

산 처리에 의한 김(*Pyropia* sp.)의 유해 중금속(Cd, Cr, Pb) 제거 효과

목종수* · 손광태¹ · 이태식¹ · 이가정 · 정연중 · 김지회¹

국립수산과학원 남동해수산연구소, ¹국립수산과학원 식품위생가공과

Removal of Hazardous Heavy Metals (Cd, Cr, and Pb) from Laver *Pyropia* sp. with Acid Treatment

Jong Soo Mok*, Kwang Tae Son¹, Tae Seek Lee¹, Ka Jeong Lee, Yeoun Joong Jung and Ji Hoe Kim¹

Southeast Sea Fisheries Research Institute, National Institute of Fisheries Science, Tongyeong 53085, Korea

¹Food Safety Research Division, National Institute of Fisheries Science, Busan 46083, Korea

We examined the removal of hazardous heavy metals (Cd, Cr, and Pb) from laver *Pyropia* sp. using citric, hydrochloric, and nitric acids. Under the same conditions, the quality of the laver samples was also evaluated using the variation in absorbance and major mineral levels. The heavy metals that accumulated in raw laver samples after 3 days in seawater included Pb (117.79 µg/g), Cr (33.53 µg/g), and Cd (10.54 µg/g) in descending order. The rate of heavy metal removal from laver was higher at lower pH for all acids used. However, its color changed unsatisfactorily at pH 2.0. After 10 min in seawater at pH 2.5, the heavy metals in laver were eliminated in the order Cd (68.7–81.6%), Pb (57.7–67.0%), and Cr (31.9–49.4%) using the three acids. The differences in heavy metal removal among acid types were not significant. The laver quality was not affected after 20 min at the pH range of 2.5–4.0. The maximum removal of heavy metals was from laver soaked for 10 min in seawater at pH 2.5 using the organic acid, citric acid.

Key words: Laver, Heavy metal, Citric acid, Quality, Organic acid

서 론

우리나라에서는 예로부터 해조류를 즐겨 식용해 왔으며, 세계에서 해조류를 가장 많이 소비하는 국가 중의 하나이다(Mok et al., 2005). 근년 양식기술의 발달로 우리나라의 김, 미역, 다시마 등 해조류의 생산량은 2014년에 세계에서 4번째로 많은 양인 약 110만 M/T이 생산되었다(FAO, 2014). 특히, 해조류 중에서 김의 생산량은 2005년에 약 20만 M/T이던 것이 2010년에는 23만 M/T, 2012년에는 35만 M/T, 2015년에는 39만 M/T으로 그 생산량이 크게 증가하는 추세이다(Statistics Korea, 2015). 일반적으로 생김은 무침이나 조림 형태로 조리하여 일부 이용되기는 하나, 생산 시기가 한정되는 관계로 대부분 마른 김 형태로 소비되고 있다. 마른 김은 원료 생김을 해수와 담수를 사용하여 연화과정을 거친 후 탈수 및 성형 과정을 거쳐 건조기를 사용하여 건조하여 100장 단위로 묶은 제품으로 시중에 판매되고 있다(Lee et al., 2000).

또한, 보건복지부 질병관리본부(KCDC, 2011)의 통계에 의하

면 우리 국민이 섭취하는 식품의 총량은 1인 1일 평균 1,504.7 g이며, 이중 어패류 56.9 g, 해조류 4.6 g을 섭취하는 것으로 나타나 있다. 해조류는 칼슘(Ca), 마그네슘(Mg), 요오드(I), 철(Fe), 아연(Zn) 등 필수 미량원소의 함유량이 높은 것이 특징이며, 종류에 따라서는 특이한 생리활성을 나타내는 식이섭유를 비롯한 각종 유효성분도 함유되어 있고, 소위 성인병과 비만예방효과가 있다는 것이 여러 연구에서 밝혀져 있다(Cho et al., 1995; Im et al., 2006; Son et al., 2012).

한편, 우리나라는 급속한 산업발전과 다양한 인간활동으로 각종 생활하수, 산업폐수 등에 의하여 연안 해역의 환경오염이 증가되고 있다. 실제 육상에서 연안 해역으로 유입되는 오염물질들은 희석, 확산, 분해 등의 과정을 통하여 감소되지만, 서식생물의 경우 생물농축 과정을 통하여 오히려 체내에 중금속 등의 오염 물질들이 농축되기 때문에 대부분 연안에서 서식하고 있는 김, 미역, 다시마 등의 해조류는 중금속 오염에 노출되기 쉽다(Conti and Cecchetti, 2003). 해조류는 중금속을 체내 농축

<http://dx.doi.org/10.5657/KFAS.2016.0556>



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 49(5) 556-563, October 2016

Received 23 July 2016; Revised 23 August 2016; Accepted 2 September 2016

*Corresponding author: Tel: +82. 55. 640. 4760 Fax: +82. 55. 641. 2036

E-mail address: mjs0620@korea.kr

하게 되고, 이를 섭취하는 사람에게 건강상 유해를 미칠 우려가 있다(Mok et al., 2005; Son et al., 2012). 특히, 카드뮴(Cd)은 국제암연구소(IARC, International Agency for Research on Cancer)에서 Group I급 발암물질로 규정되어 있고, 골다공증을 유발시키는 것으로 알려져 있다(Whelton et al., 1997). 또한 납(Pb)은 호흡과 식품을 통하여 체내에 흡수되면 대사되지 않고 대부분이 배출되지만 배출되지 않은 Pb (약 20%)은 뼈와 치아 등에 90% 이상이 축적되어 건강상 유해를 일으킬 수 있다(KMFDS, 2007; Marsden and Rainbow, 2004).

한국에서 생산된 김 중의 유해 중금속인 Cd, Cr 및 Pb의 함량에 관하여 몇몇 연구자에 의하여 수행되었으며(Choi et al., 1998; Mok et al., 2005; Hwang et al., 2007; Son et al., 2012), 이들 연구자들은 Cd, Cr 및 Pb의 평균농도는 각각 0.096-1.60, 0.155-0.70 및 0.046-0.680 µg/g이 검출되었다고 보고하였다. 또한, 해조류의 유해중금속 잘 축적하는 특성을 이용하여 해조류를 이용한 오염수 중의 중금속 제거에 대한 논문은 다수 있으나(Suzuki et al., 2005; Ahmady-Asbchin et al., 2009; Mithra et al., 2012), 김 등의 해조류 중에 포함되어 있는 중금속 제거에 대한 보고는 거의 없었다. 다만, Kim et al. (2015)에 의하면 해조류에서 As, Cd 등의 유해 중금속을 카본 분말 및 탄산 나트륨 혼합액을 사용하여 제거하는 방법이 보고된 바 있으나, 중금속이 제거된 해조류를 식용으로 사용하기 위하여는 이들을 제거하는 후처리 공정이 필요하다고 하였다.

본 연구에서는 김의 식품위생학적 안전성 확보를 위하여 우리나라에서 해조류 중 생산량과 섭취량이 가장 많은 김에 함유된 유해 중금속(Cd, Cr, Pb)을 효과적으로 제거하기 위하여 인위적으로 중금속을 축적시켰으며, 축적된 중금속의 제거를 위하여 질산, 염산 및 구연산 등의 산을 이용한 최적 제거 조건을 구명하였다.

재료 및 방법

실험재료

중금속 제거 시험에 사용한 김(*Pyropia* sp.)은 창원시 용원 소재 위판장에서 판매되고 있는 것을 직접 구입한 후 여과해수로 씻어 조체에 부착된 협잡물을 제거한 다음 탈수하여 사용하였다. 실험에 중금속 분석용 시약은 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% 질산용액에 24시간 이상 침지시킨 후 초순수로 깨끗이 씻어 건조시켜서 사용하였다. 중금속 분석을 위한 표준액(Merck, Darmstadt, Germany)은 초순수로 희석하여 사용하였다.

유해 중금속 제거를 위한 최적 산처리 조건 설정

김에 유해 중금속(Cd, Cr, Pb)을 인위적으로 농축시키는 공정

을 거친 후 김 중에 농축된 중금속을 산 처리하여 제거시켰다. 즉, 유해 중금속별 농축 정도를 측정하였으며, 산의 종류 및 첨가량에 따른 제거 효과 정도를 살펴보았다. 또한 중금속 제거로 인한 김의 품질 저하 정도를 측정하여 중금속 제거를 위한 최적 산처리 조건을 설정하였다.

유해 중금속(Cd, Cr, Pb) 및 미네랄 함량 분석

김 중의 중금속 및 미네랄 함량 분석을 위한 전처리는 식품공전(KMFDS, 2016)의 습식분해법을 일부 변경하여 사용하였다. 즉, 생김 시료를 초순수로 가볍게 씻어 동결건조기(FDU-2100, EYELA, Tokyo, Japan)로 건조한 후 분쇄하여 사용하였다. 그리고 분말 김 시료 1 g을 테프론 튜브에 넣고 65% 질산을 10 mL 첨가하여 상온에서 150분간 반응시킨 후 80°C에서 400분간 가열 분해하였다. 분해된 시험용액의 질산은 완전히 휘발시키고, 2% 질산을 사용하여 100 mL로 정용한 후 분석에 사용하였다. 중금속 및 미네랄 함량은 유도결합플라즈마 질량분석기(ICP-MS, Perkin-Elmer, Elan 6000, Wellesley, 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)에 요구하는 수준을 만족하였다.

김의 유해 중금속(Cd, Cr, Pb) 농축

유해 중금속(Cd, Cr, Pb)을 각각 0.5 µg/mL 농도가 되도록 첨가한 여과해수(pH 8.2)에 탈수한 김 시료를 넣고, 온도 10±2°C, 조도 550±10 lx에서 배양하면서 중금속을 인위적으로 농축시켰다. 이때, 동일한 중금속을 함유한 해수를 1일 1회 환수하였다.

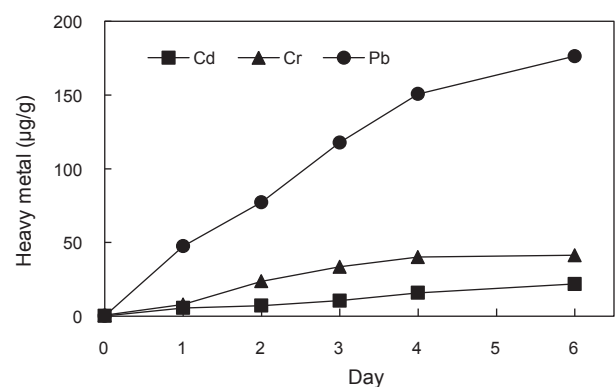


Fig. 1. Accumulation of heavy metals in laver *Pyropia* sp. during incubation in seawater including Cd, Cr, and Pb.

김의 유해 중금속(Cd, Cr, Pb) 제거 시험

유해 중금속을 농축시킨 김 시료는 조체에 부착한 중금속을 제거하기 위하여 충분한 양의 여과해수로 세정한 후 탈수하였다. 그리고 탈수한 김 시료는 산(구연산, 염산, 질산)을 첨가하여 pH를 2.0, 2.5, 3.0 및 4.0으로 조정해 해수에 침지하여 처리시간에 따른 중금속의 제거효율과 품질변화를 측정하였다.

김의 품질변화 측정

산 처리에 의한 김의 품질변화 지표로서는 세포 내용물의 유

출을 살펴보기 위하여 처리액의 흡광도를 측정하였다. 이때, 흡광도는 253 nm 및 340 nm에서 각각 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).

Table 1. Stability of heavy metals concentrated in laver *Pyropia* sp. samples

Heavy metal	Before concentration	Concentration ($\mu\text{g/g}$ dry weight) ¹		
		Control (non-treatment)	Seawater (30 min)	0.1 mM EDTA (10 min)
Cd	0.09±0.01 ²	47.1±6.2	48.2±5.9	44.4±6.0
Cr	2.13±0.58	35.2±8.6	38.6±9.4	32.2±8.8
Pb	0.18±0.06	197.2±46.9	188.1±42.0	188.1±52.4

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

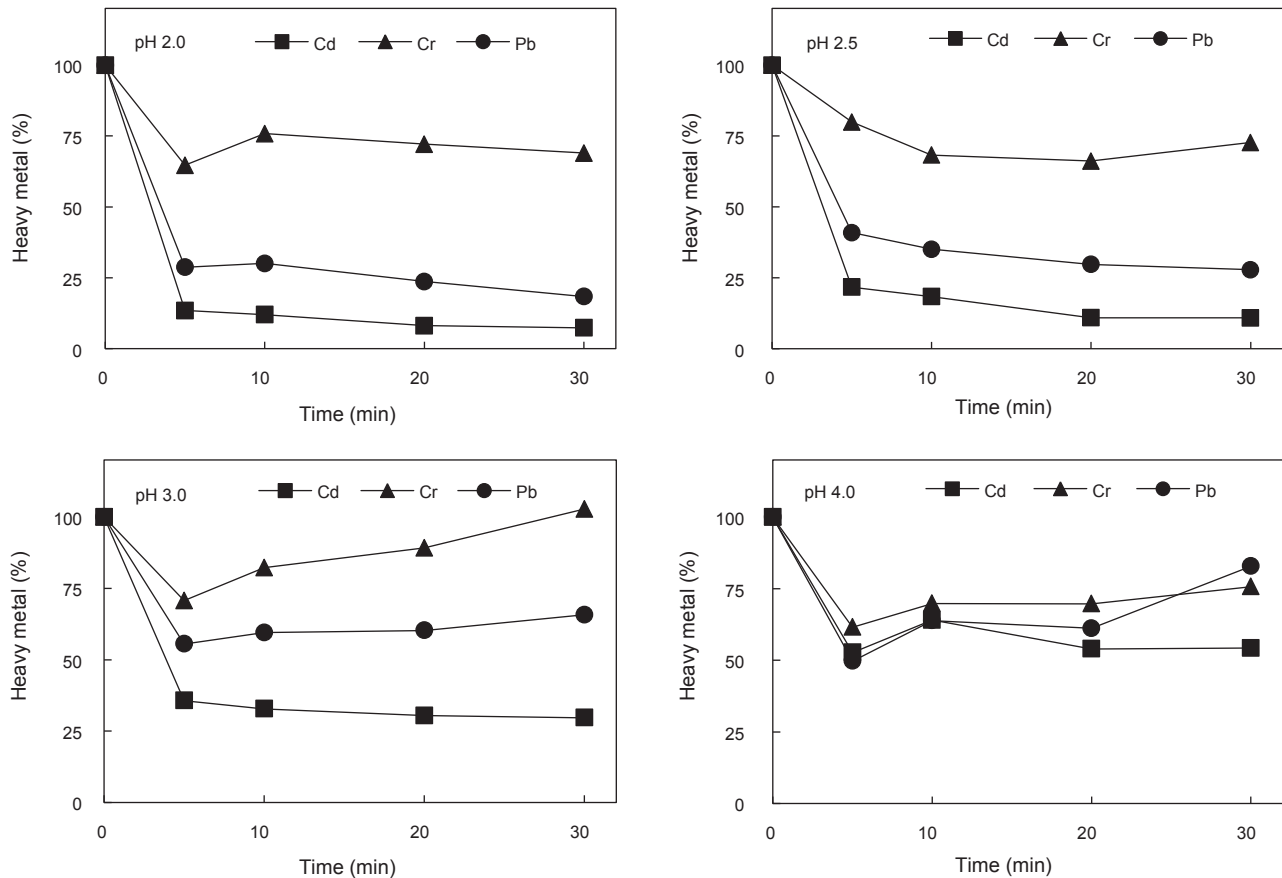


Fig. 2. Removal rate of heavy metals in laver *Pyropia* sp. using citric acid.

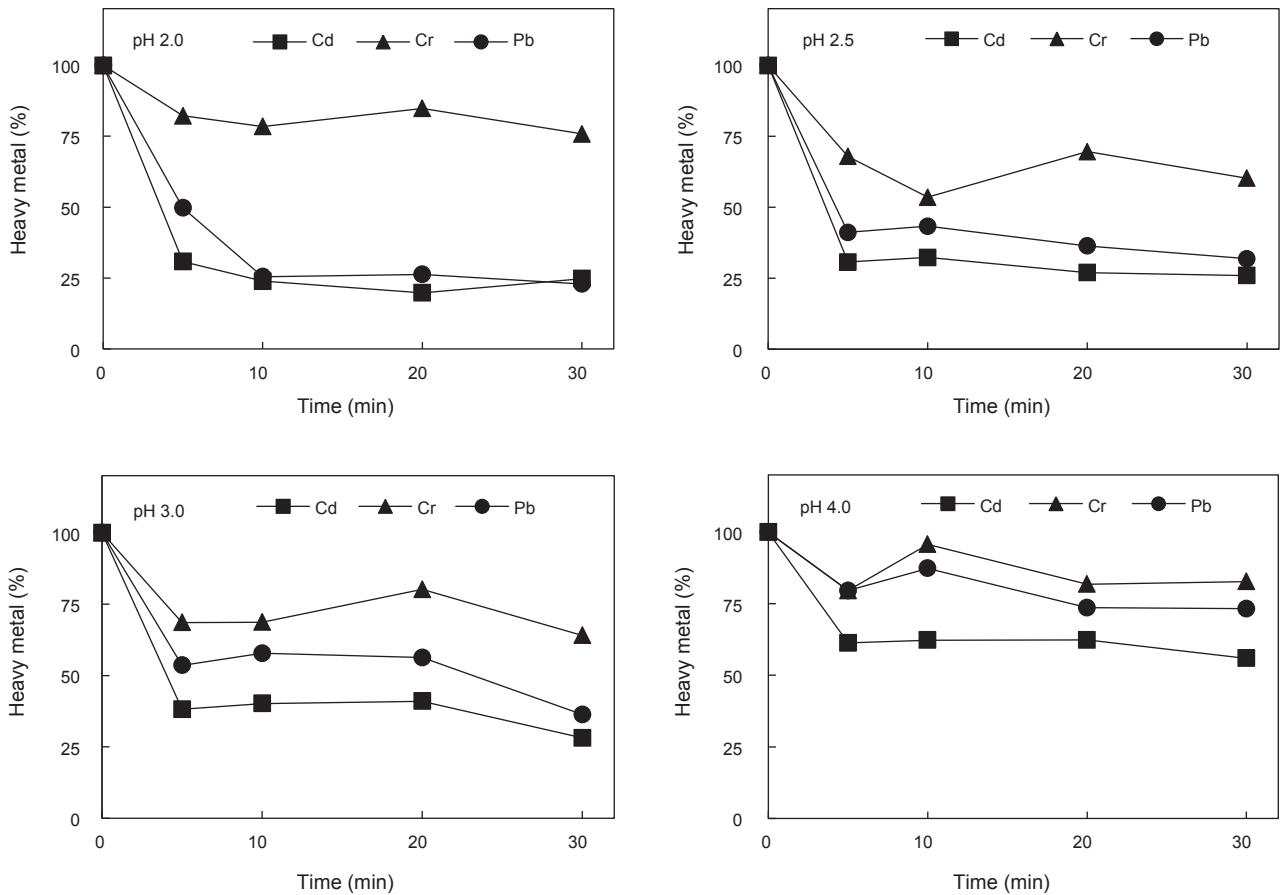


Fig. 3. Removal rate of heavy metals in laver *Pyropia* sp. using hydrochloric acid.

결과 및 고찰

김의 유해 중금속 농축

유해 중금속(Cd, Cr, Pb)을 인위적으로 첨가한 해수에서 생김을 넣어 배양하였을 때 유해 중금속의 농축 정도는 Fig. 1에 나타내었다. 유해 중금속 중에서 김은 Pb를 가장 잘 농축하였으며, 다음으로 Cr, Cd 순이었다($P < 0.05$). 또한 각 시료에서 중금속 농축량은 배양기간이 연장될수록 증가하는 경향을 나타내었다. 그러나 장기간 배양을 하면 김 조직에 부정적 영향이 미치고, 또한 시험 3일 후에는 Pb를 제외하고는 큰 변화가 없어 향후 실험에 있어서 3일 동안 농축시킨 시료를 중금속 제거 시험을 위한 시료로 사용하였다. 중금속 함유 해수에서 3일간 배양하였을 때 중금속 농도는 김 시료 건조중량 당 Pb ($117.79 \mu\text{g/g}$), Cr ($33.53 \mu\text{g/g}$), Cd ($10.54 \mu\text{g/g}$) 순으로 높았다. 이들 함량은 Mok et al. (2005)이 보고한 우리나라에서 생산된 김 중의 유해 중금속(Cd, Cr 및 Pb)의 평균함량 보다 각각 약 6.6배, 47.9배 및 378배 높은 값이었다.

또한, 유해 중금속이 김의 세포 내로 농축되어 있는지 아니

면 조체 외부에 부착되어 있는 지를 알아보기 위하여 3일간 중금속을 농축시킨 김을 여과 해수에 30분 침지시킨 것과 탈이온수를 이용하여 금속 킬레이트제인 0.1 mM EDTA 를 제조한 용액에 10분간 침지시킨 것의 중금속 농도를 비교하였다(Table 1). 김은 Cd ($47.1 \pm 6.2 \mu\text{g/g}$), Cr ($35.2 \pm 8.6 \mu\text{g/g}$) 및 Pb ($197.2 \pm 46.9 \mu\text{g/g}$)를 각각 농축하였으며, 해수 및 0.1 mM EDTA 용액에 침지한 후에는 Cd는 각각 48.2 ± 5.9 및 $44.4 \pm 6.0 \mu\text{g/g}$, Cr은 각각 38.6 ± 9.4 및 $32.2 \pm 8.8 \mu\text{g/g}$, 그리고 Pb는 각각 188.1 ± 42.0 및 $188.1 \pm 52.4 \mu\text{g/g}$ 이었다. 이상의 결과 유해 중금속을 농축한 김은 해수 및 EDTA 용액에 침지한 후에도 대조구와 유의한 차이를 나타내지 않아, 이들 중금속을 김의 세포 내로 잘 농축되는 것으로 확인되었다.

산 처리에 의한 김의 유해 중금속 제거 효과

유해 중금속이 농축된 김을 구연산, 염산 및 질산을 사용하여 pH 2.0-4.0으로 조정된 해수에 1:30 (w/v) 비율로 첨가하여 시험한 결과를 Fig. 2, 3, 4에 나타내었다. 이때, 유해 중금속들의 제거효과는 사용한 산의 종류에 관계없이 카드뮴이 가장 잘 제

Table 2. Change of mineral concentrations in laver *Pyropia* sp. samples by soaking times in pH 2.5 seawater adjusted by citric acid

Mineral	Mineral concentration (µg/g dry weight)				
	0 min	5 min	10 min	20 min	30 min
Ca	1,016±22 ¹	904±7	897±31	898±55	948±10
Cu	6.0±0.4	5.0±0.3	4.4±0.3	4.0±0.4	3.6±0.1
Fe	289±11	244±4	237±8	224±7	228±14
Mg	2,995±326	2,987±445	2,806±285	2,712±169	2,793±363
Mn	125±13	105±11	99.2±11.7	84.3±13.2	81.8±7.3
Zn	31.6±0.7	26.4±0.9	22.5±0.2	20.9±1.5	21.1±0.5

¹Mean value±SD.

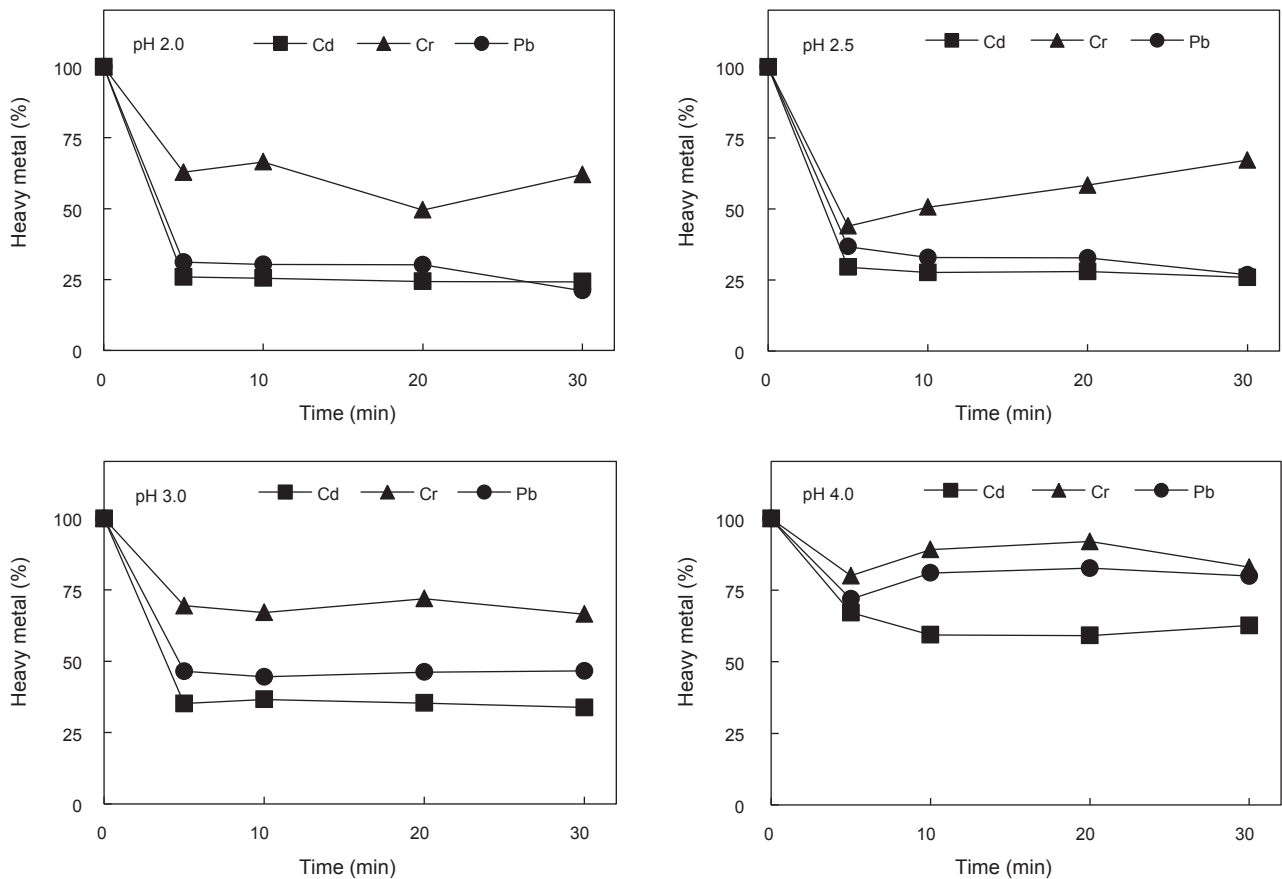


Fig. 4. Removal rate of heavy metals in laver *Pyropia* sp. using nitric acid.

거되었으며, 다음으로 납, 크롬 순이었다. 처리시간에 따라서는 각 금속원소에서 초기 10분에 많은 양이 제거되고, 그 이후에는 제거효과가 낮았다. 그리고 처리액의 pH에 따라서는 카드뮴과 납은 pH가 낮을수록 제거율이 증가하는 경향을 나타내었으며, 크롬은 pH 2.5에서 가장 높은 제거율을 보였다. 그러나 pH 2.0에서 처리하였을 때 구연산과 질산 처리구에서는 20분, 염산 처리구에서는 10분 후에 조체가 약간 변색되는 경향을 나타내었

다. 따라서 김은 pH 2.5에서 10분 정도 처리하는 것이 가장 바람직할 것으로 생각되었으며, 이 때 각 유해 중금속의 제거율은 산의 종류에 따라 약간 차이는 있으나 Cd (68.7-81.6%), Pb (57.7-67.0%), Cr (31.9-49.4%)의 순이었다.

한편, 우리나라 식품의약품안전처(KMFDS, 2016)에서는 김에서 Cd의 오염이 우려되어 김(조미김 포함)에 대한 Cd 기준을 0.3 µg/g (생물 기준, 건물중량으로 환산하면 약 3.03 µg/g에 해

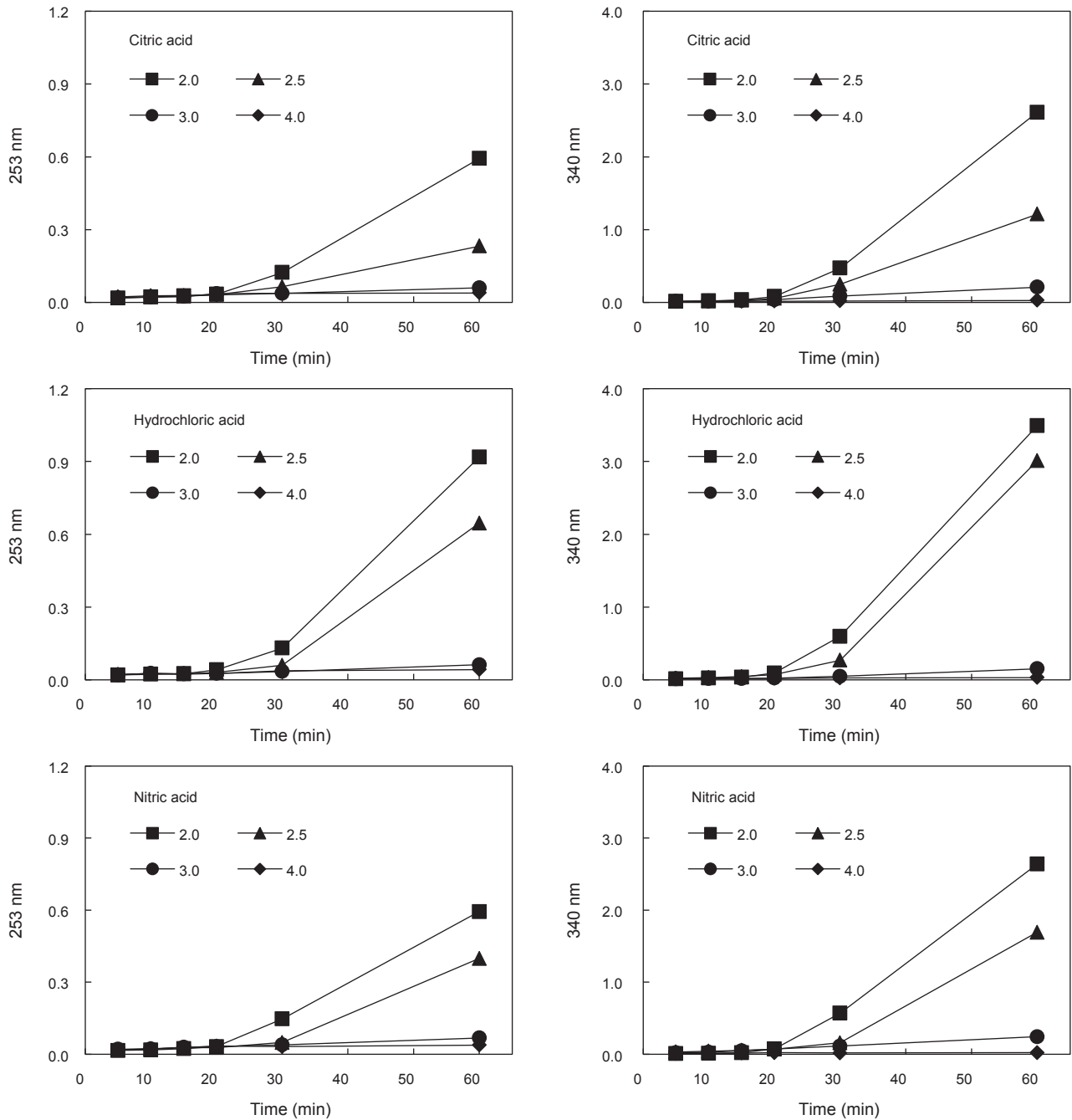


Fig. 5. Absorbance change of seawater during eliminating heavy metals in laver *Pyropia* sp. samples using citric acid, hydrochloric acid, and nitric acid.

당)으로 설정하였다. 또한, Mok et al. (2005)의 보고에 의하면 Cd은 주요 식용해조류인 김, 미역, 다시마 및 파래 중에 김에서 가장 높게 검출되며, 김 중에서도 이들 유해 중금속 중 Cd이 가장 높게 검출된다고 하였다. 우리나라 김의 Cd 평균함량은 우리나라 기준치를 초과하지는 않지만, 시료에 따라 편차가 크

로 이에 대한 관리 및 적절한 제어기술이 필요하다. Hwang et al. (2007)의 보고에 의하면 우리나라에서 생산된 김 중의 Cd 최고 함량은 건물기준으로 4.422 $\mu\text{g/g}$ 으로 이는 우리나라 기준치인 3.03 $\mu\text{g/g}$ 보다 높았으나, 이 김을 유기산인 구연산으로 처리한다고 가정할 경우 Cd 함량은 약 0.8144 $\mu\text{g/g}$ 으로 저하될 것

으로 추정된다.

이상의 결과, 김에 축적된 중금속은 처리에 사용하는 산의 종류에 관계없이 낮은 pH에서 효과적으로 제거되어 유기산(구연산)을 사용하면 식품에도 적용이 가능할 것으로 판단되었다.

산 처리에 의한 김의 품질변화

김에 농축된 유해 중금속을 제거하기 위하여 산으로 처리할 때 조체의 품질변화 지표로서 처리액의 흡광도(253 및 340 nm) 변화를 측정하였다(Fig. 5). 사전 시험에서 산 처리 중에 김은 처리액 중으로 미량의 물질들이 유출되었으며, 흡광도 측정 결과 253 및 340 nm에서 가장 높은 값을 나타내어 이들 값을 지표로 선정하였다. 김 세포 내용물의 유출을 나타내는 처리액의 흡광도는 모든 처리조건에서 20분까지는 거의 변화가 없었으나, 그 이후 증가하는 경향을 나타내었으며 산의 종류에 관계없이 pH가 낮은 처리구일수록 그 경향은 뚜렷하였다. 특히 염산 처리액은 구연산이나 질산 처리액보다 더 높은 흡광도 값을 나타내어 염산이 다른 산보다 더 많은 세포 내용물을 유출시키는 것으로 판단되었다. 또한, 김의 클로로필 농도 변화는 처리 전 대조구가 건조중량 당 약 2,200 µg/g이었으며, 클로로필 함량은 산의 종류에 관계없이 pH 2.0으로 조정된 해수에서 처리하였을 때에는 시간경과에 따라 다소 감소하는 경향이었으나, 그 이외의 시험구에서는 30분까지 처리하여도 거의 변화가 없었다(결과 미제시).

이상의 결과, 품질변화 지표로 사용된 유출되는 세포내용물 함량은 pH 2.5 이상에서는 처리시간 20분까지 거의 변화가 없었다. 따라서 산에 의하여 중금속을 제거할 때에는 품질변화를 고려하여 pH 2.5에서 10분 이내로 처리하면 안정할 것으로 판단되었다. 특히, 김은 구연산처리에 의하여 엽체가 부드러워지는 것을 확인할 수 있어, 마른 김을 제조하기 위하여 2-5시간 요 구되는 숙성시간을 단축시킬 수 있을 것으로 사료되었다.

구연산 최적 처리조건에서 김의 주요 미네랄성분 변화

김의 산처리 최적 조건으로 나타난 구연산 pH 2.5로 조정된 해수에서 처리시간에 따른 주요 미네랄 성분 변화를 측정하였다(Table 2). 구연산을 처리하지 않은 대조구의 주요 미네랄 성분의 함량은 건조중량으로 Ca 1,016, Cu 6.0, Fe 289, Mg 2,995, Mn 125, Zn 31.6 µg/g이었다. Mg과 Ca는 구연산 처리 시간 30분까지 그다지 변화하지 않았으나, Cu, Fe, Mn 및 Zn은 시간이 경과할수록 감소하는 경향을 보였다. 그리고 최적 처리 시간인 10분 이내에는 Mg 6%, Ca 12%, Fe 18%, Mn 20%, Cu 27%, Zn 29%가 감소하여 대체로 김에 많이 함유 되어있는 미네랄 성분일수록 감소율은 낮은 경향을 나타내었다. 한편, 김의 경우 자연해수에 30분간 처리하였을 때 약 5% 내외의 미네랄 성분 감소가 일어나는 것으로 나타났다(결과 미제시).

Kim et al. (2005)은 해수 중에 생활하는 해조류는 해수 중에 존재하고 있는 미량금속을 생육에 필요한 만큼 흡수하여 이용하기 때문에 해수 중에 많이 존재하는 Na, Mg, Ca, K 등을 적게

농축한다고 보고하였다. 반면, 해수 중에 적게 존재하는 미량금속은 많이 농축한다고 하였다. 우리의 결과에서도 해수에 많이 들어 있는 미네랄 성분인 마그네슘의 김에서 제거율이 가장 낮게 나타나 해수에 많이 들어 있는 성분일수록 적게 제거되는 것으로 판단되며, 해수에 거의 없는 농축된 유해 중금속의 제거율이 이들보다 더 높은 것은 이것에 기인하는 것으로 추정된다.

사 사

이 논문은 2016년도 국립수산물학원 수산과학연구사업(R2016059)의 지원으로 수행된 연구이며 연구비 지원에 감사드립니다.

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.
- Conti ME and Cecchetti G. 2003. A biomonitoring study: Trace metals in algae and molluscs from Tyrrhenian coastal areas. *Environ Res* 93, 99-112. [http://dx.doi.org/10.1016/S0013-9351\(03\)00012-4](http://dx.doi.org/10.1016/S0013-9351(03)00012-4).
- 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, Lee TS, Park HY and Son KT. 2015. Method for eliminating heavy metal in seaweeds using organic acids and seaweeds which heavy metal is eliminated by using thereof. Retrieved from <http://patent.ndsl.kr/patDetail.do?cn=KOR1020140157897> on August 23, 2016.
- 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. <http://dx.doi.org/10.3746/jkfn.2005.34.7.1041>.

- KCDC (Korea Centers for Disease Control and Prevention). 2011. Korea health statistics 2010: The fifth Korea national health and nutrition examination survey. Cheongju, Korea.
- KMFDS (Korea Ministry of Food and Drug Safety). 2007. What is Food-Borne Lead?. Research Report of KMFDS. KMFDS, Cheongju, Korea.
- 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.
- Lee TS, Lee HJ, Byun HS, Kim JH, Park MJ, Park HY and Jung KJ. 2000. Effect of heat treatment in dried lavers and modified processing. *J Kor Fish Soc* 33, 529-532.
- Marsden ID and Rainbow PS. 2004. Does the accumulation of trace metals in crustaceans affect their ecology - the amphipod example? *J Exp Mar Ecol* 300, 373-408. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jembe.2003.12.009>.
- 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, 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. <http://dx.doi.org/10.3746/jkfn.2005.34.9.1464>.
- 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>.
- Whelton BD, Peterson DP, Moretti ES, Dare H and Bhattacharyya MH. 1997. Skeletal changes in multiparous, nulliparous and ovariectomized mice fed either a nutrient-sufficient or -deficient diet containing cadmium. *Toxicol* 119, 103-121. [http://dx.doi.org/10.1016/S0300-483X\(96\)03614-1](http://dx.doi.org/10.1016/S0300-483X(96)03614-1).