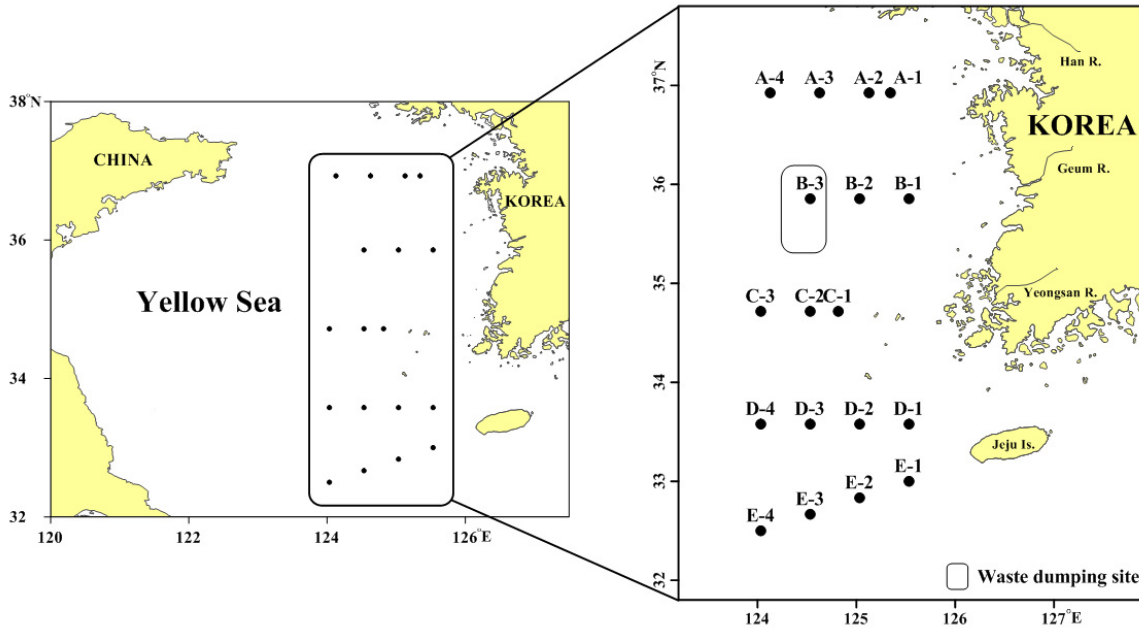


Fig. 1. Map showing the sampling sites in the eastern Yellow Sea.

표층퇴적물(최상부 2 cm 두께)을 채취하였고(Fig. 1), 분석시까지 냉동보관(-20°C)하였다. TOC 및 중금속 분석을 위한 퇴적물 시료는 동결건조 후 시료분쇄기(Pulverisette 5, FRITSCH, Germany)를 사용하여 분말 및 균질화하였다.

퇴적물의 입도 분석은 습시료 약 20 g을 담은 후 10% H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>와 0.1 N HCl을 첨가하여 유기물을 제거한 다음 4 Ø 체를 이용하여 조립질 시료와 세립질 시료를 분리하였다. 조립질 시료는 건식 체질하였고, 세립질 시료는 피펫방법으로 각 Ø별 무게를 구하였다. 측정된 자료를 이용하여 평균 입도와 함께 모래, 점토, 실트의 함량을 구하였다.

TOC 농도는 균질화된 시료에 1 M HCl을 첨가하여 무기탄소를 제거하고 건조한 후 원소분석기(Flash EA 1112, Thermo Fisher Scientific, Germany)로 분석하였다.

퇴적물 내 중금속의 농도 분석은 균질화된 시료 약 0.2 g에 혼합산(HNO<sub>3</sub>+HClO<sub>4</sub>+HF)을 가하여 완전히 가열분해한 다음 증발·건조하였고, 1% HNO<sub>3</sub> 용액으로 재용해하였다. 산분해를 통해 얻어진 용액 중 Cu, Pb, Zn, Cd, Cr, Mn, As, Ni, Co, Li의 농도는 유도결합 플라즈마 질량분석기(NexION 300D, PerkinElmer Inc., USA)를 이용하였고, Fe과 Al은 유도결합 플라즈마 방출 분광분석기(Optima 8300, PerkinElmer Inc., USA)로 분석하였다.

분석자료의 신뢰성을 검증하기 위하여 인증표준물질(TOC: NIST, SRM-1941b; 중금속: NRC-CNRC, MESS-4)을 시료와 함께 동일한 방법으로 처리하여 분석하였고, 인증표준물질의 회수율(평균±표준편차)은 TOC: 95±3%, Cu: 96±1%, Pb: 103±1%, Zn: 93±2%, Cd: 101±2%, Cr: 98±3%, Mn: 96±1%, As: 104±1%, Ni: 94±3%, Co: 95±2%, Li: 100±3%, Fe: 105±0%, Al: 105±7%로 신뢰할 만한 수준을 나타내었다.

## 2.2 중금속 오염도 평가

황해 동부해역 표층퇴적물에서 중금속의 오염도 및 생태위해성을 조사하기 위해 한국 및 중국의 해저퇴적물 환경기준(TEL, MSQ-1), 농축인자(EF, I<sub>geo</sub>) 그리고 생태계위해도지수(ERI)를 이용하였고, 각 기준에 대한 평가범주는 Table 1과 2에 나타내었다.

**Table 1.** The classification of EF, I<sub>geo</sub> and ERI

Index name (type)	Contamination categories (pollution levels)	
Enrichment factor (EF) <sup>1)</sup>	0.5 ≤ EF ≤ 1.5: crustal origin EF > 1.5: non-crustal origin	
Geo-accumulation index (I <sub>geo</sub> ) <sup>2)</sup>	I <sub>geo</sub> class=0 (I <sub>geo</sub> ≤ 0): unpolluted I <sub>geo</sub> class=1 (0 < I <sub>geo</sub> ≤ 1): unpolluted/moderately polluted I <sub>geo</sub> class=2 (1 < I <sub>geo</sub> ≤ 2): moderately polluted I <sub>geo</sub> class=3 (2 < I <sub>geo</sub> ≤ 3): moderately to strongly polluted I <sub>geo</sub> class=4 (3 < I <sub>geo</sub> ≤ 4): strongly polluted I <sub>geo</sub> class=5 (4 < I <sub>geo</sub> ≤ 5): strongly to very strongly polluted I <sub>geo</sub> class=6 (I <sub>geo</sub> > 5): very strongly polluted	
Ecological risk index (ERI) <sup>3)</sup>	E <sub>i</sub> < 40: low 40 ≤ E <sub>i</sub> < 80: moderate 80 ≤ E <sub>i</sub> < 160: high 160 ≤ E <sub>i</sub> < 320: very high E <sub>i</sub> ≥ 320: dangerous	ERI < 150: low 150 ≤ ERI < 300: moderate 300 ≤ ERI < 600: high 600 ≥ ERI: very high

<sup>1)</sup> Zhang and Liu, 2002; <sup>2)</sup> Müller, 1981; <sup>3)</sup> Jiang *et al.*, 2014

**Table 2.** Summary of heavy metal concentrations in surface sediments from the eastern Yellow Sea and other regions together with the sediment quality guidelines

Regions	Cu	Pb	Zn	Cd	Cr	Mn	As	Ni	Co	Li	Fe	Al	Reference
	(mg/kg)										(%)		
eastern Yellow Sea	2-29 (12)	18-31 (24)	14-105 (60)	0.02-0.09 (0.06)	12-122 (53)	170-1766 (482)	4-13 (9)	4-42 (23)	3-16 (10)	12-72 (41)	1.0-4.7 (2.9)	4.4-9.1 (6.7)	This study
waste dumping area	3-31 (14)	16-30 (21)	17-116 (63)	0.03-0.29 (0.06)	12-93 (51)	-	-	4-36 (20)	3-15 (9)	-	1.0-4.2 (2.5)	3.4-7.7 (5.6)	UNDP/GEF YSLME, 2000
	29	31	105	0.08	121.6	520	-	35	15	-	4.1	8.3	This study
	31	30	116	0.29	92.6	-	-	36	14	-	4.1	7.5	UNDP/GEF YSLME, 2000
	20-35 (27)	24-49 (34)	62-100 (82)	0.14-0.38 (0.27)	-	-	-	-	29-56 (38)	-	-	5.3-7.7 (6.8)	Kim <i>et al.</i> , 2009
	12-30 (24)	21-30 (25)	62-108 (92)	0.07-0.20 (0.15)	44-82 (69)	-	-	19-35 (31)	8-15 (13)	-	2.2-3.6 (3.2)	4.9-6.9 (5.8)	Koh <i>et al.</i> , 2013
northern Yellow Sea	3-56 (14)	14-44 (24)	16-125 (57)	0.03-0.30 (0.09)	11-113 (49)	117-1800 (353)	-	4-46 (22)	2-20 (9)	-	1.0-5.2 (2.6)	3.1-8.5 (6.5)	Huang <i>et al.</i> , 2014
western Yellow Sea	5-26 (16)	4-18 (11)	19-82 (46)	0.00-0.37 (0.12)	-	186-1334 (373)	-	8-32 (19)	4-13 (9)	-	-	-	Jinag <i>et al.</i> , 2014
East China Sea	4-42 (15)	10-49 (27)	18-114 (60)	-	-	152-1152 (484)	-	8-49 (26)	-	-	0.6-4.0 (2.1)	4.4-8.5 (5.7)	Fang <i>et al.</i> , 2009
TEL <sup>1)</sup>	20.6 <sup>**</sup>	44	68.4 <sup>**</sup>	0.75	116	-	14.5	47.2	-	-	-	-	MOF, 2013
MSQ-1 <sup>2)</sup>	35	60	150	0.5	80	-	20	-	-	-	-	-	CSBTS, 2002

<sup>1)</sup> TEL: Korea marine sediment quality guideline; threshold Effects Level, <sup>2)</sup> MSQ-1: Chinese marine sediment quality guideline; class 1

<sup>\*\*</sup>: Concentration corrected with Li for grain size correction

국내 해저퇴적물 해양환경기준은 총 8개 중금속(As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Zn)에 대해서 주의기준(threshold effects level; TEL)과 관리기준(probable effects level; PEL)으로 구분하고 있다(MOF, 2013). 이 연구에서 Cu와 Zn은 Li을 이용하여 입도를 보정한 값을 이용하였고, 그 외 중금속(Cd, Pb, Cr, Ni, As)은 실측된 농도를 해저퇴적물 해양환경기준과 직접 비교하였다. 중국은 해저퇴적물 중금속 오염관리를 위해 3개의 기준(MSQ-1, MSQ-2, MSQ-3)을 설정하여 평가하고 있으며 (CSBTS, 2002), 이 연구에서는 해양환경 및 생물의 서식지를 보호하기 위하여 설정된 1차 기준인 MSQ-1과 비교하였다.

EF는 퇴적물 내 중금속의 기원에 대한 정보와 함께 인위적 오염도를 평가하는 방법으로, 이 연구에서 보존성 원소는 입도와 상관관계가 좋은 Al을 이용하여 다음과 같이 계산하였다(Zhang and Liu, 2002).

$$EF = (C_i / Al)_{sample} / (C_i / Al)_{background} \quad (1)$$

여기서  $(C_i/Al)_{sample}$ 은 시료 중 Al에 대한 각 중금속의 농도,  $(C_i/Al)_{background}$ 은 Al에 대한 각 중금속의 배경농도를 의미한다. 이 연구에서 사용된 중금속의 배경농도는 Zhao and Yan (1994)이 제시한 황해 대륙붕 해저퇴적물의 배경농도를 이용하여 오염도 평가를 수행하였다(Cu: 18 mg/kg, Pb: 22 mg/kg, Zn: 67 mg/kg, Cd: 0.09 mg/kg, Cr: 64 mg/kg, Mn: 570 mg/kg, Ni: 26 mg/kg, Co: 13 mg/kg, Al: 6.2%).

$I_{geo}$ 는 퇴적물 내 중금속 오염도를 총 7단계로 구분하여 평가하는 방법으로 다음과 같이 계산한다(Müller, 1981).

$$I_{geo} = \log_2 \left( \frac{C_i}{1.5 C_b} \right) \quad (2)$$

여기서  $C_i$ 는 시료 내 측정된 각 중금속의 농도,  $C_b$ 는 각 중금속의 배경농도를 나타내며, 지수 1.5는 서로 다른 지각에서 존재하는 중금속의 배경농도를 보정하기 위해 사용되었다(Abdel Ghani *et al.*, 2013).

ERI는 퇴적물에서 각 금속에 대한 생태독성계수를 이용하여 해역의 생태위해성을 평가하는 방법으로 아래와 같다(Hakanson, 1980).

$$E_i = T_i \times \frac{C_i}{C_b}, \quad ERI = \sum_{m=1}^n E_i \quad (3)$$

여기서  $E_i$ 는 각 금속의 잠재적 생태위해성을 의미하며,  $T_i$ 는 생태독성계수(Cd=30, As=10, Cu, Pb, Ni=5, Cr=2, Zn=1),  $C_i$ 는 시료 내 측정된 각 중금속의 농도,  $C_b$ 는 각 중금속의 배경농도,  $n$ 은 분석항목 수를 나타낸다.

## 2.3 통계분석

이 연구에서 중금속, 입도, TOC와의 상관관계를 살펴보고, 중금속 농축의 잠재적 기원을 규명하기 위하여 피어슨 상관행렬(pearson correlation matrix)을 수행하였다. 피어슨 상관행렬은 각 원소와의 관계를 규명하고, 다양한 변수에 대한 분석결과를 입증하기 위해 사용되는 방법으로 해양환경에서 중금속의 기원을 규명하기 위해 많이 사용된다(Xu *et al.*, 2016). 통계 처리는 SPSS(버전 12.0) 프로그램을 이용하였고, 유의수준은 p-value<0.05로 하였다.

## 3. 결 과

### 3.1 입도, TOC 및 주성분 원소(Fe, Al)의 분포

연구해역 표층퇴적물 내 평균 입도(평균±표준편차)는 2.1~8.0  $\phi$ (5.1±1.8  $\phi$ ) 범위로, 조립질 퇴적물로 구성된 모래(평균 59%)가 우세하게 나타났고, 실트와 점토는 각각 평균 17%, 25%였다. 공간분포는 황해 북측 및 남측 그리고 연안을 따라 4  $\phi$



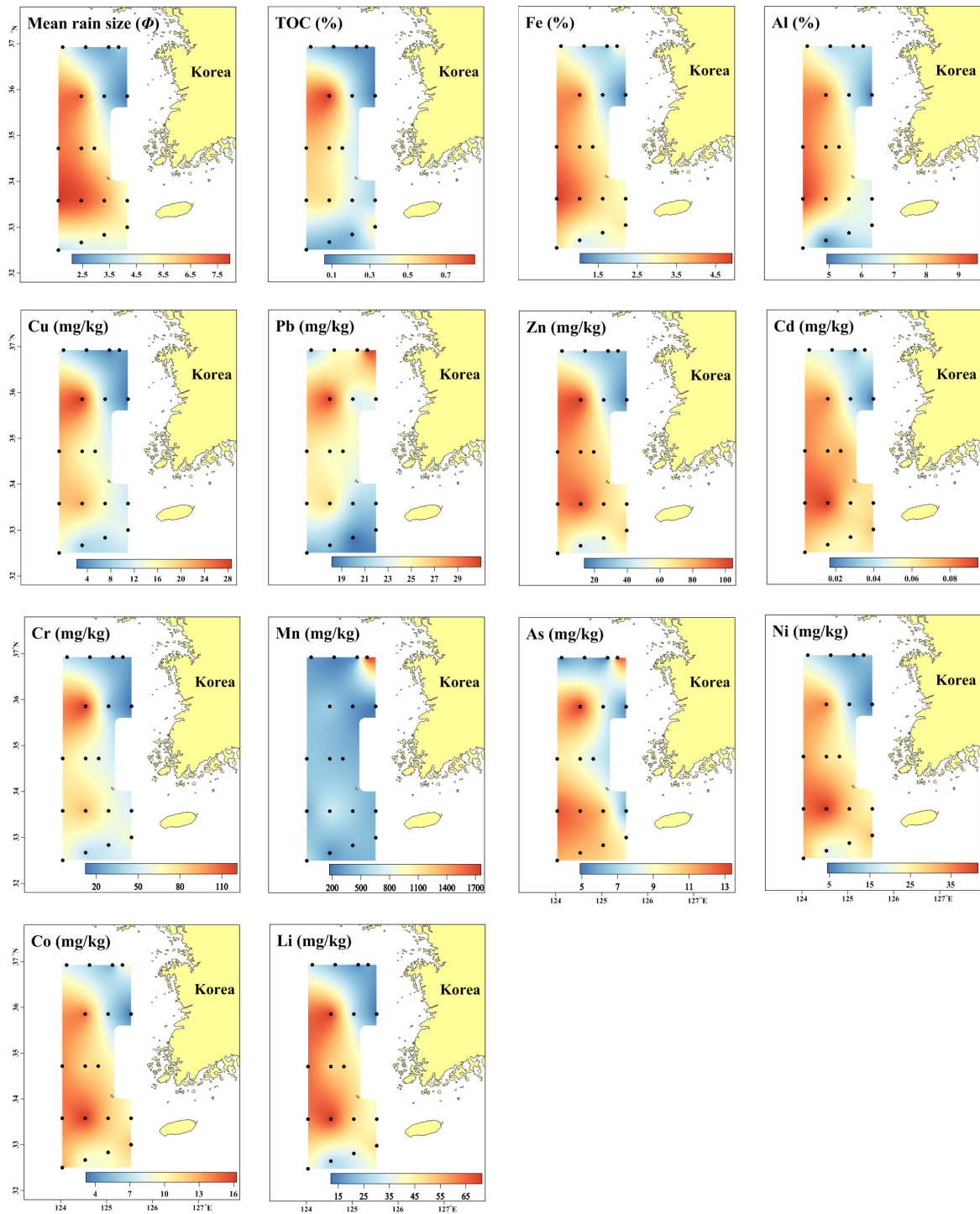


Fig. 2. The spatial distribution of heavy metal concentrations in surface sediments.

이하의 조립한 퇴적물이 분포하였고, 중앙해역으로 갈수록 세립한 분포 양상을 보였다. TOC는 0.0~0.8% ( $0.3 \pm 0.2\%$ ) 범위로, 중앙해역에 위치한 B-3 정점(0.8%)이 인근 정점에 비해 상대적으로 높게 나타났다. 주성분 원소인 Fe와 Al은 각각 1.0~4.7% ( $2.9 \pm 1.0\%$ ), 4.4~9.1% ( $6.7 \pm 1.2\%$ ) 범위였다. Fe와 Al의 분포는 입도가 세립한 정점에서 높고, 조립한 정점에서 낮은 분포를 보였다(Fig. 2).

### 3.2 중금속 농도의 공간분포

표층퇴적물 내 금속의 농도(평균±표준편차)는 Cu=2~29 mg/kg (12±7 mg/kg), Pb=18~31 mg/kg (24±4 mg/kg), Zn=14~105 mg/kg (60±26 mg/kg), Cd=0.02~0.09 mg/kg (0.06±0.02 mg/kg), Cr=12~122 mg/kg (53±27 mg/kg), Mn=170~1766 mg/kg (482±350 mg/kg), As=4~13 mg/kg (9±3 mg/kg), Ni=4~42 mg/kg (23±11 mg/kg), Co=3~16 mg/kg (10±4 mg/kg), Li=12~72 mg/kg (41±19 mg/kg) 범위였다.

중금속의 공간분포를 살펴보면(Fig. 2), 대부분의 중금속 농도는 입도 및 TOC의 분포와 유사하게 황해 중앙해역에서 상대적으로 높았고, 한국연안으로 갈수록 낮게 나타났지만 Pb, Mn, As는 다른 금속과 달리 중앙해역 뿐만 아니라 북동해역에서도 상대적으로 높게 나타났다. 정점별로는 중앙해역에 위치한 B-3 정점이 인근 정점에 비해 높은 중금속 농도를 보였다.

## 4. 토 의

### 4.1 중금속의 분포 특성 및 조절요인

중금속의 공간분포는 금속의 농축 또는 오염의 잠재적 기원을 파악하는데 유용한 정보를 제공한다(Wang *et al.*, 2017). 이 연구에서 중금속의 농도(Pb, Mn, As 제외)는 입도가 세립하고, TOC의 농도가 높은 중앙해역에서 상대적으로 높게 나타났다. Yuan *et al.* (2012)과 Huang *et al.* (2014)이 제시한 황해 남부 및 북부해역에서 중금속의 농도는 TOC와 유사한 공간분포 및 유의한 상관관계를 나타내었다. 이 연구에서도 Pb, Mn, As의 특정 정점을 제외한 모든 중금속은 TOC(평균  $r=0.86$ ,  $p<0.01$ )와 유의한 관계를 보였고, 입도(평균  $r=0.90$ ,  $p<0.01$ )와도 뚜렷한 양의 상관관계를 나타내었다(Fig. 3). 자연환경에

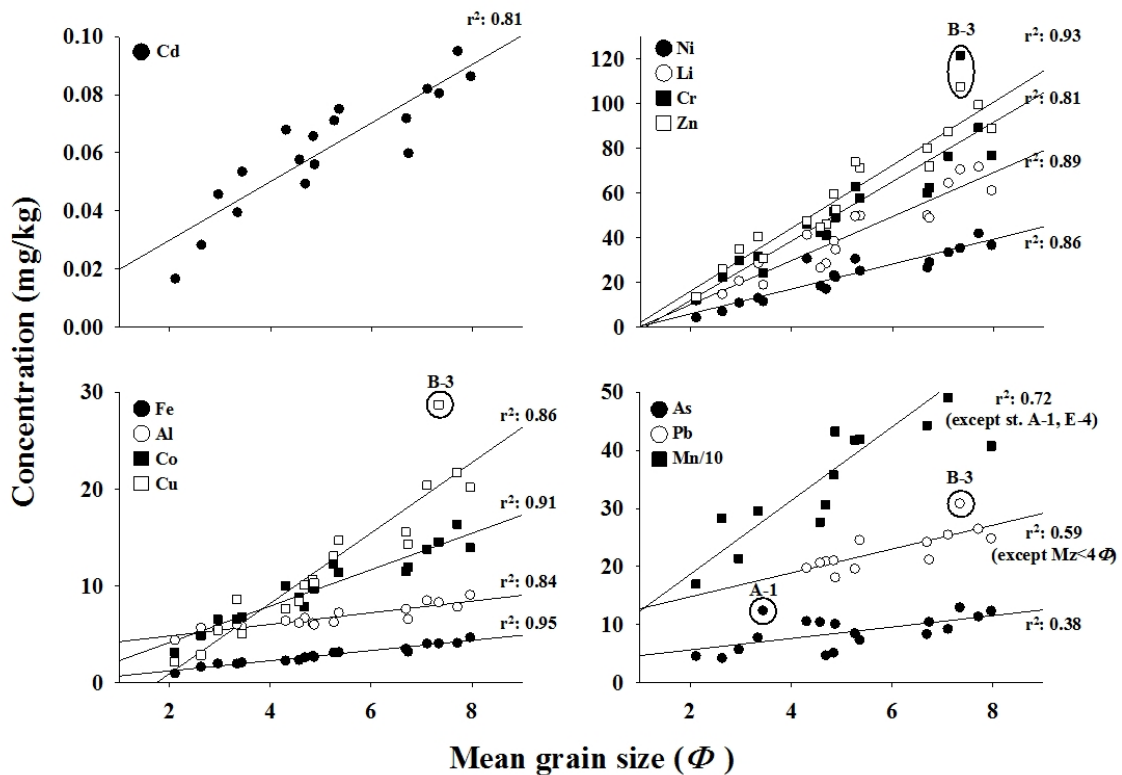


Fig. 3. Relationships between heavy metals and mean grain size in surface sediments.

서 TOC는 리간드 결합을 통하여 중금속과 유기착화합물을 잘 이루며, 입도와 함께 높은 표면적 때문에 중금속 분포에 상당한 영향을 미친다(El Bilali *et al.*, 2002; Sreekanth *et al.*, 2015). 그리고 중금속과 통계적으로 유의한 관계는 동일 기원 또는 유사한 지화학적인 과정을 가지고 있음을 나타낸다(Zhang and Gao, 2015). 따라서 황해 표층퇴적물에서 TOC와 입도는 중금속의 농도 및 거동에 영향을 미치는 주요 인자로 나타났다. 한편, 황해 중앙해역에서 높은 중금속 농도를 보이고 있는 B-3 정점은 우리나라에서 지난 1988년부터 2015년까지 육상 폐기물을 지속적으로 투기했던 인근 해역이다. 2009년 황해 투기해역(서해병)에서 조사한 자료에 의하면, 투기해역을 중심으로 Cu, Pb, Zn, Cr, Ni, As의 오염도는 높았고, 입도 의존성 원소인 Al과 유의한 관계는 나타나지 않았다(Koh *et al.*, 2013). 그리고 지난 27년 동안 상당량의 육상 폐기물이 지속적으로 투기된 점을 고려할 때, 황해 중앙해역(정점 B-3)은 과거 인위적 요인으로 인한 중금속 축적 가능성이 높다. 이 연구에서 입도와 중금속간의 관계를 살펴보면, B-3 정점에서 Cu, Pb, Zn, Cr의 농도는 비정상적으로 높게 나타났고(Fig. 3), 이는 다른 금속과 달리 인위적 오염물질의 영향을 받고 있는 것으로 판단된다(Kim *et al.*, 2009; Kim *et al.*, 2018).

Pb은 입자가 세립한 중앙해역 뿐만 아니라 조립한 북동해역에서도 상대적으로 높게 나타났다. Kim *et al.* (2000)에 의하면, 황해 북동해역은 화강암 조성의 쇄설성 퇴적물이 강을 통한 유입 또는 연안침식으로 인하여 Pb이 높게 나타나는 것으로 보고하였다. Park *et al.* (2017)은 서해 연안퇴적물에서 용출부분의 Pb은 Fe-Mn 수산화물에 의해 농도가 조절되고, 잔류부분의 Pb은 조립질 퇴적물의 K-feldspar의 영향에 의해 높게 나타나는 것으로 보고하였다. 이 연구에서 Pb의 농도는 입도와 상관성( $r^2=0.04$ )은 나타나지 않았지만 4  $\phi$  이하의 조립한 정점(A-1~3, B-1~2)을 제외하고 입도와 비교하면, 결정계수( $r^2$ )는 0.59로 양호한 관계를 나타내었다(Fig. 3). 따라서 Pb은 한반도 연안의 조립질 퇴적물에서는 암석기원 광물에 의해 지배를 받고 있으나 그 외 세립질 퇴적물에서는 다른 금속과 마찬가지로 입도 효과를 받고 있는 것으로 판단된다.

Mn은 북동쪽의 A-1 정점(1766 mg/kg)이 다른 정점(평균: 403 mg/kg)에 비해 평균 3배 이상 높게 나타났다. Mn은 높은 산소함량을 갖은 조립질 퇴적물에서 불안정한 형태로 해수 중 용존망간으로 확산 제거된 후 산화망간 형태로 퇴적되어 높게 나타나는 것으로 보고된 바 있다(Huang *et al.*, 2014). 하지만 A-1 정점 주변은 상대적으로 조립한 퇴적물(<3  $\phi$ )로 이루어져 있으나 유사한 입도를 가진 다른 정점에서 Mn의 농도는 높게 나타나지 않았다. 따라서 A-1 정점에서 Mn의 높은 농도는 조립질 퇴적물의 영향보다 생물기원의 탄산칼슘( $\text{CaCO}_3$ ) 의해 높게 나타나는 것으로 판단된다(Yuan *et al.*, 2012). Yang *et al.* (2003)과 Huang *et al.* (2014)은 황해 표층퇴적물에서 상대적으로 높은  $\text{CaCO}_3$  (5~10%)의 농도는 유기물에 의해 높게 나타났고,  $\text{CaCO}_3$ 는 Mn의 분포를 조절하는 주요 인자로 보고하였다. 또한 Mn과 같이 산화환원에 민감한 금속들은 인위적 영향보다 유기물 숙성과정을 통해 상당히 높게 나타는 것으로 알려져 있다(Fang *et al.*, 2009; Li *et al.*, 2012). 이 연구에서 Mn과 입도와의 상관성( $r^2=0.00$ )은 나타나지 않았으나, Mn의 농도가 비정상적으로 높게 나타난 A-1, E-4 정점(각 1766 mg/kg, 617 mg/kg)을 제외하면 입도와의 상관성( $r^2=0.72$ )은 뚜렷한 관계를 보였다(Fig. 3). A-1, E-4 정점은 모래의 함량이 약 78% 이상을 차지하고 있으며,  $\text{CaCO}_3$ 이 상대적으로 높기 때문에 입도와의 상관성이 전반적으로 나타나지 않은 것으로 판단된다. 따라서 Mn의 분포는 일부 정점에서는 조립질 퇴적물 내  $\text{CaCO}_3$ 의 영향을 받고 있는 것으로 보이며, 그 외 정점에서는 입도에 의해 조절되고 있는 것으로 나타났다.

As의 농도는 Pb, Mn과 유사하게 북동해역(정점 A-1) 뿐만 아니라 입도가 상대적으로 조립한 남부해역(정점 E-2~4)에서도 높게 나타났다. Song *et al.* (2011)은 As의 농도는 조립질에서도 세립질 퇴적물과 유사한 농도 수준으로 높게 나타났고, 이는 조립질 퇴적물 내 Mn 산화물과 밀접한 관련이 있는 것으로 보고하였다. 퇴적층에서의 As 용출은 As를 포함하는 황철석(pyrite)의 산화작용, As를 함유한 Fe 산화수산화물의 환원작용에 의한 용해/탈착 등의 자연적인 과정이 As 용출의 주된 기원으로 인식되나 인위적 활동에 의해서도 퇴적물에 축적될 수 있다(Masuda *et al.*, 2005). 따라서 황해 북동 및 남부해역의 조



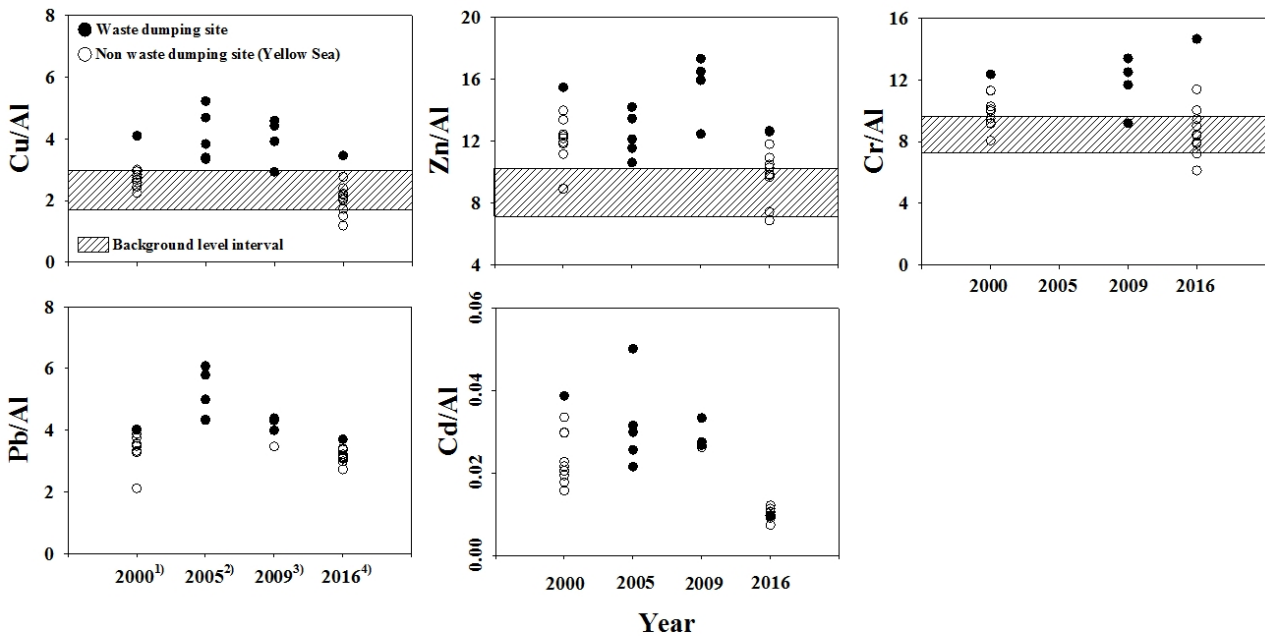
립질 퇴적물에서 As의 높은 농도는 Mn 및 Fe 산화물 그리고 황철석과 관련되어 나타나는 것으로 보이며, 이 중 조립질 퇴적물에서 높은 농도는 황철석과 같은 중광물에 의해 조절되고 있는 것으로 추정된다. 그 외 정점에서 As의 농도는 전반적으로 입도의 영향( $r^2=0.75$ )을 받고 있는 것으로 나타났다.

상기 결과로부터 황해 표층퇴적물에서 중금속의 분포 특성을 살펴보면, Pb, Mn, As는 특정 정점에서 조립질 퇴적물과 함께 높은 CaCO<sub>3</sub> 그리고 중광물(pyrite)의 영향으로 인하여 입도와와의 관계는 전반적으로 보이지 않았지만, 이들 정점을 제외하면 다른 금속과 유사하게 입도 효과에 의한 지배를 받고 있는 것으로 나타났다.

### 4.2 기존 연구결과와의 비교

퇴적물 내 중금속 농도는 과거에 조사한 황해 동부, 북부, 서부, 동중국해 자료와 함께 황해 중앙해역에 위치한 폐기물 투기해역에 대한 조사결과를 비교하였다(Table 2). 특히, 과거에 조사된 황해 동부해역 및 투기해역 자료는 이번 연구해역과 지리적으로 유사한 범위에서 연구를 수행하였으나 조사정점, 시료 수, 분석방법 등의 차이가 있어 정량적인 농도 값을 직접 비교하기에는 어려움이 있다. 하지만 이를 무시한다면 시간적으로 중금속 축적정도 및 변화 양상에 대해서는 간접적으로 추정 가능할 것으로 판단된다. 이번 연구결과를 2000년에 조사된 황해 동부해역 자료와 비교했을 때, 대부분의 중금속 농도는 기존 결과와 유사한 수준을 보여 지난 15년간 중금속의 추가적인 축적은 나타나지 않은 것으로 나타났다. 그리고 인근에 위치한 북부, 서부, 동중국해 자료 또한 대부분 항목에서 유사한 농도범위를 보였다.

황해 중앙해역(정점 B-3)에 위치한 폐기물 투기해역 인근 중금속 변화 양상을 살펴보기 위해 기존 투기해역에서 조사했던 자료(2000년, 2005년, 2009년)와 비교하였다(Fig. 4). 이전 연구에서 폐기물 투기해역 중 일부 해역은 입자가 상대적으로 조립한 준설토 투기가 이루어졌고, 이로 인하여 투기해역 내에서도 입도에 따른 서로 다른 중금속 분포 양상을 보였다(Chung *et al.*, 2017). 따라서 이 연구에서는 입도에 대한 중금속 농도를 표준화시키기 위하여 Al이 6% 이상의 자료만을 선별하여 Al



<sup>1)</sup>UNDP/GEF YSLME, 2000; <sup>2)</sup>Kim *et al.*, 2009; <sup>3)</sup>Koh *et al.*, 2013; <sup>4)</sup>This study

Fig. 4. Scatter plots of years vs. heavy metals(mg/kg)/Al(%) ratios in surface sediments.

농도(%)에 대한 각 중금속 농도(mg/kg) 비를 이용하여 비교하였다. 각 중금속 농도의 배경농도 구간에 대해서 Cu, Zn, Cr은 Lim *et al.* (2007)이 제시한 한국연안 퇴적물 중금속 자료를 이용하여 계산하였다. 투기해역에서 A1에 대한 Cu, Zn, Cr, Pb, Cd의 비(평균±표준편차)는 2.9~5.2 (4.0±0.7), 10.6~17.7 (13.9±2.3), 9.2~14.6 (12.4±1.9), 3.5~6.1 (4.5±0.8), 0.01~0.05 (0.03±0.01)였다. 기존 연구에서 A1에 대한 각 중금속의 비는 투기해역 내 조사정점에 따라 편차는 크게 나타났고, 대부분 배경농도 구간을 상회하는 결과를 보였다. 이 연구에서는 Cd을 제외한 대부분의 중금속이 기존 조사결과 범위 내에 분포하고 있었고, 비 투기해역보다 상대적으로 높은 수준의 농도 비를 보였다. 이는 시간적으로 약 15년 이상의 차이를 반영한 것으로 투기해역에 대한 저질환경은 과거에 비해 크게 개선되지 못한 것으로 판단된다. 하지만 A1에 대한 Cd의 비는 과거에 비해 상대적으로 낮았고, 일반적인 황해 퇴적물에서의 Cd 농도(0.02~0.10 mg/kg) 범위 내에 있었다. 황해 표층퇴적물에서 Cd의 농도 변화는 거의 없었고, 과거에 비해 농도 비가 상대적으로 낮아진 점을 고려하면, 투기해역에서의 Cd은 시간이 지남에 따라 유기물 분해로 인하여 재동되어 자연적으로 정화복원된 것으로 판단된다. 따라서 투기해역을 포함한 연구지역 전역에서 중금속의 추가적인 농축은 지난 15년 동안 거의 없었던 것으로 보인다.

### 4.3 중금속 농축 및 생태위해성 평가

황해 동부해역 표층퇴적물에서 중금속의 오염도는 농축인자(EF,  $I_{geo}$ )를 이용하였고, 생태위해성은 국내 및 중국 해저퇴적물 해양환경기준(TEL, MSQ-1)과 ERI를 이용하여 평가하였다.

보존성 원소로 이용된 Al을 제외한 8개 중금속에 대한 EF(평균±표준편차)은 Cu=0.2~1.2 (0.6±0.3), Pb=0.8~1.5 (1.0±0.2), Zn=0.3~1.2 (0.8±0.3), Cd=0.3~0.9 (0.6±0.1), Cr=0.3~1.4 (0.7±0.3), Ni=0.2~1.3 (0.8±0.3), Mn=0.4~3.3 (0.8±0.7), Co=0.3~1.0 (0.7±0.2) 범위로, 대부분 정점에서 EF는 1.5 이하로 연구지역 내 중금속의 농도는 비교적 농축이 없었던 것으로 나타났다(Fig. 5a). EF의 공간분포를 살펴보면, 황해 중앙해역(정점 B-3)에서 Pb, Cr의 EF 값이 1.5에 근접하는 결과를 보였고, Mn은 다른 금속들과 달리 A-1 정점에서 EF 값이 3 이상을 나타내어 비 지각물질 의해 조절 되는 것으로 나타났다.

$I_{geo}$ (평균±표준편차)는 Cu=-3.6~0.1 (-1.4±1.0), Pb=-0.9~-0.1 (-0.5±0.2), Zn=-2.9~0.1 (-0.9±0.8), Cd=-3.0~-0.5 (-1.2±0.6), Cr=-3.0~0.3 (-1.0±0.8), Ni=-3.1~0.1 (-1.0±0.9), Mn=-2.3~1.0 (-1.1±0.7), Co=-2.6~-0.3 (-1.0±0.6) 범위로, 대부분 정점에서  $I_{geo}$  class 0 이하로 unpolluted 수준이었다(Fig. 5b). 공간분포는 EF와 유사하게 황해 중앙해역(정점 B-3)에서 Cu, Zn, Cr의  $I_{geo}$  class 값이 1 (unpolluted/moderately polluted)로 상대적으로 높게 나타났다.

한국 및 중국 해저퇴적물 해양환경기준과 비교했을 때, 연구해역 내 모든 중금속은 각 나라에서 규정하고 있는 최소기준(TEL, MSQ-1) 이하로 모든 정점에서 부정적인 생태영향은 나타나지 않았다(Table 2).

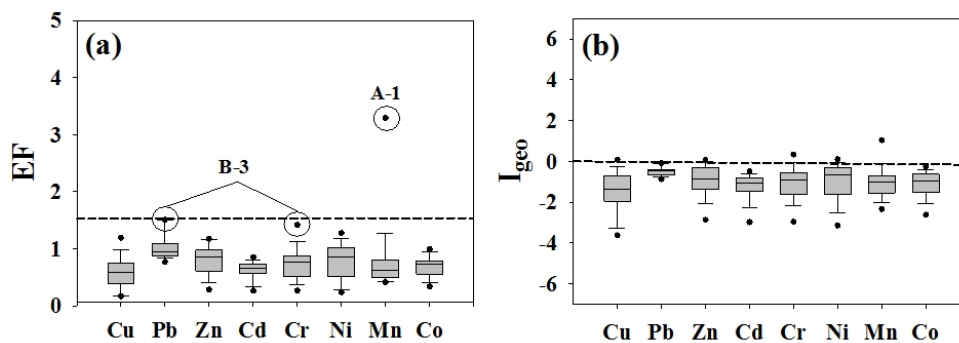


Fig. 5. Box-and-whisker plots for (a) EF and (b)  $I_{geo}$  of heavy metals in surface sediments. plots show median, 10th, 25th, 75th and 90th percentiles as vertical boxes with error bars. The outliers are shown as '●'.

Table 3.  $E_i$  and ERI values of heavy metals in surface sediments

St.	$E_i$						ERI
	Cu	Pb	Zn	Cd	Cr	Ni	
A-1	1.4	7.1	0.5	18.2	0.8	2.2	30.2
A-2	0.8	5.5	0.4	9.7	0.7	1.4	18.4
A-3	1.5	5.6	0.5	15.6	0.9	2.1	26.3
A-4	2.8	4.8	0.7	16.8	1.3	3.3	29.7
B-1	0.6	5.4	0.2	5.7	0.4	0.8	13.2
B-2	2.4	5.1	0.6	13.5	1.0	2.5	25.1
B-3	8.0	7.0	1.6	27.4	3.8	6.8	54.6
C-1	4.1	5.6	1.1	25.6	1.8	4.9	43.0
C-2	4.3	5.5	1.2	24.5	1.9	5.1	42.5
C-3	5.7	5.8	1.3	28.0	2.4	6.5	49.6
D-1	3.0	4.8	0.9	22.4	1.6	4.5	37.1
D-2	4.0	4.8	1.1	20.4	1.9	5.6	37.9
D-3	6.0	6.0	1.5	32.4	2.8	8.1	56.8
D-4	5.6	5.7	1.3	29.4	2.4	7.1	51.5
E-1	3.6	4.5	1.1	24.2	2.0	5.9	41.3
E-2	2.9	4.1	0.8	19.1	1.5	4.3	32.8
E-3	2.3	4.7	0.7	19.7	1.3	3.6	32.3
E-4	2.1	4.5	0.7	23.2	1.4	5.9	37.9

$E_i$ (평균±표준편차)는 Cu=0.6~8.0 (3.4±2.0), Pb=4.1~7.1 (5.4±0.8), Zn=0.2~1.6 (0.9±0.4), Cd=5.7~32.4 (20.9±6.9), Cr=0.4~3.8 (1.7±0.8), Ni=0.8~8.1 (4.5±2.1) 범위로, 모든 정점에서 Cu, Pb, Zn, Cd, Cr, Ni의  $E_i$  값은 low risk(40 이하) 수준으로 나타났고, ERI(평균±표준편차)는 13.2~56.8 (36.7±12.0)의 범위였다(Table 3). ERI 평가결과, 모든 정점에서 low risk(150 이하) 수준이었고, 각 금속에 대한 ERI 값의 기여율(평균)은 Cd(57%)>Pb(15%)>Ni(12%)>Cu(9%)>Cr(5%)>Zn(2%) 순으로 나타났다. 생태위해성 정도가 높게 나타난 Cd은 각 금속에 대한 절대 농도가 다른 금속보다 낮을지라도 생태독성계수가 상대적으로 높기 때문인 것으로 판단된다.

2000년에 수행되었던 황해 동부해역에서 오염도 평가결과와 비교했을 때, 이 연구에서 EF,  $I_{geo}$ , ERI(평균±표준편차)는 과거 조사결과(각  $1.0\pm 0.1$ ,  $-0.9\pm 6$ ,  $56\pm 24$ )보다 낮은 수준으로 먼 바다에서 중금속 농축은 지난 15년 동안 이루어지지 않고 있음을 나타내었다.

국내외 해저퇴적물 해양환경기준과 다양한 방법을 이용한 오염도 평가결과, 황해 해저퇴적물에서 생태위해성은 부정적인 생태영향이 거의 없을 것으로 예측되는 양호한 환경을 나타내었지만, 황해 중앙해역(정점 B-3)에서 Cu, Pb, Zn, Cr의 농축 정도가 상대적으로 높기 때문에 인위적 오염에 대한 지속적인 해양환경 모니터링이 필요할 것으로 판단된다.

## 5. 결론

황해 동부해역 표층퇴적물 내 중금속의 분포 특성을 파악하기 위하여 입도, TOC 그리고 12개의 중금속 농도를 분석하였다. 대부분의 중금속의 농도는 황해 중앙해역에서 한국연안으로 갈수록 낮아지는 경향을 보였고, 입도 및 TOC에 의해 전반적으로 조절되고 있는 것으로 나타났다. 하지만 일부 정점에서 Pb, Mn, As는 조립질 퇴적물에서의 암석기원의 영향(Feldspar), 생물기원의 영향( $CaCO_3$ ) 그리고 중광물(pyrite) 특성 차이로 입도와와의 상관성은 전반적으로 보이지 않았지만, 그 외 정점에서는 다른 금속과 유사하게 입도의 영향을 받고 있는 것으로 나타났다. 과거 황해 동부해역에서 조사된 퇴

적물 중금속 자료와 비교했을 때, 대부분의 중금속 농도는 거의 유사한 수준을 보여 지난 15년간 추가적인 농축은 없었고, 특히 해역에 대한 저질환경은 과거에 비해 크게 개선되지 못한 것으로 나타났다. 다양한 지화학적 방법(EF,  $I_{geo}$ , SQGs, ERI)을 이용한 오염도 평가결과, 황해 동부해역 표층퇴적물은 전반적으로 양호한 환경을 나타내었지만 중앙해역(정점 B-3)에서 Cu, Pb, Zn, Cr의 농축 정도가 상대적으로 높게 나타났고, 이는 다른 금속과 달리 인위적 영향을 받고 있는 것으로 판단된다. 이 연구결과는 향후 황해 동부해역에서 퇴적물의 중금속 오염도 평가 및 지속적인 해양환경관리를 위한 기초자료로서 유용한 정보를 제공할 것으로 판단된다.

## 사 사

이 연구는 해양수산부 한-중 황해 해양환경 공동조사 사업의 지원으로 수행되었습니다. 현장조사 및 시료채취에 도움을 주신 해양수질팀원과 아라미 3호 직원분들께 감사드립니다. 이 논문을 세심하게 검토해주신 익명의 심사위원분들께 진심으로 감사드립니다.

## 참고문헌(References)

- Abdel Ghani, S., G. El Zokm, A. Shobier, T. Othman and M. Shreadah, 2013. Metal pollution in surface sediments of Abu-Qir Bay and Eastern Harbour of Alexandria, Egypt. *Egyptian J. Aquat. Res.*, **39**: 1-12.
- Choi, M., H. Yi, S.Y. Yang, C. Lee and H. Cha, 2007. Identification of Pb sources in Yellow Sea sediments using stable Pb isotope ratios. *Mar. Chem.*, **107**(2): 255-274.
- Chung C., K. Song, K. Choi, Y. Kim, H. Kim, J. Jung and C. Kim, 2017. Variations in the concentrations of heavy metals through enforcement of a rest-year system and dredged sediment capping at the Yellow Sea-Byung dumping site, Korea. *Mar. Pollut. Bull.*, **124**: 512-520.
- CSBTS, 2002. Marine Sediment Quality, China.
- El Bilali, L., P.E. Rasmussen, G.E.M. Hall and D. Fortin, 2002. Role of sediment composition in trace metal distribution in lake sediments. *Appl. Geochem.*, **17**(9): 1171-1181.
- Fang, T., J. Li, H. Feng and H. Chen, 2009. Distribution and contamination of trace metals in surface sediments of the East China Sea. *Mar. Environ. Res.*, **68**(4): 178-187.
- Hakanson, L., 1980. An ecological risk index for aquatic pollution control: a sedimentological approach. *Water Res.*, **14**: 975-1001.
- He, Z., J. Song, N. Zhang, P. Zhang and Y. Xu, 2009. Variation characteristics and ecological risk of heavy metals in the south Yellow Sea surface sediments. *Environ Monit Assess.*, **157**: 515-528.
- Huang, P., T. Li, A. Li, X. Yu and N. Hu, 2014. Distribution, enrichment and sources of heavy metals in surface sediments of the North Yellow Sea. *Cont. Shelf. Res.*, **73**: 1-13.
- Hwang, D., S. Kim, M. Choi, I. Lee, S. Kim and H. Choi, 2016. Monitoring of trace metals in coastal sediments around Korean Peninsula. *Mar. Pollut. Bull.*, **102**: 230-239.
- Jiang, X., A. Teng, W. Xu and X. Liu, 2014. Distribution and pollution assessment of heavy metals in surface sediments in the Yellow Sea. *Mar. Pollut. Bull.*, **83**: 366-375.
- Kim, K.T., H.S. Shin, C.R. Lim, Y.G. Cho, G.H. Hong, S.H. Kim, D.B. Yang and M.S. Choi, 2000. Geochemistry of Pb in surface sediments of the Yellow Sea: contents and speciation. *J. Kor. Soc. Oceanogr.*, **35**: 179-191.
- Kim, P., M. Park and K. Sung, 2009. Distribution of heavy metals in marine sediments at the ocean waste disposal site in the Yellow Sea, South Korea. *Geosci. J.*, **13**: 15-24.

- Kim, J., D.I. Lim, D. Jung, J. Kang, H. Jung, H. Woo, K. Jeong and Z. Xu, 2018. Sedimentary mercury (Hg) in the marginal seas adjacent to Chinese high-Hg emissions: Source-to-sink, mass inventory and accumulation history. *Mar. Pollut. Bull.*, **128**: 428-437.
- Koh, H., Y. Choi, S. Park, H. Cha, D. Chang, C. Lee and H. Yoon, 2013. Concentration of metallic elements in surface sediments at a waste disposal site in the Yellow Sea. *J. Environ. Sci. Int.*, **22**(7): 787-799.
- Lee, M., W. Bae, J. Chung, H.S. Jung and H. Shim, 2008. Seasonal and spatial characteristics of seawater and sediment at Youngil Bay, southeast coast of Korea. *Mar. Pollut. Bull.*, **57**: 325-334.
- Li, X., L. Liu, Y. Wang, G. Luo, X. Chen, X. Yang, B. Gao and X. He, 2012. Integrated assessment of heavy metal contamination in sediments from a coastal industrial basin, NE China. *PloS One*, **7**(6): e39690.
- Lim, D., J.W. Choi, H.S. Jung, H.Y. Choi and Y.O. Kim, 2007. Natural background level analysis of heavy metal concentration in Korean coastal sediments. *Ocean Polar Res.*, **29**(4): 379-389.
- Lim, D., J.W. Choi, H.H. Shin, D.H. Jeong and H.S. Jung, 2013. Toxicological impact assessment of heavy metal contamination on macrobenthic communities in southern coastal sediments of Korea. *Mar. Pollut. Bull.*, **73**: 362-368.
- Long, E.R., L.J. Field and D.D. Macdonald, 1998. Predicting toxicity in marine sediments with numerical sediment quality guidelines. *Environ. Toxicol. Chem.*, **17**(4): 714-727.
- Masuda, H., Y. Yamatani and M. Okai, 2005. Transformation of arsenic compounds in modern intertidal sediments of Iriomote Island, Japan. *J. geochem. explor.*, **87**: 73-81.
- MOF, 2013. Marine Environment Quality Standards, Korea.
- Müller, G., 1981. Die Schwermetallbelastung der sedimente des Neckars und seiner Nebenflüsse: Eine Bestandsaufnahme. *Chem. Zeitung*, **105**: 157-164.
- Park, J., M. Choi, Y. Song and D. Lim, 2017. Tracing the origin of Pb using stable Pb isotopes in surface sediments along the Korean Yellow Sea coast. *Ocean Sci. J.*, **52**(2): 177-192.
- Song, K., S. Lee, S. Lee and Y. Ahn, 2007. Ecological model experiments of the spring bloom at a dumping site in the Yellow Sea. *Ocean Polar Res.*, **29**(3): 217-231.
- Song, Y.H., M.S. Choi and Y.W. Ahn, 2011. Trace metals in Chun-su Bay sediments. *J. Kor. Soc. Oceanogr.*, **16**(4): 169-179.
- Sreekanth, A., S.K. Mrudulrag, E. Cheriyan and C.H. Sujatha, 2015. Trace metal enrichment and organic matter sources in the surface sediments of Arabian Sea along southwest India (Kerala coast). *Mar. Pollut. Bull.*, **101**: 938-946.
- UNDP/GEF YSLME, 2000. The Yellow Sea: Analysis of the environmental status and trends, **2**: 234-243.
- Wang, Y., M. Ling, R. Liu, P. Yu, A. Tang, X. Luo and Q. Ma, 2017. Distribution and source identification of trace metals in the sediment of Yellow River Estuary and the adjacent Laizhou Bay. *Phys. Chem. Earth.*, **97**: 62-70.
- Xu, X., Z. Cao, Z. Zhang, R. Li and B. Hu, 2016. Spatial distribution and pollution assessment of heavy metals in the surface sediments of the Bohai and Yellow Seas. *Mar. Pollut. Bull.*, **110**: 596-602.
- Yang, S.Y., H.S. Jung, D.I. Lim and C.X. Li, 2003. A review on the provenance discrimination of sediments in the Yellow Sea. *Earth. Sci. Rev.*, **63**: 93-120.
- Yuan, H., J. Song, X. Li, N. Li and L. Duan, 2012. Distribution and contamination of heavy metals in surface sediments of the South Yellow Sea. *Mar. Pollut. Bull.*, **64**: 2151-2159.
- Zhang, J. and C.L. Liu, 2002. Riverine composition and estuarine geochemistry of particulate metals in China-weathering features, anthropogenic impact and chemical fluxes. *Estuar. Coast. Shelf Sci.*, **54**: 1051-1070.
- Zhang, J. and X. Gao, 2015. Heavy metals in surface sediments of the intertidal Laizhou Bay, Bohai Sea, China: distributions, sources and contamination assessment. *Mar. Pollut. Bull.*, **98**: 320-327.
- Zhao, Y.Y. and M.C. Yan, 1994. *Geochemistry of the China Shelf Sea*. Science Press, Beijing, 202pp.