

Heavy Metal Concentrations in Wild Mussels *Mytilus galloprovincialis* (Lamarck, 1819) during 2001– 2023 and Potential Risks for Consumers: A Study on the Romanian Black Sea Coast

Andra Oros ^{1,*}, Elena-Daniela Pantea ² and Elena Ristea ^{1,3}

¹ Chemical Oceanography and Marine Pollution Department, National Institute for Marine Research and Development (NIMRD) “Grigore Antipa”, 300 Mamaia Blvd., 900581 Constanta, Romania; eristea@alpha.rmri.ro

² Ecology and Marine Biology Department, National Institute for Marine Research and Development (NIMRD) “Grigore Antipa”, 300 Mamaia Blvd., 900581 Constanta, Romania; epantea@alpha.rmri.ro

³ Institute of Doctoral Studies, Doctoral School of Applied Chemistry and Materials Science, Chemical Engineering and Biotechnology Domain, Polytechnic University, 1-7 Polizu Street, 011061 Bucharest, Romania

* Correspondence: aoros@alpha.rmri.ro

Table S1. The Estimated daily intake (mg/kg/day) (EDIs), Estimated weekly intake (mg/kg/week) (EWIs), and Target hazard quotients (THQs) for Cu, Cd, Cr and Ni in two groups consuming mussels (*Mytilus galloprovincialis*) from Romanian coasts of the Black Sea (2001-2023).

Metal	Year	EDIs		EWIs		THQs	
		Children	Adults	Children	Adults	Children	Adults
Copper (Cu)	2001	3.05 x 10 ⁻⁵ E-05	1.31 x 10 ⁻⁵	2.14 x 10 ⁻⁴	9.17 x 10 ⁻⁵	7.64 x 10 ⁻⁴	3.27 x 10 ⁻⁴
	2002	2.37 x 10 ⁻⁵	1.01 x 10 ⁻⁵	1.66 x 10 ⁻⁴	7.13 x 10 ⁻⁵	5.94 x 10 ⁻⁴	2.54 x 10 ⁻⁴
	2003	6.53 x 10 ⁻⁶	2.80 x 10 ⁻⁶	4.57 x 10 ⁻⁵	1.96 x 10 ⁻⁵	1.63 x 10 ⁻⁴	7.06 x 10 ⁻⁵
	2004	2.92 x 10 ⁻⁵	1.25 x 10 ⁻⁵	2.05 x 10 ⁻⁴	8.78 x 10 ⁻⁵	7.32 x 10 ⁻⁴	3.13 x 10 ⁻⁴
	2005	3.27 x 10 ⁻⁵	1.40 x 10 ⁻⁵	2.29 x 10 ⁻⁴	9.81 x 10 ⁻⁵	8.18 x 10 ⁻⁴	3.50 x 10 ⁻⁴
	2006	1.18 x 10 ⁻⁵	5.08 x 10 ⁻⁶	8.31 x 10 ⁻⁵	3.56 x 10 ⁻⁵	2.96 x 10 ⁻⁴	1.27 x 10 ⁻⁴
	2007	3.40 x 10 ⁻⁵	1.46 x 10 ⁻⁵	2.38 x 10 ⁻⁴	1.02 x 10 ⁻⁴	8.52 x 10 ⁻⁴	3.65 x 10 ⁻⁴
	2008	1.58 x 10 ⁻⁵	6.78 x 10 ⁻⁶	1.10 x 10 ⁻⁴	4.75 x 10 ⁻⁵	3.95 x 10 ⁻⁴	1.69 x 10 ⁻⁴
	2009	1.53 x 10 ⁻⁵	6.55 x 10 ⁻⁶	1.07 x 10 ⁻⁴	4.59 x 10 ⁻⁵	3.82 x 10 ⁻⁴	1.63 x 10 ⁻⁴
	2010	1.62 x 10 ⁻⁵	6.97 x 10 ⁻⁶	1.13 x 10 ⁻⁴	4.88 x 10 ⁻⁵	4.06 x 10 ⁻⁴	1.74 x 10 ⁻⁴
	2011	2.72 x 10 ⁻⁵	1.16 x 10 ⁻⁵	1.90 x 10 ⁻⁴	8.16 x 10 ⁻⁵	6.80 x 10 ⁻⁴	2.91 x 10 ⁻⁴
	2012	7.14 x 10 ⁻⁵	3.06 x 10 ⁻⁵	5.00 x 10 ⁻⁴	2.14 x 10 ⁻⁴	1.78 x 10 ⁻³	7.65 x 10 ⁻⁴
	2013	5.84 x 10 ⁻⁵	2.50 x 10 ⁻⁵	4.09 x 10 ⁻⁴	1.75 x 10 ⁻⁴	1.46 x 10 ⁻³	6.26 x 10 ⁻⁴
	2014	6.98 x 10 ⁻⁵	2.99 x 10 ⁻⁵	4.88 x 10 ⁻⁴	2.09 x 10 ⁻⁴	1.74 x 10 ⁻³	7.48 x 10 ⁻⁴
	2015	7.63 x 10 ⁻⁵	3.27 x 10 ⁻⁵	5.34 x 10 ⁻⁴	2.29 x 10 ⁻⁴	1.90 x 10 ⁻³	8.18 x 10 ⁻⁴

Metal	Year	EDIs		EWIs		THQs	
		Children	Adults	Children	Adults	Children	Adults
	2016	9.63×10^{-5}	4.12×10^{-5}	6.74×10^{-4}	2.88×10^{-4}	2.40×10^{-3}	1.03×10^{-3}
	2017	1.38×10^{-4}	5.92×10^{-5}	9.67×10^{-4}	4.14×10^{-4}	3.45×10^{-3}	1.48×10^{-3}
	2018	1.07×10^{-4}	4.62×10^{-5}	7.55×10^{-4}	3.23×10^{-4}	2.69×10^{-3}	1.15×10^{-3}
	2019	1.18×10^{-4}	5.08×10^{-5}	8.30×10^{-4}	3.56×10^{-4}	2.96×10^{-3}	1.27×10^{-3}
	2020	7.87×10^{-5}	3.37×10^{-5}	5.51×10^{-4}	2.36×10^{-4}	1.96×10^{-3}	8.43×10^{-4}
	2021	3.82×10^{-5}	1.63×10^{-5}	2.67×10^{-4}	1.14×10^{-4}	9.55×10^{-4}	4.09×10^{-4}
	2022	4.10×10^{-5}	1.75×10^{-5}	2.87×10^{-4}	1.23×10^{-4}	1.02×10^{-3}	4.39×10^{-4}
	2023	4.24×10^{-5}	1.82×10^{-5}	2.97×10^{-4}	1.27×10^{-4}	1.06×10^{-3}	4.55×10^{-4}

Metal	Year	EDIs		EWIs		THQs	
		Children	Adults	Children	Adults	Children	Adults
Cadmium (Cd)	2001	1.88×10^{-5}	8.07×10^{-6}	1.31×10^{-4}	5.65×10^{-5}	1.88×10^{-1}	8.07×10^{-2}
	2002	3.34×10^{-6}	1.43×10^{-6}	2.34×10^{-5}	1.03×10^{-5}	3.34×10^{-2}	1.43×10^{-2}
	2003	7.45×10^{-7}	3.19×10^{-7}	5.22×10^{-6}	2.23×10^{-6}	7.45×10^{-3}	3.19×10^{-3}
	2004	1.60×10^{-6}	6.87×10^{-7}	1.12×10^{-5}	4.81×10^{-6}	1.60×10^{-2}	6.87×10^{-3}
	2005	1.88×10^{-6}	8.09×10^{-7}	1.32×10^{-5}	5.66×10^{-6}	1.88×10^{-2}	8.09×10^{-3}
	2006	5.47×10^{-7}	2.34×10^{-7}	3.83×10^{-6}	1.64×10^{-6}	5.47×10^{-3}	2.34×10^{-3}
	2007	5.47×10^{-6}	2.34×10^{-6}	3.83×10^{-5}	1.64×10^{-5}	5.47×10^{-2}	2.34×10^{-2}
	2008	3.77×10^{-6}	1.61×10^{-6}	2.64×10^{-5}	1.13×10^{-5}	3.77×10^{-2}	1.61×10^{-2}
	2009	2.30×10^{-6}	9.87×10^{-7}	1.61×10^{-5}	6.91×10^{-6}	2.30×10^{-2}	9.87×10^{-3}
	2010	2.20×10^{-6}	9.43×10^{-7}	1.54×10^{-5}	6.60×10^{-6}	2.20×10^{-2}	9.43×10^{-3}
	2011	2.02×10^{-6}	8.67×10^{-7}	1.41×10^{-5}	6.07×10^{-6}	2.02×10^{-2}	8.67×10^{-3}
	2012	6.44×10^{-6}	2.76×10^{-6}	4.51×10^{-5}	1.93×10^{-5}	6.44×10^{-2}	2.76×10^{-2}
	2013	7.96×10^{-6}	3.41×10^{-6}	5.57×10^{-5}	2.39×10^{-5}	7.96×10^{-2}	3.41×10^{-2}
	2014	2.87×10^{-5}	1.23×10^{-5}	2.01×10^{-4}	8.63×10^{-5}	2.87×10^{-1}	1.23×10^{-1}
	2015	4.81×10^{-6}	2.06×10^{-6}	3.36×10^{-5}	1.44×10^{-5}	4.81×10^{-2}	2.06×10^{-2}
	2016	2.57×10^{-5}	1.10×10^{-6}	1.79×10^{-4}	7.71×10^{-5}	2.57×10^{-1}	1.10×10^{-1}
	2017	2.04×10^{-5}	8.78×10^{-6}	1.43×10^{-4}	6.14×10^{-5}	2.04×10^{-1}	8.78×10^{-2}
	2018	1.99×10^{-5}	8.53×10^{-6}	1.39×10^{-4}	5.97×10^{-5}	1.99×10^{-1}	8.53×10^{-2}
	2019	2.70×10^{-5}	1.15×10^{-5}	1.89×10^{-4}	8.10×10^{-5}	2.70×10^{-1}	1.15×10^{-1}
	2020	1.33×10^{-5}	5.70×10^{-6}	9.32×10^{-5}	3.99×10^{-5}	1.33×10^{-1}	5.70×10^{-2}
	2021	1.25×10^{-5}	5.38×10^{-6}	8.78×10^{-5}	3.76×10^{-5}	1.25×10^{-1}	5.38×10^{-2}
	2022	1.59×10^{-5}	6.83×10^{-6}	1.11×10^{-4}	4.78×10^{-5}	1.59×10^{-1}	6.83×10^{-2}
	2023	1.60×10^{-5}	6.87×10^{-6}	1.12×10^{-4}	4.81×10^{-5}	1.60×10^{-1}	6.87×10^{-2}

Metal	Year	EDIs		EWIs		THQs	
		Children	Adults	Children	Adults	Children	Adults
Chromium (Cr)	2004	5.23×10^{-6}	2.24×10^{-6}	3.66×10^{-5}	1.56×10^{-5}	1.74×10^{-3}	7.47×10^{-4}
	2006	1.37×10^{-6}	5.90×10^{-7}	9.65×10^{-6}	4.13×10^{-6}	4.59×10^{-4}	1.96×10^{-4}
	2007	5.13×10^{-6}	2.19×10^{-6}	3.59×10^{-5}	1.53×10^{-5}	1.71×10^{-3}	7.32×10^{-4}
	2008	6.41×10^{-6}	2.75×10^{-6}	4.49×10^{-5}	1.92×10^{-5}	2.13×10^{-3}	9.16×10^{-4}
	2009	8.30×10^{-6}	3.55×10^{-6}	5.81×10^{-5}	2.49×10^{-5}	2.76×10^{-3}	1.18×10^{-3}
	2010	3.05×10^{-5}	1.31×10^{-5}	2.14×10^{-4}	9.17×10^{-5}	1.01×10^{-2}	4.36×10^{-3}
	2011	8.95×10^{-6}	3.83×10^{-6}	6.26×10^{-5}	2.68×10^{-5}	2.98×10^{-3}	1.27×10^{-3}
	2012	2.42×10^{-6}	1.04×10^{-6}	1.70×10^{-5}	7.28×10^{-6}	8.09×10^{-4}	3.47×10^{-4}
	2013	8.56×10^{-6}	3.67×10^{-6}	5.99×10^{-5}	2.57×10^{-5}	2.85×10^{-3}	1.22×10^{-3}
	2014	5.54×10^{-6}	2.37×10^{-6}	3.88×10^{-5}	1.66×10^{-5}	1.84×10^{-3}	7.92×10^{-4}
	2015	1.21×10^{-5}	5.19×10^{-6}	8.48×10^{-5}	3.63×10^{-5}	4.03×10^{-3}	1.73×10^{-3}
	2016	1.94×10^{-5}	8.33×10^{-6}	1.36×10^{-4}	5.83×10^{-5}	6.48×10^{-3}	2.77×10^{-3}
	2017	3.86×10^{-5}	1.65×10^{-5}	2.70×10^{-4}	1.16×10^{-4}	1.28×10^{-2}	5.52×10^{-3}
	2018	1.03×10^{-5}	4.29×10^{-6}	7.02×10^{-5}	3.01×10^{-5}	3.34×10^{-3}	1.43×10^{-3}
	2019	8.46×10^{-5}	3.62×10^{-5}	5.92×10^{-4}	2.54×10^{-4}	2.82×10^{-2}	1.20×10^{-2}
	2021	8.61×10^{-5}	3.69×10^{-5}	6.03×10^{-4}	2.58×10^{-4}	2.87×10^{-2}	1.23×10^{-2}
	2022	1.28×10^{-5}	5.50×10^{-6}	8.98×10^{-5}	3.85×10^{-5}	4.27×10^{-3}	1.83×10^{-3}
	2023	2.01×10^{-5}	8.61×10^{-6}	1.40×10^{-4}	6.03×10^{-5}	6.70×10^{-3}	2.87×10^{-3}

Metal	Year	EDIs		EWIs		THQs	
		Children	Adults	Children	Adults	Children	Adults
Nickel (Ni)	2003	5.26×10^{-6}	2.25×10^{-6}	3.68×10^{-5}	1.57×10^{-5}	2.63×10^{-4}	1.12×10^{-4}
	2004	1.60×10^{-5}	6.88×10^{-6}	1.12×10^{-4}	4.82×10^{-5}	8.03×10^{-4}	3.44×10^{-4}
	2005	2.96×10^{-5}	1.27×10^{-5}	2.07×10^{-4}	8.90×10^{-5}	1.48×10^{-3}	6.35×10^{-4}
	2006	9.10×10^{-6}	3.90×10^{-6}	6.37×10^{-5}	2.73×10^{-5}	4.55×10^{-4}	1.95×10^{-4}
	2007	8.70×10^{-6}	3.72×10^{-6}	6.09×10^{-5}	2.61×10^{-5}	4.35×10^{-4}	1.86×10^{-4}
	2008	4.86×10^{-6}	2.08×10^{-6}	3.40×10^{-5}	1.45×10^{-5}	2.43×10^{-4}	1.04×10^{-4}
	2009	7.78×10^{-6}	3.33×10^{-6}	5.45×10^{-5}	2.33×10^{-5}	3.89×10^{-4}	1.66×10^{-4}
	2010	5.80×10^{-6}	2.48×10^{-6}	4.06×10^{-5}	1.74×10^{-5}	2.90×10^{-4}	1.24×10^{-4}
	2011	1.05×10^{-5}	4.52×10^{-6}	7.39×10^{-5}	3.16×10^{-5}	5.28×10^{-4}	2.26×10^{-4}
	2012	1.01×10^{-5}	4.35×10^{-6}	7.11×10^{-5}	3.04×10^{-5}	5.08×10^{-4}	2.17×10^{-4}
	2013	2.61×10^{-5}	1.11×10^{-5}	1.82×10^{-4}	7.83×10^{-5}	1.30×10^{-3}	5.59×10^{-4}
	2014	3.33×10^{-5}	1.42×10^{-5}	2.33×10^{-4}	9.99×10^{-5}	1.66×10^{-3}	7.13×10^{-4}
	2015	1.65×10^{-5}	7.10×10^{-6}	1.16×10^{-4}	4.97×10^{-5}	8.28×10^{-4}	3.55×10^{-4}
	2016	4.05×10^{-5}	1.73×10^{-5}	2.83×10^{-4}	1.21×10^{-4}	2.02×10^{-3}	8.68×10^{-4}
	2017	4.80×10^{-5}	2.05×10^{-5}	3.36×10^{-4}	1.44×10^{-4}	2.40×10^{-3}	1.03×10^{-3}
	2018	6.53×10^{-5}	2.80×10^{-5}	4.57×10^{-4}	1.96×10^{-4}	3.26×10^{-3}	1.40×10^{-3}
	2019	5.47×10^{-5}	2.34×10^{-5}	3.83×10^{-4}	1.64×10^{-4}	2.73×10^{-3}	1.17×10^{-3}
	2020	4.40×10^{-5}	1.88×10^{-5}	3.08×10^{-4}	1.32×10^{-4}	2.20×10^{-3}	9.43×10^{-4}
	2021	4.26×10^{-5}	1.82×10^{-5}	2.98×10^{-4}	1.27×10^{-4}	2.13×10^{-3}	9.13×10^{-4}
	2022	1.93×10^{-5}	8.27×10^{-6}	1.35×10^{-4}	5.79×10^{-5}	9.66×10^{-4}	4.14×10^{-4}
	2023	1.50×10^{-5}	6.42×10^{-6}	1.05×10^{-4}	4.50×10^{-5}	7.50×10^{-4}	3.21×10^{-4}

Table S2. The Estimated daily intake (mg/kg/day) (EDIs). Estimated weekly intake (mg/kg/week) (EWIs) and Carcinogenic Risk Index (CRIs) for Pb in two groups consuming mussels (*Mytilus galloprovincialis*) from Romanian coasts of the Black Sea (2001-2023).

Metal	Year	EDIs		EWIs		CRIs	
		Children	Adults	Children	Adults	Children	Adults
Lead (Pb)	2001	3.24×10^{-5}	1.38×10^{-5}	2.26×10^{-4}	9.72×10^{-5}	2.75×10^{-7}	1.18×10^{-7}
	2002	5.62×10^{-7}	2.41×10^{-7}	3.93×10^{-6}	1.68×10^{-6}	4.78×10^{-9}	2.04×10^{-9}
	2003	5.24×10^{-6}	2.24×10^{-6}	3.67×10^{-5}	1.57×10^{-5}	4.45×10^{-8}	1.91×10^{-8}
	2004	3.52×10^{-7}	1.50×10^{-7}	2.46×10^{-6}	1.05×10^{-5}	2.99×10^{-9}	1.28×10^{-9}
	2005	2.19×10^{-5}	9.42×10^{-6}	1.53×10^{-4}	6.59×10^{-5}	1.86×10^{-7}	8.01×10^{-8}
	2006	7.55×10^{-8}	3.23×10^{-8}	5.28×10^{-7}	2.26×10^{-7}	6.42×10^{-10}	2.75×10^{-10}
	2007	2.32×10^{-6}	9.98×10^{-7}	1.63×10^{-5}	6.98×10^{-6}	1.98×10^{-8}	8.48×10^{-9}
	2008	4.03×10^{-6}	1.73×10^{-6}	2.82×10^{-5}	1.21×10^{-5}	3.43×10^{-8}	1.47×10^{-8}
	2009	1.99×10^{-5}	8.55×10^{-6}	1.39×10^{-4}	5.98×10^{-5}	1.69×10^{-7}	7.27×10^{-8}
	2010	3.50×10^{-6}	1.50×10^{-6}	2.45×10^{-5}	1.05×10^{-5}	2.98×10^{-8}	1.27×10^{-8}
	2011	1.36×10^{-5}	5.85×10^{-6}	9.56×10^{-5}	4.09×10^{-5}	1.16×10^{-7}	4.97×10^{-8}
	2012	1.14×10^{-6}	4.91×10^{-7}	8.02×10^{-6}	3.43×10^{-6}	9.74×10^{-9}	4.17×10^{-9}
	2013	3.67×10^{-6}	1.57×10^{-6}	2.57×10^{-5}	1.10×10^{-5}	3.12×10^{-8}	1.33×10^{-8}
	2014	2.10×10^{-8}	9.01×10^{-9}	1.47×10^{-7}	6.30×10^{-8}	1.78×10^{-10}	7.65×10^{-11}
	2015	4.98×10^{-6}	2.13×10^{-6}	3.48×10^{-5}	1.49×10^{-5}	4.23×10^{-8}	1.81×10^{-8}
	2016	3.19×10^{-6}	1.36×10^{-6}	2.23×10^{-5}	9.58×10^{-6}	2.71×10^{-8}	1.16×10^{-8}
	2017	4.11×10^{-6}	1.76×10^{-6}	2.88×10^{-5}	1.23×10^{-5}	3.49×10^{-8}	1.49×10^{-8}
	2018	4.34×10^{-7}	1.86×10^{-7}	3.04×10^{-6}	1.30×10^{-6}	3.69×10^{-9}	1.58×10^{-9}
	2019	8.68×10^{-7}	3.72×10^{-7}	6.07×10^{-6}	2.60×10^{-6}	7.38×10^{-9}	3.16×10^{-9}
	2020	9.13×10^{-7}	3.91×10^{-7}	6.39×10^{-6}	2.74×10^{-6}	7.76×10^{-9}	3.32×10^{-9}
	2021	3.51×10^{-5}	1.50×10^{-5}	2.46×10^{-4}	1.05×10^{-4}	2.98×10^{-7}	1.28×10^{-7}
	2022	8.58×10^{-6}	3.67×10^{-6}	6.01×10^{-5}	2.57×10^{-5}	7.29×10^{-8}	3.12×10^{-8}
	2023	3.10×10^{-5}	1.33×10^{-5}	2.17×10^{-4}	9.31×10^{-5}	2.63×10^{-7}	1.13×10^{-7}

Table S3. The Total hazard quotient (TTHQ) for cumulative risk of Cu, Cd, Cr and Ni in two groups consuming mussels (*Mytilus galloprovincialis*) from Romanian coasts of the Black Sea (2001-2023).

Year	TTHQ (cumulative risk of several heavy metal exposures) Children	TTHQ (cumulative risk of several heavy metal exposures) Adults
2001	1.89×10^{-1}	8.11×10^{-2}
2002	3.40×10^{-2}	1.45×10^{-2}
2003	5.33×10^{-5}	3.37×10^{-3}
2004	1.93×10^{-2}	8.28×10^{-3}
2005	2.11×10^{-2}	9.08×10^{-3}
2006	6.69×10^{-3}	2.86×10^{-3}
2007	5.77×10^{-2}	2.47×10^{-2}
2008	4.05×10^{-2}	1.73×10^{-2}
2009	2.65×10^{-2}	1.13×10^{-2}
2010	3.29×10^{-2}	1.41×10^{-2}
2011	2.44×10^{-2}	1.04×10^{-2}
2012	6.75×10^{-2}	2.89×10^{-2}
2013	8.52×10^{-2}	3.65×10^{-2}
2014	2.93×10^{-1}	1.25×10^{-1}
2015	5.49×10^{-2}	2.35×10^{-2}
2016	2.68×10^{-1}	1.14×10^{-1}
2017	2.23×10^{-1}	9.58×10^{-2}
2018	2.08×10^{-1}	8.93×10^{-2}
2019	3.04×10^{-1}	1.30×10^{-1}
2020	1.37×10^{-1}	5.88×10^{-2}
2021	1.59×10^{-1}	6.82×10^{-2}
2022	1.70×10^{-1}	7.31×10^{-2}
2023	1.72×10^{-1}	7.39×10^{-2}