



Original Article

Analysis and Evaluation of Contamination Status of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Settled House and Road Dust Samples from Hanoi

Hoang Quoc Anh^{1,2}, Shin Takahashi², Duong Thi Thao^{1,3}, Nguyen Hung Thai^{1,4},
Pham Thanh Khiet⁵, Nguyen Thi Quynh Hoa⁶, Le Thi Phuong Quynh⁷,
Le Nhu Da⁷, Tu Binh Minh¹, Tran Manh Tri^{1,*}

¹VNU University of Science, Vietnam National University, Hanoi, 19 Le Thanh Tong, Hanoi, Vietnam

²Center of Advanced Technology for the Environment (CATE), Ehime University,
3-5-7 Tarumi, Matsuyama 790-8566, Japan

³Centre of Analysis, Vietnam Institute of Industrial Chemistry, 2 Pham Ngu Lao, Hanoi, Vietnam

⁴Center of Science Technology and Environment – COSTE, 149 Giang Vo, Hanoi, Vietnam

⁵Thai Binh University and Medicine and Pharmacy, 373 Ly Bon, Thai Binh, Vietnam

⁶Hung Yen University of Technology and Education, Hung Yen, Vietnam

⁷Institute of Natural Product Chemistry, VAST, 18 Hoang Quoc Viet, Hanoi, Vietnam

Received 11 September 2019

Revised 07 December 2019; Accepted 11 December 2019

Abstract: Concentrations of 16 polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) were determined in settled house dust and road dust samples collected from a core urban area of Hanoi. Levels of PAHs ranged from 830 to 3500 (median 2000) ng/g in house dust, and from 1400 to 4700 (median 1700) ng/g in road dust. Concentrations of PAHs in dust samples of this study were within the moderate range as compared with those from other countries in the world. Toxic equivalents to benzo[a]pyrene (BaP-EQs) in our samples ranged from 81 to 850 (median 330) ng BaP-EQ/g with principal contributors as BaP and dibenz[a,h]anthracene, which accounted for 69% to 93% of BaP-EQs. In almost all the samples, proportions of high-molecular-weight PAHs (HMW-PAHs with 4–6 rings) were higher than those of low-molecular-weight PAHs (LMW-PAHs with 2–3 rings), suggesting emission sources from combustion processes rather than direct contamination by petrogenic sources. Traffic activities were estimated as important sources of PAHs in the studied areas, for example, vehicular exhaust and tire debris.

Keywords: PAHs, house dust, road dust, traffic emission, urbanization.

* Corresponding author.

Email address: manhtri0908@gmail.com

<https://doi.org/10.25073/2588-1140/vnunst.4943>



Phân tích hàm lượng và đánh giá mức độ ô nhiễm của các hydrocarbon thơm đa vòng (PAHs) trong mẫu bụi lắng trong nhà và trên mặt đường tại Hà Nội

Hoàng Quốc Anh^{1,2}, Shin Takahashi², Dương Thị Thảo^{1,3}, Nguyễn Hùng Thái^{1,4},
Phạm Thanh Khiết⁵, Nguyễn Thị Quỳnh Hoa⁶, Lê Thị Phương Quỳnh⁷,
Lê Như Đa⁷, Từ Bình Minh¹, Trần Mạnh Trí^{1,*}

¹Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội, 19 Lê Thánh Tông, Hà Nội, Việt Nam

²Trung tâm Công nghệ Tiên tiến cho Môi trường (CATE), Đại học Ehime,
3-5-7 Tarumi, Matsuyama 790-8566, Nhật Bản

³Trung tâm phân tích, Viện Hóa học Công nghiệp Việt Nam, 2 Phạm Ngũ Lão, Hà Nội, Việt Nam

⁴Trung tâm Khoa học Công nghệ và Môi trường – COSTE, 149 Giảng Võ, Hà Nội, Việt Nam

⁵Bộ môn Hóa học, Trường Đại học Y Dược Thái Bình, 373 Lý Bôn, Thái Bình, Việt Nam

⁶Trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật Hưng Yên, Hưng Yên, Việt Nam

⁷Viện Hóa học các Hợp chất thiên nhiên, Viện HLKH-CN, 18 Hoàng Quốc Việt, Hà Nội, Việt Nam

Nhận ngày 11 tháng 9 năm 2019

Chỉnh sửa ngày 07 tháng 12 năm 2019; Chấp nhận đăng ngày 11 tháng 12 năm 2019

Tóm tắt: Hàm lượng của 16 hydrocarbon thơm đa vòng (PAHs) được xác định đồng thời trong mẫu bụi lắng trong nhà và trên mặt đường thu thập tại khu vực đô thị trung tâm của Hà Nội. Nồng độ của PAHs trong mẫu bụi trong nhà và ngoài đường dao động trong khoảng 830–3500 (trung vị 2000) ng/g và 1400–4700 (trung vị 1700) ng/g, tương ứng. Mức độ ô nhiễm PAHs trong mẫu bụi của nghiên cứu này nằm ở mức trung bình so với các quốc gia khác trên thế giới. Độ độc tương đương so với benzo[a]pyrene (BaP-EQs) trong các mẫu bụi dao động trong khoảng 81 đến 850 (trung vị 330) ng BaP-EQ/g với sự đóng góp chủ yếu của BaP và dibenz[a,h]anthracene (69% đến 93%). Trong hầu hết các mẫu, tỉ lệ của PAHs có phân tử khối cao (HMW-PAHs với 4–6 vòng thơm) lớn hơn so với các chất có phân tử khối thấp (LMW-PAHs với 2–3 vòng thơm), phản ánh nguồn phát thải liên quan đến quá trình nhiệt hơn là sự ô nhiễm trực tiếp bởi các sản phẩm dầu mỏ. Hoạt động giao thông là nguồn phát thải chính của PAHs qua sự đốt nhiên liệu trong động cơ xăng và sự mài mòn của lốp xe

Từ khóa: PAHs, house dust, road dust, traffic emission, urbanization.

* Tác giả liên hệ.

Địa chỉ email: manhtri0908@gmail.com

<https://doi.org/10.25073/2588-1140/vnunst.4943>

1. Đặt vấn đề

Hydrocarbon thơm đa vòng (PAHs) là một trong những nhóm chất ô nhiễm hữu cơ điển hình và được quan tâm nghiên cứu nhiều nhất do sự phổ biến của chúng trong môi trường, khả năng tích lũy sinh học và độc tính cao [1,2]. Phần lớn PAHs được hình thành và phát sinh một cách không chủ định trong các quá trình nhiệt độ cao, một phần khác tồn tại trong các sản phẩm dầu mỏ và phát thải vào môi trường thông qua sự cố tràn dầu. Bên cạnh đó, PAHs cũng có thể được hình thành một cách tự nhiên qua hoạt động của sinh vật (ví dụ như perylene) và được tổng hợp để sử dụng làm cơ chất trong quá trình sản xuất thuốc trừ sâu, sắc tố, chất nhuộm, nhựa và dược phẩm [3,4]. Cơ quan Bảo vệ Môi trường Hoa Kỳ (US EPA) đã liệt kê 16 chất PAHs trong danh sách các chất ô nhiễm cần được ưu tiên nghiên cứu. Benzo[a]pyrene, một hợp chất PAHs với 5 vòng thơm, được Tổ chức Quốc tế về Nghiên cứu Ung thư (IARC) phân loại vào nhóm 1 (chất gây ung thư ở người) và nhiều chất PAHs cũng như dẫn xuất khác của chúng được liệt kê vào nhóm 2A và 2B (chất có khả năng gây ung thư). Ngoài ra, phơi nhiễm PAHs còn có thể gây ra những tác động tiêu cực đến nhiều hệ cơ quan và các chức năng miễn dịch, thần kinh, sinh sản và phát triển ở sinh vật thí nghiệm [5].

Tại Việt Nam, các nghiên cứu về sự ô nhiễm của PAHs đã được thực hiện từ những năm cuối 1990. Các PAHs đã được phát hiện trong nhiều thành phần môi trường khác nhau như không khí [6-9], đất và trầm tích [6,10,11], bụi lắng [12-15] và sinh vật [16]. Các nghiên cứu này cũng chỉ ra rằng, sự ô nhiễm PAHs trong môi trường ở nước ta có liên quan chặt chẽ đến quá trình đô thị hóa, công nghiệp hóa và hoạt động giao thông. Những rủi ro về sức khỏe, bao gồm cả rủi ro ung thư liên quan đến phơi nhiễm PAHs từ môi trường (ví dụ như bụi ngoài đường ở khu vực đô thị) đã được đề cập đến trong một số nghiên cứu trước đây [13,14]. Tuy nhiên thông tin về mức độ ô nhiễm và các rủi ro liên quan đến PAHs trong môi trường trong nhà ở nước ta còn rất hạn chế [9,12]. Trong nghiên cứu này, chúng tôi tiến hành phân tích hàm lượng của 16 PAHs trong hai

đối tượng là bụi trên mặt đường và bụi trong nhà với các mẫu đại diện được thu thập tại khu vực đô thị trung tâm ở Hà Nội. Kết quả phân tích được đánh giá để cung cấp những số liệu sơ bộ về mức nồng độ, đặc trưng tích lũy, độ độc và nguồn phát thải tiềm năng của PAHs trong môi trường trong nhà và ngoài đường tại khu vực nghiên cứu.

2. Đối tượng và phương pháp nghiên cứu

2.1. Thu thập mẫu phân tích

Tại Hà Nội, khu vực nghiên cứu được lựa chọn là các trục đường chính trên địa bàn các quận Ba Đình, Đống Đa, Hai Bà Trưng, Hoàn Kiếm, Long Biên, Tây Hồ và Thanh Xuân. Đây là khu vực đô thị trung tâm ở Hà Nội có mật độ dân số và giao thông cũng như tỉ lệ đất xây dựng cao bậc nhất trong cả nước với các hoạt động chủ yếu là thương mại, du lịch, hành chính và công nghiệp nhẹ. Các mẫu bụi được thu thập trong tháng 8 và tháng 9 năm 2016, bao gồm 10 mẫu gộp cho bụi trong nhà và 10 mẫu gộp cho bụi trên mặt đường. Mẫu bụi được lấy bằng phương pháp quét thủ công. Mỗi mẫu bụi trên mặt đường là một mẫu gộp gồm 5 mẫu đơn theo phân bố không gian (đọc theo các trục đường và lấy ở cả 2 chiều di chuyển của các phương tiện giao thông). Mỗi mẫu đơn được lấy trên mặt đường trong phạm vi $0,5 \times 1$ m tính từ lề đường. Mỗi mẫu bụi trong nhà được lấy từ nhiều phòng chức năng khác nhau như phòng khách, phòng ngủ và bếp. Các mẫu sau khi lấy được gói trong phoi nhôm đã tráng rửa bằng các dung môi như hexan và acetone, giữ trong túi PE ziplock và bảo quản ở -20 °C đến khi phân tích. Trước khi phân tích, mẫu được loại bỏ các dị vật như xác thực vật, sỏi đá, kim loại, tóc, rồi tiếp tục được sàng qua rây có kích thước 100 μ m và trộn đều để đồng nhất.

2.2. Phân tích PAHs trong mẫu bụi

Mẫu bụi (khoảng 0.2 g) được thêm chất đồng hành đánh dấu đồng vị deuterium gồm naphthalene-*d*8, acenaphthylene-*d*8, phenanthrene-*d*10, fluoranthene, pyrene-*d*10, benzo[a]pyrene-*d*12 và benzo[g,h,i]perylene-*d*12 (PAH Surrogate Cocktail, Cambridge Isotope Laboratories) và

chiết siêu âm lần lượt với 10 mL aceton và 10 mL hỗn hợp aceton/hexan (1:1, v/v) sử dụng đầu dò phát siêu âm (VCX 130, Sonic & Materials, Inc.). Các phần dịch chiết được gộp lại, cô đặc và chuyển vào dung môi hexan. Dịch chiết được làm sạch trên cột thủy tinh chứa 3 g silica gel (đã được hoạt hóa 3 h ở 130 °C) và natri sunfat khan. Trên cột silica gel, các tạp chất hydrocarbon mạch hở được loại bỏ bằng 20 mL hexan. Sau đó, các PAHs được rửa giải bằng 50 mL hỗn hợp dichloromethane/hexane (1:1, v/v). Dịch rửa giải được cô đặc, thêm chất nội chuẩn chrysene-d12 (Cambridge Isotope Laboratories) và chuyển vào dung môi nonan trước khi phân tích trên sắc ký khí khối phổ (GC/MS). Các hóa chất và dung môi sử dụng trong nghiên cứu này đều ở mức tinh khiết phân tích và được cung cấp bởi Wako Pure Chemical Industries.

Các chất phân tích bao gồm naphthalene (Nap), acenaphthylene (Acy), acenaphthene (Ace), fluorene (Flu), phenanthrene (Phe), anthracene (Ant), fluoranthene (Flt), pyrene (Pyr), benz[a]anthracene (BaA), chrysene (Chr), benzo[b]fluoranthene (BbF), benzo[k]fluoranthene (BkF), benzo[a]pyrene (BaP), dibenz[a,h]anthracene (DA), indeno[1,2,3-cd]pyrene (IP) và benzo[g,h,i]perylene (BP) được tách và định lượng trên hệ thống GCMS-QP2010 Ultra (Shimadzu) với cột tách DB-5ms (30 m × 0,25 mm × 0,25 μm, Agilent Technologies). Khí mang helium có tốc độ dòng 1,15 mL/min. Nhiệt độ của cổng bơm mẫu là 300°C. Chương trình nhiệt độ của lò cột được cài đặt như sau: giữ ở 110°C trong 1 min, tăng đến 170°C (với tốc độ 20°C/min), đến 220°C (4°C/min), đến 270°C (3°C/min) và tăng đến 310°C (20°C/min, giữ 10 min). Khối phổ được vận hành ở chế độ ion hóa va đập electron (EI). Nhiệt độ bộ phận kết nối (interface) và nguồn ion lần lượt là 310 và 230°C. Dữ liệu phổ được quan sát và thu thập bởi chế độ quan sát chọn lọc ion (SIM) đối với ion phân tử của các chất phân tích và chất chuẩn đánh dấu đồng vị.

Độ chính xác của phương pháp phân tích được xác nhận dựa trên kết quả phân tích mẫu thêm chuẩn và mẫu chuẩn (Standard Reference Material® 2585; NIST, USA) với tỉ lệ nồng độ

đo được và nồng độ thêm chuẩn hoặc giá trị chứng nhận nằm trong khoảng 70% đến 110% và RSD < 15% (n = 3). Độ thu hồi của các chất đồng hành dao động trong khoảng 60% đến 120%. Giới hạn phát hiện của các PAHs nằm trong khoảng 0,020 đến 0,40 ng/g.

3. Kết quả nghiên cứu và thảo luận

3.1. Nồng độ PAHs trong mẫu bụi

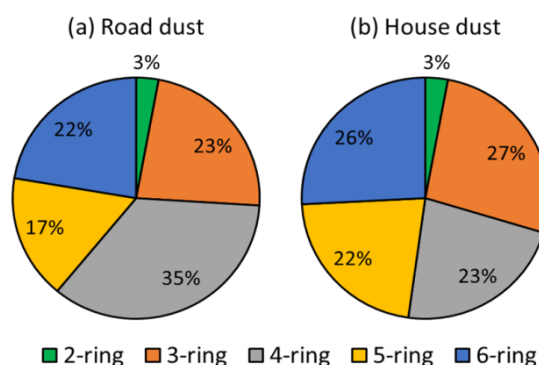
Tất cả 16 PAHs được phát hiện và định lượng trong các mẫu bụi của nghiên cứu này cho thấy sự tồn tại phổ biến của chúng trong môi trường ở nước ta. Nồng độ tổng PAHs (Σ16PAHs) trong mẫu bụi trên mặt đường dao động trong khoảng 1400 đến 4700 ng/g với giá trị trung vị 1700 ng/g. Nồng độ PAHs trong mẫu bụi đường của nghiên cứu này (thời điểm lấy mẫu 2016) không có sự khác biệt đáng kể so với nồng độ đo được trong các mẫu tương tự tại cùng khu vực nghiên cứu thu thập trong các năm trước đó như 2011 (trung bình 1500, khoảng 130–5500 ng/g) [13] và 2012–2013 (trung bình 1900, khoảng 530–4700 ng/g) [14]. Nồng độ PAHs trong mẫu bụi đường tại Hà Nội cao hơn đáng kể so với mẫu bụi đường tại khu vực nông thôn như xã Dương Quang, Mỹ Hào, Hưng Yên (khoảng 76–1400 ng/g) [13,14]. Sự so sánh này phản ánh mức độ phát thải PAHs tại khu vực đô thị cao hơn so với khu vực nông thôn, chủ yếu liên quan đến sự khác biệt lớn về mật độ giao thông. Nồng độ PAHs trong mẫu bụi đường ở khu vực đô thị ở Hà Nội thấp hơn rõ rệt so với bụi đường tại các khu vực đô thị và công nghiệp ở Mỹ (khoảng 8000–310.000 ng/g) [17]; ở Thâm Quyển (trung bình 29.920, khoảng 320–249.950 ng/g) [18] và Thượng Hải, Trung Quốc (trung bình 13.980, khoảng 1020–138.990 ng/g) [19]; hay ở Ulsan, Hàn Quốc (11.840–245.120 ng/g) [20]. Nồng độ PAHs trong mẫu bụi đường của nghiên cứu này tương đương với giá trị đo được trong mẫu bụi đường đô thị tại Nhật Bản [21], Ấn Độ [14], Iran [22], Ghana [23] và Australia [24].

Thông tin về mức độ ô nhiễm PAHs trong mẫu bụi trong nhà ở nước ta còn rất hạn chế.

Trong nghiên cứu này, PAHs đã được phát hiện trong các mẫu bụi trong nhà ở Hà Nội ở mức nồng độ tương đương so với mẫu bụi ngoài đường (trung vị 2000, khoảng 830–3500 ng/g). Thực tế này cho thấy sự đóng góp của các nguồn phát thải “ngoài đường” (ví dụ như khói thải từ phương tiện giao thông và các quá trình thiêu đốt khác) và “trong nhà” (ví dụ như các hoạt động sử dụng nhiệt cho nấu ăn, hút thuốc lá, đốt trầm hương) của PAHs tại khu vực nghiên cứu này là tương đương. Nồng độ PAHs trong mẫu bụi trong nhà ở Hà Nội thấp hơn đáng kể so với một số khu vực ở Trung Quốc với nguồn phát thải đặc thù như khu dân cư gần đường vận chuyển dầu diesel ở Nantou, Đài Loan (trung vị 107.400, khoảng 16.000–580.000 ng/g) [25] hay các nhà dân sử dụng than đá làm nhiên liệu đốt chủ đạo ở Qingyang, tây bắc Trung Quốc (trung vị 21.000, khoảng 8450–121.000 ng/g) [26]. Hàm lượng PAHs trong các mẫu bụi trong nhà của nghiên cứu này phù hợp với khoảng nồng độ đo được trong mẫu bụi tại các nước đang phát triển khác như Saudi Arabia và Kuwait [27], Thổ Nhĩ Kỳ [28], Jordan [29] và Nepal [30]. Như vậy, mức độ ô nhiễm PAHs trong mẫu bụi trong nhà và ngoài đường ở Hà Nội nằm trong khoảng trung bình hoặc thấp so với các quốc gia khác trên thế giới.

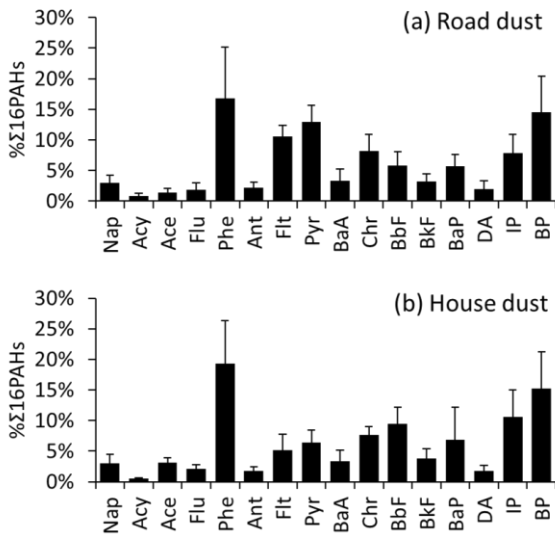
3.2. Đặc trưng tích lũy của PAHs trong mẫu bụi

Các PAHs thường được phân loại thành các nhóm theo số vòng thơm hoặc theo một cách tương đối hơn là PAHs phân tử khối thấp (LMW-PAHs với 2–3 vòng thơm) và PAHs phân tử khối cao (HMW-PAHs với 4 vòng thơm trở lên). Đặc trưng tích lũy của PAHs theo số vòng thơm trong hai loại mẫu bụi ngoài đường và bụi trong nhà của nghiên cứu này được trình bày trong Hình 1. HMW-PAHs (52% đến 84%, trung bình 72%) nhìn chung chiếm tỉ lệ cao hơn so với LMW-PAHs (16% đến 45%, trung bình 28%). Nếu xét sự đóng góp của các nhóm PAHs theo số vòng thơm, đặc trưng của mẫu bụi ngoài đường (4 vòng > 3 vòng ≈ 6 vòng > 5 vòng > 2 vòng) có sự khác biệt nhất định so với mẫu bụi trong nhà (3 vòng ≈ 6 vòng > 4 vòng ≈ 5 vòng > 2 vòng).



Hình 1. Đặc trưng tích lũy của PAHs theo số vòng thơm trong bụi trên mặt đường (a) và bụi trong nhà (b) tại Hà Nội.

Phổ tích lũy chi tiết của 16 PAHs trong mẫu bụi trên mặt đường và bụi trong nhà tại Hà Nội được trình bày trong Hình 2. Theo đó, mẫu bụi ngoài đường bị ô nhiễm bởi các chất PAHs chính theo thứ tự giảm dần như sau: Phe (17% ± 8%) > BP (15% ± 6%) > Pyr (13% ± 3%) > Flt (11% ± 2%) > IP (8% ± 3%) ≈ Chr (8% ± 3%) > BbF (6% ± 2%) ≈ BaP (6% ± 2%). Tỉ lệ của các chất PAHs chính trong mẫu bụi trong nhà giảm theo thứ tự sau: Phe (19% ± 7%) > BP (15% ± 6%) > IP (11% ± 4%) > BbF (9% ± 3%) > Chr (8% ± 1%) > Pyr (6% ± 2%) > Flt (5% ± 3%). Tỉ lệ cao của Phe so với các PAHs khác đã được báo cáo trong các nghiên cứu trước đây đối với mẫu khí lấy tại các điểm gần trục đường giao thông tại Hà Nội [8] cũng như một số quốc gia khác trong khu vực như Thái Lan [31]. Phe được phát hiện là cấu tử quan trọng trong các mẫu bụi của nghiên cứu này góp phần phản ánh sự lắng đọng và cân bằng của nó giữa pha khí và pha hạt. Các HMW-PAHs như IP và BP chiếm tỉ lệ cao trong các mẫu bụi của nghiên cứu này cũng như trong một số nguồn phát thải có liên quan đến hoạt động giao thông như muội của động cơ xăng [31] hay lớp xe [32]. Tỉ lệ của một số PAHs với 4 vòng thơm như Flt và Pyr cao hơn trong mẫu bụi đường, có thể liên quan đến các hoạt động thiêu đốt nhiên liệu như than, gỗ, dầu, hoạt động đốt rác hay phát thải từ phương tiện giao thông dùng nhiên liệu xăng dầu [33]. Các bàn luận chi tiết hơn về mối quan hệ giữa các chất PAHs và nguồn phát thải của chúng sẽ được đề cập trong mục 3.4.



Hình 2. Đặc trưng tích lũy của 16 PAHs trong bụi trên mặt đường (a) và bụi trong nhà (b) tại Hà Nội.

3.3. Độ độc tương đương so với benzo[a]pyrene

Xét trên quan điểm độc học, độc tính của hỗn hợp PAHs (đáng chú ý nhất là khả năng gây ung thư) cần được định lượng thông qua một chất tham chiếu và một hệ thống hệ số độc tương đương (TEF). BaP là chất được sử dụng phổ biến nhất trong các nghiên cứu về độc học của PAHs và thường được coi là chất có TEF = 1. Trong nghiên cứu này, chúng tôi tính toán độ độc tương đương của các PAHs so với BaP (BaP-EQs) sử dụng thang TEF đề xuất bởi Nisbet và LaGoy (1992) [34]. Hàm lượng BaP-EQs trong các mẫu bụi ngoài đường (trung vị 360, khoảng 80–850 ng BaP-EQ/g) cao hơn so với các mẫu bụi trong nhà (300, 86–740 ng BaP-EQ/g), tuy nhiên sự sai khác giữa hai loại mẫu là không có ý nghĩa thống kê. Trong hầu hết các mẫu bụi, hai chất PAHs với 5 vòng thơm là BaP và DA đóng góp 69% đến 93% (trung bình 83%) độ độc tương đương do hệ số độc cao của hai chất này (TEF = 1 và 5 đối với BaP và DA, tương ứng).

Tiêu chuẩn chất lượng đất của Canada đối với độ độc tương đương của các PAHs đưa ra hai mức nồng độ cân chú ý là 600 và 5300 ng BaP-

EQ/g đối với rủi ro ung thư mức 10^{-6} và 10^{-5} , tương ứng. Ngưỡng cho phép của độ độc PAHs chưa được thiết lập cụ thể cho bụi, tuy nhiên đất là một thành phần môi trường chịu ảnh hưởng bởi bụi ngoài đường nên chúng tôi đưa ra các so sánh sơ bộ về độ độc trong mẫu bụi với tiêu chuẩn dành cho mẫu đất. Theo đó, độ độc trong các mẫu bụi của nghiên cứu này thấp hơn đáng kể so với mức 5300 ng BaP-EQ/g (tương đương với tỉ lệ ca mắc ung thư mới là 1/100.000 trong tập hợp dân cư tại khu vực nghiên cứu), có nghĩa là mức độ ô nhiễm PAHs trong các mẫu bụi của chúng tôi ở mức chấp nhận được. Tuy nhiên, cách đánh giá rủi ro dựa trên phân tích hóa học và áp dụng hệ số độc tương đương chỉ phản ánh một phần nhất định của độ độc (ví dụ trong nghiên cứu này là 16 chất PAHs). Trong khi phần đóng góp của các chất không nằm trong danh sách này nhưng có thể có độc tính cao, ví dụ như các chất HMW-PAHs khác, các dẫn xuất methyl, hydroxyl, nitro và các chất dị vòng, cũng như sự tương tác của chúng trong cùng hỗn hợp, lại chưa được xác định một cách rõ ràng. Thực tế này cho thấy việc áp dụng các hướng tiếp cận mới như kết hợp phân tích hóa học với phân tích sinh học dựa trên tương tác của hỗn hợp chất với các dòng tế bào đặc thù là rất cần thiết [13,14,35].

3.4. Đánh giá nguồn phát thải của PAHs

Phổ tích lũy (% đối với $\Sigma 16$ PAHs) được đánh giá bằng phương pháp phân tích tương quan và phân tích thành phần chính (PCA) để tìm ra mối liên hệ giữa các PAHs. Một số nhóm chất có mối tương quan cao đã được đưa ra bao gồm: (Flu, Phe, Ant), (Flt, Pyr), (BaA, Chr), (IP, BP) và (BbF, BkF, BaP, DA). Điểm cơ bản của sự phân nhóm này dựa trên sự tương đồng về số vòng thơm và phân tử khối. Các chất có phân tử khối tương đương nhau sẽ có tính chất hóa lý (như nhiệt độ bay hơi, các hằng số cân bằng pha) gần giống nhau, do đó xu hướng tích lũy và phương thức tồn tại, vận chuyển trong môi trường sẽ có nhiều điểm tương đồng. Hơn nữa, sự phân nhóm này cũng có thể được giải thích bởi nguồn phát thải của chúng. Ví dụ như IP và BP được cho là các chỉ thị của quá trình đốt xăng dầu trong động cơ của phương tiện giao thông và

sự mài mòn của lốp xe trên mặt đường [31,32]. Các chất PAHs còn lại đặc trưng cho nhiều hoạt động thiêu đốt khác nhau như đốt than (Phe, Flu), gỗ (Ant, Phe, Flt, Pyr) hay dầu (Flt, Pyr) [33].

Tỉ lệ của một số chất PAHs điển hình thường được dùng đánh giá một cách chi tiết các nguồn phát thải của chúng. Tỉ lệ Flt/(Flt + Pyr) trong các mẫu bụi có giá trị trung bình 0.46 (khoảng 0.39 đến 0.56) cho thấy nguồn phát thải chính liên quan đến quá trình đốt nhiên liệu hóa thạch (0.40 đến 0.50) hơn là nguồn ô nhiễm dầu mỏ (<0.40) hay đốt sinh khối và than (>0.50) [36,37]. Thêm vào đó, tỉ lệ của BaA/(BaA + Chr) (trung bình 0.29, khoảng 0.16 đến 0.38) và IP/(IP + BP) (trung bình 0.38, khoảng 0.25 đến 0.50) cũng góp phần khẳng định các quá trình thiêu đốt là nguồn phát thải chính của PAHs tại khu vực nghiên cứu [3,36]. Các ước tính này hoàn toàn phù hợp với nhận định về sự đóng góp đến 90% lượng PAHs thải vào môi trường thông qua các hoạt động thiêu đốt [33]. Trong các nghiên cứu tiếp theo, PAHs cần được phân tích đồng thời trong mẫu môi trường (ví dụ như đất, bụi, trầm tích) và các mẫu liên quan đến nguồn phát thải (ví dụ như muội động cơ phương tiện giao thông, các loại tro và chất thải công nghiệp, lốp xe và các sản phẩm dầu mỏ) cùng với sự áp dụng các phương pháp phân tích tổng kê như phân tích ma trận nhân tố (PMF) hoặc cân bằng khối hóa học (CMB) để đánh giá một cách định lượng và toàn diện nguồn phát thải của PAHs trong môi trường.

4. Kết luận

Nghiên cứu này cung cấp những thông tin đánh giá sơ bộ về mức nồng độ, đặc trưng tích lũy, độ độc tương đương so với benzo[a]pyrene và nguồn phát thải của 16 chất PAHs trong môi trường bụi trong nhà và bụi trên mặt đường tại Hà Nội. Nhìn chung, mức độ ô nhiễm PAHs trong mẫu bụi trong nhà và ngoài đường ở Hà Nội nằm trong khoảng trung bình hoặc thấp so với các quốc gia khác trên thế giới. Sự hình thành và phát thải PAHs trong nghiên cứu này liên quan chủ yếu đến các quá trình nhiệt độ cao và

hoạt động giao thông hơn là sự ô nhiễm trực tiếp bởi các sản phẩm dầu mỏ. Độ độc tương đương so với benzo[a]pyrene trong các mẫu bụi không vượt quá ngưỡng chấp nhận được cho mẫu đất ứng với rủi ro ung thư mức 1/100.000 dựa trên kết quả của phân tích hóa học và hệ số độc tương đương đối với 16 chất PAHs, tuy nhiên các đánh giá tổng thể kết hợp với phân tích sinh học để xác định tổng độ độc liên quan đến PAHs và các dẫn xuất của chúng là cần thiết và cần được thực hiện trong tương lai gần.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Đại học Quốc gia Hà Nội trong đề tài mã số QG.19.17 và đề tài mã số CRRP2019-10MY-Le của Quỹ Châu Á - Thái Bình Dương về Nghiên cứu những biến đổi toàn cầu (APN).

Tài liệu tham khảo

- [1] K. Srogi, Monitoring of environmental exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons: a review, *Environ. Chem. Let.* 5 (2007) 169-195. <https://doi.org/10.1007/s10311-007-0095-0>.
- [2] K.H. Kim, S.A. Jahan, E. Kabir, R.J.C. Brown, A review of airborne polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and their human health effects. *Environ. Int.* 60 (2013) 71-80. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2013.07.019>.
- [3] E. Stogiannidis, R. Laane, Source characterization of polycyclic aromatic hydrocarbons by using their molecular indices: an overview of possibilities. *Rev. Environ. Contam. Toxicol.* 234 (2015) 49-133. https://doi.org/10.1007/978-3-319-10638-0_2.
- [4] H.I. Abdel-Shafy, M.S.M. Mansour, A review on polycyclic aromatic hydrocarbons: source, environmental impacts, effect on human health and remediation. *Egypt. J. Pet.* 25 (2016) 107-123. <https://doi.org/10.1016/j.ejpe.2015.03.011>.
- [5] ATSDR, 1995. Toxicological profile for polycyclic aromatic hydrocarbons. <https://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp69.pdf>.
- [6] M.T. Anh, L.M. Triet, J.J. Sauvain, J. Tarradellas, PAH contamination levels in air particles and sediments of Ho Chi Minh City, Vietnam. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 63 (1999) 728-735. <https://doi.org/10.1007/s001289901040>.

- [7] T.T. Hien, L.T. Thanh, T. Kameda, N. Takenaka, H. Bandow, Distribution characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons with particle size in urban aerosols at the roadside in Ho Chi Minh City, Vietnam. *Atmos. Environ.* 41 (2007) 1575–1586. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.10.045>.
- [8] M. Kishida, K. Imamura, N. Takenaka, Y. Maeda, P.H. Viet, H. Bandow, Concentrations of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in particulate matter and the gaseous phase at roadside sites in Hanoi, Vietnam. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 81 (2008) 174–179. <https://doi.org/10.1007/s00128-008-9450-5>.
- [9] H.Q. Anh, K. Tomioka, N.M. Tue, L.H. Tuyen, N.K. Chi, T.B. Minh, P.H. Viet, S. Takahashi, A preliminary investigation of 942 organic micro-pollutants in the atmosphere in waste processing and urban areas, northern Vietnam: levels, potential sources, and risk assessment. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 167 (2019) 354–364. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2018.10.026>.
- [10] C.V. Hung, B.D. Cam, P.T.N Mai, B.Q. Dzung, Heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons in municipal sewage sludge from a river in highly urbanized metropolitan area in Hanoi, Vietnam: levels, accumulation pattern and assessment of land application. *Environ. Geochem. Health* 37 (2015) 133–146. <https://doi.org/10.1007/s10653-014-9635-2>.
- [11] C.T. Pham, N. Tang, A. Toriba, K. Hayakawa, Polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric particles and soil at a traffic site in Hanoi, Vietnam. *Polycycl. Aromat. Comp.* 35 (2015) 355–371. <https://doi.org/10.1080/10406638.2014.903284>.
- [12] H.Q. Anh, K. Tomioka, N.M. Tue, G. Suzuki, T.B. Minh, P.H. Viet, S. Takahashi, Comprehensive analysis of 942 organic micro-pollutants in settled dusts from northern Vietnam: pollution status and implications for human exposure. *J. Mater. Cycles Waste Manag.* 21 (2019) 57–66. <https://doi.org/10.1007/s10163-018-0745-2>.
- [13] L.H. Tuyen, N.M. Tue, G. Suzuki, K. Misaki, P.H. Viet, S. Takahashi, S. Tanabe, Aryl hydrocarbon receptor mediated activities in road dust from a metropolitan area, Hanoi-Vietnam: contribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and human risk assessment. *Sci. Total Environ.* 491-492 (2014) 246–254. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.01.086>.
- [14] L.H. Tuyen, N.M. Tue, S. Takahashi, G. Suzuki, P.H. Viet, A. Subramanian, K.A. Bulbule, P. Parthasarathy, A. Ramanathan, S. Tanabe, Methylated and unsubstituted polycyclic aromatic hydrocarbons in street dust from Vietnam and India: occurrence, distribution and in vitro toxicity evaluation. *Environ. Pollut.* 194 (2014) 272–280. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2014.07.029>.
- [15] H.Q. Anh, T.M. Tran, N.T.T. Thuy, T.B. Minh, S. Takahashi, Screening analysis of organic micro-pollutants in road dusts from some areas in northern Vietnam: a preliminary investigation on contamination status, potential sources, human exposures, and ecological risk. *Chemosphere* 224 (2019) 428–436. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.02.177>.
- [16] H.T.T. Thuy, T.T.C. Loan, T.H. Phuong, The potential accumulation of polycyclic aromatic hydrocarbons in phytoplankton and bivalves in Can Gio coastal wetland, Vietnam. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 25 (2018) 17240–17249. <https://doi.org/10.1007/s11356-018-2249-y>.
- [17] P.C. Van Metre, B.J. Mahler, J.T. Wilson, PAHs underfoot: contaminated dust from coal-tar sealcoated pavement is widespread in the United States. *Environ. Sci. Technol.* 43 (2009) 20–25. <https://doi.org/10.1021/es802119h>.
- [18] L. Liu, A. Liu, Y. Li, L. Zhang, G. Zhang, Y. Guan, Polycyclic aromatic hydrocarbons associated with road deposited solid and their ecological risk: Implications for road stormwater reuse. *Sci. Total Environ.* 563–564 (2016) 190–198. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.04.114>.
- [19] X. Zheng, Y. Yang, M. Liu, Y. Yu, J.L. Zhou, D. Li, PAH determination based on a rapid and novel gas purge-microsyringe extraction (GP-MSE) technique in road dust of Shanghai, China: Characterization, source apportionment, and health risk assessment. *Sci. Total Environ.* 557–558 (2016) 688–696. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.03.124>.
- [20] T.T. Dong, B.K. Lee, Characteristics, toxicity, and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in road dust of Ulsan, Korea. *Chemosphere* 74 (2009) 1245–1253. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2008.11.035>.
- [21] R. Khanal, H. Furumai, F. Nakajima, C. Yoshimura, Carcinogenic profile, toxicity and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons accumulated from urban road dust in Tokyo, Japan. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 165 (2018) 440–449. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2018.08.095>.

- [22] N. Soltani, B. Keshavarzi, F. Moore, T. Tavakol, A.R. Lahijanzadeh, N. Jaafarzadeh, M. Kermani, Ecological and human health hazards of heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in road dust of Isfahan metropolis, Iran. *Sci. Total Environ.* 505 (2015) 712–723. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.09.097>.
- [23] B.A.M. Bandowe, M.A. Nkansah, Occurrence, distribution and health risk from polycyclic aromatic compounds (PAHs, oxygenated-PAHs and azaarenes) in street dust from a major West African Metropolis. *Sci. Total Environ.* 553 (2016) 439–449. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.02.142>.
- [24] T.C. Nguyen, P. Loganathan, T.V. Nguyen, S. Vigneswaran, J. Kandasamy, D. Slee, G. Stevenson, R. Naidu, Polycyclic aromatic hydrocarbons in road-deposited sediments, water sediments, and soils in Sydney, Australia: Comparisons of concentration distribution, sources and potential toxicity. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 104 (2014) 339–348. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2014.03.010>.
- [25] C. Y. Kuo, H.C. Chen, F.C. Cheng, L.R. Huang, P.S. Chien, J.Y. Wang, Polycyclic aromatic hydrocarbons in household dust near diesel transport routes. *Environ. Geochem. Health* 34 (2012) 77–87. <https://doi.org/10.1007/s10653-011-9392-4>.
- [26] W. Wang, F.Y. Wu, J.S. Zheng, M.H. Wong, Risk assessments of PAHs and Hg exposure via settled house dust and street dust, linking with their correlations in human hair. *J. Hazard. Mater.* 263 (2013) 627–637. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2013.10.023>.
- [27] N. Ali, I.M.I. Ismail, M. Khoder, M. Shamy, M. Alghamdi, M. Costa, L.N. Ali, W. Wang, S.A.M.A.S. Eqani, Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in indoor dust samples from cities of Jeddah and Kuwait: levels, sources and non-dietary human exposure. *Sci. Total Environ.* 573 (2016) 1607–1614. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.09.134>.
- [28] M.Y. Civan, U.M. Kara, Risk assessment of PBDEs and PAHs in house dust in Kocaeli, Turkey: levels and sources. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 23 (2016) 23369–23384. <https://doi.org/10.1007/s11356-016-7512-5>.
- [29] A. Maragkidou, S. Arar, A. Al-Hunaiti, Y. Ma, S. Harrad, O. Jaghbeir, D. Faouri, K. Hämeri, T. Hussein, Occupational health risk assessment and exposure to floor dust PAHs inside an educational building. *Sci. Total Environ.* 579 (2017) 1050–1056. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.11.055>.
- [30] I.C. Yadav, N.L. Devi, J. Li, G. Zhang, Polycyclic aromatic hydrocarbons in house dust and surface soil in major urban regions of Nepal: implication on source apportionment and toxicological effect. *Sci. Total Environ.* 616–617 (2018) 223–235. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.10.313>.
- [31] R. Boonyatumanond, M. Murakami, G. Wattayakorn, A. Togo, H. Takada, Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in street dust in a tropical Asian mega-city, Bangkok, Thailand. *Sci. Total Environ.* 384 (2007) 420–432. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.06.046>.
- [32] I. Sadiktsis, C. Bergvall, C. Johansson, R. Westerholm, Automobile tire—a potential source of highly carcinogenic dibenzopyrenes to the environment. *Environ. Sci. Technol.* 46 (2012) 3326–3334. <https://doi.org/10.1021/es204257d>.
- [33] M. Howsam, K.C. Jones, Sources of PAHs in the environment. In: Neilson, A.H. (Ed.), *The Handbook of Environmental Chemistry Vol. 3 Part I PAHs and Related Compounds*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (1998) 137–174. https://doi.org/10.1007/978-3-540-49697-7_4.
- [34] I.C.T. Nisbet, P.K. Lagoy, Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Regul. Toxicol. Pharmacol.* 16 (1992) 290–300. [https://doi.org/10.1016/0273-2300\(92\)90009-X](https://doi.org/10.1016/0273-2300(92)90009-X).
- [35] B. Pieterse, E. Felzel, R. Winter, B. van der Burg, A. Brouwer, PAH-CALUX, an optimized bioassay for AhR-mediated hazard identification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) as individual compounds and in complex mixtures. *Environ. Sci. Technol.* 47 (2013) 11651–11659. <https://doi.org/10.1021/es403810w>.
- [36] M.B. Yunker, R.W. Macdonald, R. Vingarzan, R. H. Mitchell, D. Goyette, S. Sylvestre, PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition. *Org. Geochem.* 33 (2002) 489–515. [https://doi.org/10.1016/S0146-6380\(02\)00002-5](https://doi.org/10.1016/S0146-6380(02)00002-5).
- [37] M. Saha, A. Togo, K. Mizukawa, M. Murakami, H. Takada, M.P. Zakaria, N.H. Chiem, B.C. Tuyen, M. Prudente, R. Boonyatumanond, S.K. Sarkar, B. Bhattacharya, P. Mishra, T.S. Tana, Sources of sedimentary PAHs in tropical Asian waters: differentiation between pyrogenic and petrogenic sources by alkyl homolog abundance. *Mar. Pollut. Bull.* 58 (2009) 189–200. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2008.04.049>.