

## 11. IMPATTO DI SPECIFICHE SORGENTI E SOURCE APPORTIONMENT

## 11.1 L'IMPATTO DELLE EMISSIONI DOVUTE ALLA COMBUSTIONE DI BIOMASSA SULLA CONCENTRAZIONE DI PM IN VALLE D'AOSTA

Tombolato I.<sup>2</sup>, Diémoz H.<sup>1</sup>, Zublena M.<sup>1</sup>, Tarricone C.<sup>1</sup>, Magri T.<sup>1</sup>, Pession G.<sup>1</sup>, Ferrero L.<sup>3</sup>

<sup>1</sup>ARPA VALLE D'AOSTA,

<sup>2</sup>COLLABORATORE ARPA VALLE D'AOSTA

<sup>3</sup>UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI MILANO-BICOCCA, DISAT, CENTRO GEMMA

### RIASSUNTO

In questo lavoro vengono presentati i risultati di una campagna di misura effettuata in Valle d'Aosta in cui sono quantificati, per la prima volta in questa regione, gli impatti della combustione di biomassa sulla concentrazione di particolato atmosferico. Le misure sono state condotte in due siti (rurale e urbano) attrezzati per la misura di PM<sub>10</sub> (determinazioni gravimetriche e automatiche mediante assorbimento beta) e per la misura di Black Carbon (BC) tramite etalometro. Inoltre, sono state determinate le concentrazioni di idrocarburi policiclici aromatici (IPA), levoglucosano, anioni e cationi solubili inorganici, carbonio elementare (EC) e organico (OC) su PM<sub>10</sub>. Il set-up strumentale ha consentito di determinare la quota di PM dovuta alla combustione di biomassa attraverso due approcci indipendenti: il primo metodo, "ottico", utilizza i dati di BC da etalometro a partire da un modello tarato sulla base delle determinazioni di OC e di levoglucosano, mentre il secondo impiega la speciazione chimica completa del PM, analizzata con la tecnica statistica Positive Matrix Factorization (PMF). I due metodi danno risultati confrontabili ed evidenziano notevoli differenze tra il sito rurale e il sito urbano, essendo quest'ultimo maggiormente influenzato dalle emissioni di combustibili fossili. Inoltre, il primo metodo, una volta validato rispetto al secondo, consente di dedurre in modo automatizzato la quota di PM da combustione di biomassa dalle sole misure in continuo e ad alta frequenza di BC e di PM<sub>10</sub>, senza ricorrere alle numerose e onerose determinazioni analitiche su PM<sub>10</sub>. La validazione del metodo ha valenza sito-specifica e va ripetuta solo nel caso di variazioni sostanziali del contesto emissivo. Questo studio, di cui alcune indagini sono state sviluppate nell'ambito di due progetti a finanziamento europeo, BBCLEAN-Alpine

Space e PREPAIR-LIFE, può aiutare nella valutazione dell'impatto di specifiche sorgenti emissive caratteristiche dell'arco alpino e nello sviluppo di piani di mitigazione a scala locale, regionale e globale tanto per la qualità dell'aria quanto per gli effetti sul clima.

**Parole chiave:** biomass burning, source apportionment, PM, Black Carbon

### ABSTRACT

This study presents the results of a measurement campaign performed in the Aosta Valley in order to quantify, for the first time in this region, the impact of biomass burning on particle matter (PM) concentrations. Measures were carried out at two sites (rural and suburban) equipped for the measurement of PM<sub>10</sub> (gravimetric and automatic beta absorption determinations) and for the measurement of Black Carbon (BC) using an aethalometer. In addition, concentrations of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH), levoglucosan, inorganic soluble anions and cations, elementary (EC) and organic carbon (OC) on PM<sub>10</sub> were also determined. The instrumental set-up allowed to estimate the amount of PM due to biomass burning, using two independent approaches: the first method, 'optical' one, uses BC data from the aethalometer, based on a model specifically calibrated on OC and levoglucosan analyses, while the second one takes into consideration the complete chemical PM speciation data through the statistical technique Positive Matrix Factorization (PMF). The two methods provide comparable results and show noticeable differences in the biomass burning contributions between the rural site and the urban area, this latter being affected by local traffic and urban emissions. Furthermore, the first

method, once validated with respect to the second one, allows to automatically infer the amount of biomass burning PM from the continuous and high-frequency measurements of BC and PM<sub>10</sub>, without relying on the several and time-consuming analytical determinations on PM<sub>10</sub>. The validation of the method has a site-specific value and should be reassessed only when significant emissive changes occur.

This study, of which some investigations have been carried out as part of two European-funded projects, BBCLEAN-Alpine Space and PREPAIR-LIFE, can be helpful in identifying the impact of some specific Alpine emission sources and in developing local, regional and global mitigation plans for both air quality and climate effects.

**Keywords:** biomass burning, source apportionment, PM, Black Carbon

## Introduzione

La combustione della biomassa è ampiamente utilizzata nella regione alpina per il riscaldamento domestico, fino a raggiungere il 90% della domanda di calore nei piccoli comuni montani. Il suo sempre più frequente uso, in sostituzione dei combustibili fossili (GPL, metano, gasolio), deriva sia dalla sua economicità, sia dall'essere considerata una fonte di energia rinnovabile ed, in quanto tale, incentivata dalle politiche nazionali e regionali di lotta ai cambiamenti climatici. Per quanto riguarda la Valle d'Aosta, i risultati dell'indagine condotta nel 2011 nell'ambito del progetto RENERFOR hanno mostrato come nei comuni valdostani situati tra 600 e 900 m di altitudine, il 53% degli utenti disponeva di un apparecchio od impianto secondario (ausiliario) per il riscaldamento domestico alimentato a biomassa legnosa, con una preponderanza di stufe a legna (per l'80% a ciocchi di legna) e di caldaie a pellet.

Come però molti studi hanno evidenziato, la combustione di biomassa, oltre ad essere spesso inefficiente dal punto di vista energetico, sfortunatamente comporta aspetti critici legati al suo impatto negativo non solo sulla qualità dell'aria, ma anche, attraverso effetti

radiativi diretti, sul clima (Putaud et al, 2014). Dal punto di vista della qualità dell'aria essa comporta infatti, soprattutto in condizioni di combustione incompleta, emissioni di particolato atmosferico (PM), idrocarburi policiclici aromatici (IPA) e composti organici volatili (VOC). L'inquinamento diventa più intenso nelle aree alpine poiché le condizioni ambientali, l'orografia e il freddo intenso degli inverni favoriscono il ristagno a livello del suolo degli inquinanti emessi.

La combustione di biomassa per il riscaldamento residenziale ha anche un impatto sul clima attraverso le interazioni radiazione-aerosol. In effetti, la combustione della biomassa è una sorgente di "dark aerosols" ossia di Black carbon (BC) e Brown carbon (BrC) in grado di assorbire luce con lunghezza d'onda caratteristica nello spettro dell'ultravioletto e visibile (380÷760 nm); tali particelle e composti, in questo modo, trasformano l'energia elettromagnetica della radiazione solare in calore, influenzando così il bilancio radiativo in atmosfera, e, una volta depositatisi in superficie, sono in grado di ridurre la riflessione del suolo (ad esempio, in presenza di neve e ghiaccio).

Particolare importanza riveste quindi l'approfondimento della conoscenza sulla tematica del particolato atmosferico, al fine di arricchire la base informativa utile per definire politiche e strategie di riduzione di tali emissioni. In quest'ottica, ARPA Valle d'Aosta partecipa a due progetti UE che affrontano in modo specifico questa tematica:

- il progetto PREPAIR, che vede coinvolte tutte le regioni del Bacino Padano, per individuare le azioni più vantaggiose per mitigare le emissioni in un'area dove le concentrazioni di particolato sono particolarmente critiche e su cui sono state avviate specifiche e approfondite campagne di misura diffuse in tutto il dominio di progetto. In tale contesto si inserisce proprio l'attività di cui al presente report;

- un secondo progetto, BBCLEAN – ALPINE SPACE, riunisce diverse regioni dell'area alpina per studiare i vari aspetti ed impatti della combustione della biomassa, con particolare riferimento alla valutazione del contributo di

questa sorgente sul materiale particolato, al fine di sviluppare strumenti per ridurre al minimo gli impatti ambientali.

Scopo di questo studio specifico è quello di quantificare per la prima volta l'impatto delle emissioni dalla combustione di biomassa sulle concentrazioni di PM in Valle d'Aosta, una regione posta nel cuore delle Alpi ma non lontano dalla Pianura Padana, con un'orografia complessa e un'altitudine media superiore a 2000 m slm, caratteristiche che innescano anche complessi fenomeni meteorologici.

## Dati e Metodi

### *Siti di misura*

I dati sono stati raccolti in due diversi ambienti: urbano (nell'area di fondovalle - Plaine di Aosta) e rurale (nel comune di Saint-Marcel). Le campagne di monitoraggio e di studio si sono svolte in tempi differenti, pur coprendo

entrambe una intera annualità e permettendo così di apprezzare le variazioni stagionali dei diversi inquinanti e delle diverse sorgenti studiate.

La Plaine di Aosta è l'area del fondo della valle centrale che si sviluppa attorno al capoluogo della regione, Aosta, una città di circa 34.000 abitanti le cui principali sorgenti di inquinamento sono il riscaldamento domestico, il traffico e le emissioni industriali (acciaieria). Per il presente studio sono stati utilizzati sia i dati raccolti nella stazione di fondo urbano di Aosta-Piazza Plouves (facente parte della Rete regionale di Monitoraggio della Qualità dell'Aria gestita da ARPA Valle d'Aosta) sia da strumentazione appositamente posizionata presso la sede di ARPA Valle d'Aosta, in contesto suburbano in prossimità del sito di fondo urbano (Figura 11.1.1).



Figura 11.1.1. Siti di misura nella Plaine di Aosta – nelle foto a sin. vista della Plaine di Aosta; in centro la stazione di fondo urbano della Rete regionale di Monitoraggio della qualità dell'aria RMQA e a destra il sito in zona suburbana.

Il sito rurale di Saint-Marcel, un comune di poco meno di 1.400 abitanti, (Figura 11.1.2), è stato scelto perché è rappresentativo dei comuni della Valle centrale dove, sulla base dell'inventario regionale delle emissioni e dei dati dell'indagine conoscitiva RENERFOR sopracitata, il numero di apparecchi a biomassa legnosa in ambito domestico è rilevante, potendosi quindi aspettare che il contributo della combustione di biomassa al particolato atmosferico sia qui dominante.

Nell'ambito delle attività del progetto BBCLEAN, è stato svolto un accurato censimento (2019) dei combustibili utilizzati per il riscaldamento domestico che ha mostrato come il 94% della domanda di energia è prodotta da biomassa e derivati, mentre il 4,4% da gasolio e l'1,6% da GPL.



Figura 11.1.2. Sito di misura rurale di Saint-Marcel: visuale dell'abitato e dettaglio del sito di misura allestito per la campagna di monitoraggio

### Misure

Nei siti di indagine sono state effettuate misure di concentrazione di particolato atmosferico e determinazioni analitiche di composti del particolato utili a ricostruire la componente da biomassa. Inoltre, si è sperimentato l'utilizzo di misure da etalometro. In tabella 1 è riportato il dettaglio del setup operativo e dei parametri monitorati nei siti di indagine.

L'indagine presso il sito urbano della Plaine di Aosta è stata svolta nell'ambito di una collaborazione tra ARPA Valle d'Aosta e l'Università di Milano-Bicocca.

L'etalometro è uno strumento che consente di misurare in continuo su apposito nastro filtrante il coefficiente di assorbimento dell'aerosol a 7 lunghezze d'onda, dall'UV all'IR (370 -950 nm).

Da queste misure ottiche di assorbimento, è possibile misurare la concentrazione di BC equivalente ed il suo source apportionment tra contributo dei combustibili fossili (traffico e riscaldamento domestico), contrassegnato nel seguito come BCff, e contributo della combustione di biomassa (riscaldamento domestico), contrassegnata nel seguito come BCbb. *Metodi per la stima del contributo della combustione della biomassa legnosa alle emissioni di PM<sub>10</sub>*

Nell'ambito di questo studio, anche sulla base degli obiettivi del progetto BB-CLEAN, si è deciso di testare due metodi indipendenti, descritti in modo approfondito

nel seguito, per stimare le sorgenti del particolato e, nello specifico, il contributo della combustione del legno alla formazione del PM (in seguito chiamato PMbb).

### Metodo 1

Il primo approccio, di tipo "ottico", consiste nella stima del PMbb a partire dalle misurazioni di BC con l'etalometro. Il principale vantaggio dell'uso di questo strumento è rappresentato dalla possibilità di automatizzare l'intero processo di misura e di rilevare le concentrazioni di PMbb a una elevata frequenza, ad esempio oraria. Il metodo necessita, tuttavia, di una fase preliminare di "taratura", per ogni sito, basata su determinazioni analitiche, come descritto nel seguito:

1. si ottiene la relazione tra la concentrazione di OC attribuibile alla combustione di biomassa (OCbb) e la concentrazione di levoglucosano. Quest'ultimo viene impiegato universalmente in letteratura come tracciante delle emissioni da combustione di biomassa, in quanto prodotto della pirolisi della cellulosa e considerato relativamente stabile in atmosfera. Poiché l'OC può essere prodotto da diverse sorgenti, al fine di isolare il contributo dovuto alla combustione di biomassa (OCbb), si prende in considerazione il minimo del rapporto delle concentrazioni di OC e di levoglucosano, entrambe ottenute dalle analisi giornaliere su filtro. Questo primo passo permette di utilizzare il levoglucosano come proxy dell'OCbb. La relazione è sito-specifica, in quanto

dipendente dal tipo di biomassa bruciata e dall'età del particolato;

2. poiché la variabile di interesse nel presente studio non è la concentrazione di OC<sub>bb</sub>, ma la concentrazione di tutto il particolato emesso, nel suo complesso, dalla combustione di biomassa, occorre convertire l'OC<sub>bb</sub> in PM<sub>bb</sub>. Tale conversione, difficile da determinare

sperimentalmente, viene effettuata sulla base di fattori ottenuti da precedenti studi e riportati nella letteratura scientifica (Turpin et al., 2001; Puxbaum et al., 2004; Aiken et al., 2008; Puxbaum et al., 2007; Favez et al., 2019).

Tabella 11.1.1 – Parametri misurati nei due siti di indagine, con l'indicazione della strumentazione e /o dei metodi utilizzati per la loro determinazione

Sito della <i>Plaine di Aosta</i>		Sito rurale di <i>Saint-Marcel</i>	
Parametro	Analizzatore /strumento	Parametro	Analizzatore /strumento
PM <sub>10</sub> (sito fondo urbano)	- OPSIS SM200 - Campionatore MCZ a basso volume (2,3 m <sup>3</sup> /h) campionamento sulle 24 ore	PM <sub>10</sub>	Campionatore MCZ a basso volume (2,3 m <sup>3</sup> /h) campionamento sulle 24 ore
PM <sub>2,5</sub> (sito suburbano)	Campionatore MCZ a basso volume (2,3 m <sup>3</sup> /h) campionamento sulle 12 ore		
BC BC <sub>bb</sub> (da combustione di biomassa) BC <sub>ff</sub> (da combustibili fossili)	Etalometro AE31 - Magee Scientific (sito suburbano)	BC BC <sub>bb</sub> (da combustione di biomassa) BC <sub>ff</sub> (da combustibili fossili)	Etalometro AE33 - Magee Scientific
Speciazione chimica del particolato			
Parametro	Metodi e strumentazione	Parametro	Metodi e strumentazione
OC/EC	Metodo di analisi UNI EN 16909:2017 Analizzatore Sunset Laboratory inc.	OC/EC	Metodo di analisi UNI EN 16909:2017 Analizzatore Sunset Laboratory inc.
IPA	Estrazione in acetone nitrile + HPLC fluorimetro Sistema HPLC SHIMADZU Nexera-i Mod LC-2040C Plus e Fluorimetro RF-20AxS	IPA	Estrazione in acetone nitrile + HPLC fluorimetro Sistema HPLC SHIMADZU Nexera-i Mod LC-2040C Plus e Fluorimetro RF-20AxS
Levoglucosano	GC/FID Trace1300 Thermo Scientific	Levoglucosano	GC/FID Trace1300 Thermo Scientific
Ioni (Anioni /Cationi)	Cromatografia ionica con Moduli AQUION/ICS-1000	Ioni (Anioni /Cationi)	Cromatografia ionica con Moduli AQUION/ICS-1000

Questo secondo passaggio, unito al primo, permette, così, di stimare il PM<sub>bb</sub> a partire dal levoglucosano. La formula che otteniamo nel complesso risulta la seguente:

$$PM_{bb} = f \times [\text{levoglucosano}]$$

3. al fine di bypassare le analisi chimiche, si determina a questo punto la relazione tra la concentrazione di

levoglucosano e le proprietà ottiche del particolato osservate con l'etalometro nella banda ultravioletta (BrC, a una lunghezza d'onda di 370 nm). Tale determinazione, detta source apportionment ottico, è descritta in modo approfondito, tra gli altri, da Sandradewi ad al. (2008) e Massabò et al. (2015). Insieme ai passi precedenti, questo terzo punto consente di stimare la concentrazione di PM<sub>bb</sub> utilizzando unicamente misure di tipo ottico. Ciò permette, inoltre, di

ottenere informazioni sulla combustione di biomassa a frequenza oraria (anziché giornaliera, come nel caso delle determinazioni analitiche) o addirittura superiore. Pertanto, la formula per la determinazione di PM<sub>bb</sub> può essere riscritta nel seguente modo:

$$PM_{bb} = f \times m \times [babsBrC, 370nm]$$

dove  $m$  è il coefficiente di proporzionalità tra levoglucosano e il coefficiente di assorbimento del Brown Carbon a una lunghezza d'onda di 370nm.

#### Metodo 2

Il secondo approccio si basa sulla speciazione chimica completa del particolato sui campioni raccolti nei siti di indagine e sul metodo statistico della Positive Matrix Factorization (PMF). Quest'ultima tecnica, implementata

nel software EPA 5.0, permette di individuare gruppi di composti chimici che “variano insieme” e che possono dunque essere attribuiti alla stessa sorgente emissiva (Viana et al., 2008).

## Risultati

### Metodo 1

La Figura 11.1.3 rappresenta la relazione, ottenuta sperimentalmente nei due siti di misura, tra levoglucosano (da analisi su filtri) e proprietà ottiche del particolato da etalometro (BrC), come descritto al passo 3 del paragrafo precedente. Le statistiche di correlazione, con  $R^2 > 0,8$ , sono ritenute molto buone. Il coefficiente della relazione lineare tra le due variabili (riportato in Figura) è in linea con le stime ottenute in altri studi, in particolare sul territorio francese (Favez et al., 2019).

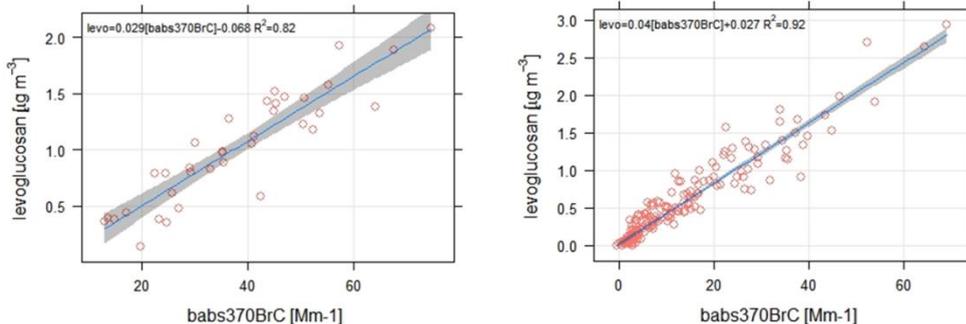


Figura 11.1.3. Correlazione tra le medie giornaliere del coefficiente di assorbimento del BrC ottenuto dalle misurazioni UV dell'etalometro e le concentrazioni medie giornaliere di levoglucosano per il sito urbano di Aosta (a sinistra) e per il sito rurale di Saint-Marcel (a destra)

Tali risultati, ragionevolmente, consentono pertanto di considerare il BrC un buon proxy del levoglucosano, e quindi della sorgente “combustione della biomassa”. Pertanto, sulla base delle relazioni empiriche precedentemente riportate, a partire dai dati di assorbimento del BrC, è stato stimato il contributo della combustione di biomassa al PM in entrambi i siti (figure

11.1.4 e 11.1.5). Come previsto, tale contributo risulta maggiore durante la stagione invernale, raggiungendo valori fino a  $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , rispettivamente nei siti rurali e urbani. Il contributo del biomass burning risulta invece trascurabile in estate. Le variazioni giornaliere possono essere ricondotte sia alle emissioni locali che alle condizioni meteorologiche.

## PMbb from babs370BrC - rural site

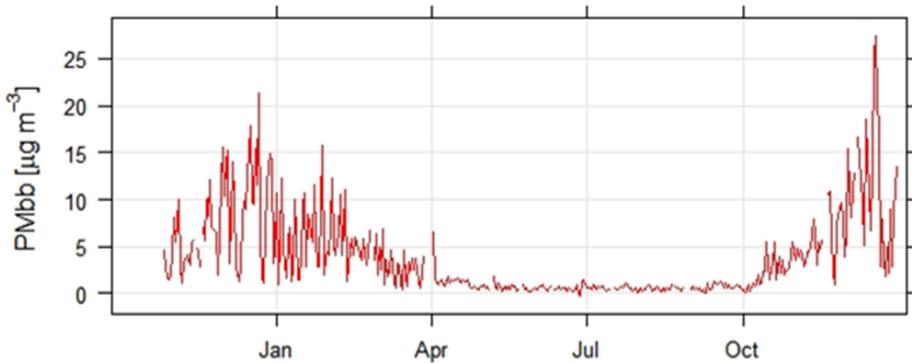


Figura 11.1.4. Concentrazioni medie giornaliere di PMbb ricavate empiricamente dal coefficiente di assorbimento del BrC sulla base dei dati di assorbimento nell'UV nel sito rurale di Saint-Marcel

## PMbb from babs370BrC - urban site

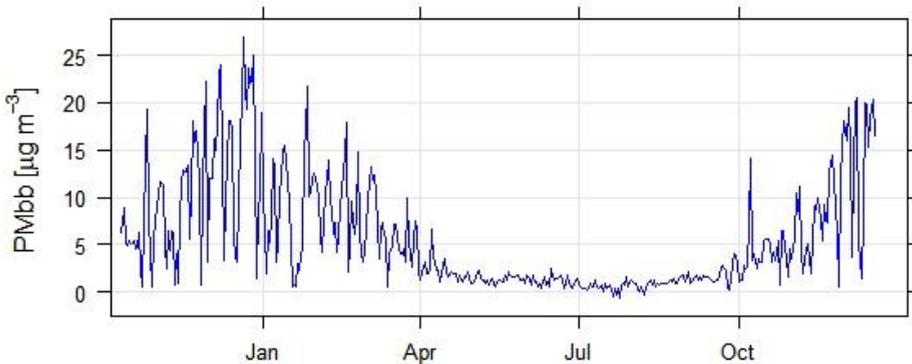


Figura 11.1.5. Concentrazioni medie giornaliere di PMbb ricavate empiricamente dal coefficiente di assorbimento del BrC sulla base dei dati di assorbimento nell'UV nel sito urbano di Aosta

Se si considerano i dati di contributo percentuale del PMbb alle concentrazioni di particolato PM<sub>10</sub> misurato, raggruppati per stagioni (Figura 11.1.6), si osserva come i valori più elevati sono misurati nei mesi più freddi. Ciò si traduce in contributi relativi durante l'inverno della

combustione di biomassa del 40% per il sito urbano, mentre si ottiene per il sito rurale un contributo medio invernale del 50%, raggiungendo qui picchi di oltre l'80%.

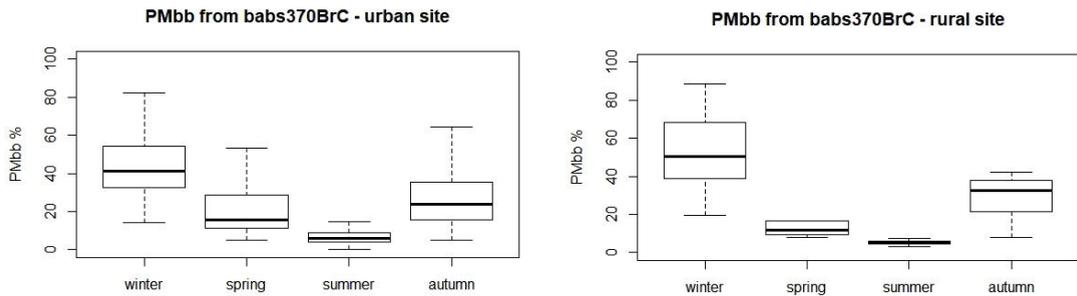


Figura 11.1.6. Contributo percentuale medio giornaliero del PMbb ricavato nei due siti di misura. Nei grafici sono riportati i dati di PMbb% ricavati dalle misure di assorbimento del BrC per i due siti, raggruppati per stagioni.

Si riportano ora gli andamenti dei cicli giornalieri, suddivisi per stagione (Figura 11.1.7), delle concentrazioni di BC e delle sue due componenti, fossil fuel e biomass burning (da source apportionment ottico).

Si noti che l'identificazione del ciclo giornaliero è reso possibile dall'utilizzo di misure ottiche ad alta frequenza, nel nostro caso mediate sull'ora.

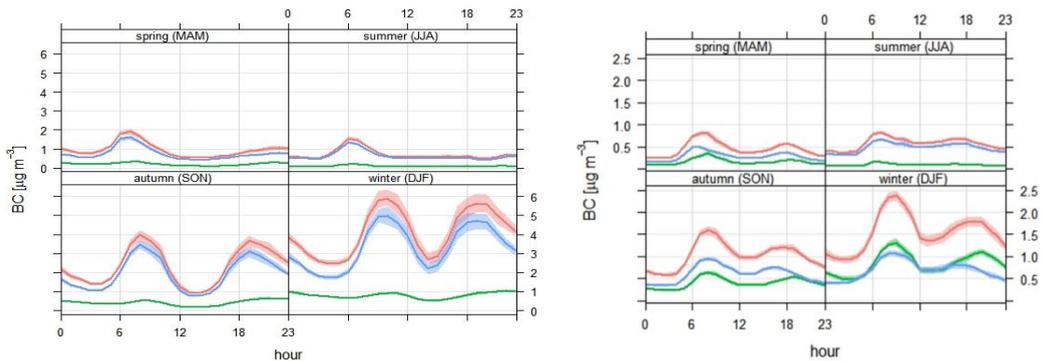


Figura 11.1.7. Andamento giornaliero delle concentrazioni di BC totale e delle sue frazioni BCff e BCbb, levoglucosano per il sito urbano di Aosta (a sinistra) e per il sito rurale di Saint-Marcel (a destra). In blu sono riportate le concentrazioni di BCff (BC da fonti fossili), in verde le concentrazioni di BCbb (BC da combustione di biomassa), in rosso le concentrazioni di BC totale.

I due picchi giornalieri, seppur con scale di concentrazione diverse nei due siti, sono influenzati sia dalle emissioni del traffico durante le ore di punta o di riscaldamento, sia dalle variazioni dell'altezza dello strato di rimescolamento dell'atmosfera. Tuttavia,

possiamo apprezzare il diverso comportamento dei cicli serali delle due frazioni, specialmente nel sito rurale. Infatti, il riscaldamento domestico, durante la notte, dura più ore rispetto al traffico. Ciò è evidente anche dall'andamento dei cicli giornalieri medi per stagione

(Figura 11.1.8) della frazione del particolato dovuto alla combustione di biomassa, in gran parte attribuibile, soprattutto in inverno, all'utilizzo dei combustibili legnosi per il riscaldamento domestico.

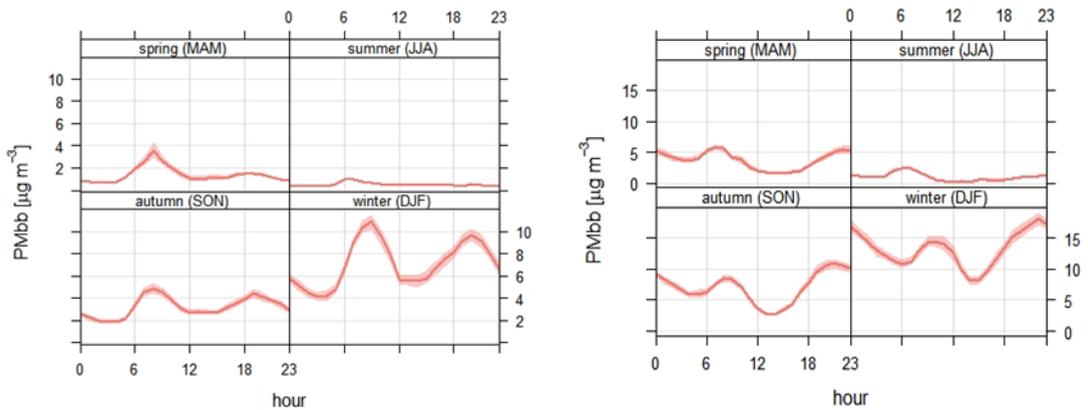


Figura 11.1.8. Andamento giornaliero delle concentrazioni di PMbb legate alla combustione di levoglucosano per il sito urbano di Aosta (a sinistra) e per il sito rurale di Saint-Marcel (a destra)

## Metodo 2

Come detto in precedenza, si è voluto validare tali risultati con altre metodiche di source apportionment; combinando i dati di speciazioni chimica del particolato PM<sub>10</sub> a disposizione nei due siti, si è potuto isolare la componente legata alla combustione di biomassa.

La PMF nel sito rurale ha individuato 6 modi di variazione, già descritti da Diémoz et al. (2019): una componente ricca in nitrati, una componente relativa al traffico urbano, una ai solfati, una al risollevarimento di polveri minerali, una alla combustione di biomassa e,

infine, una alla salatura delle strade in inverno. Modi simili sono stati riscontrati anche nel sito urbano, dove sono state incluse le analisi per i singoli idrocarburi policiclici aromatici determinati sui campioni di particolato atmosferico.

Si riportano in Figura 11.1.9 i grafici delle correlazioni tra le concentrazioni di PMbb ottenuto con i due metodi utilizzati in questo studio. La figura conferma la sostanziale equivalenza delle tecniche.

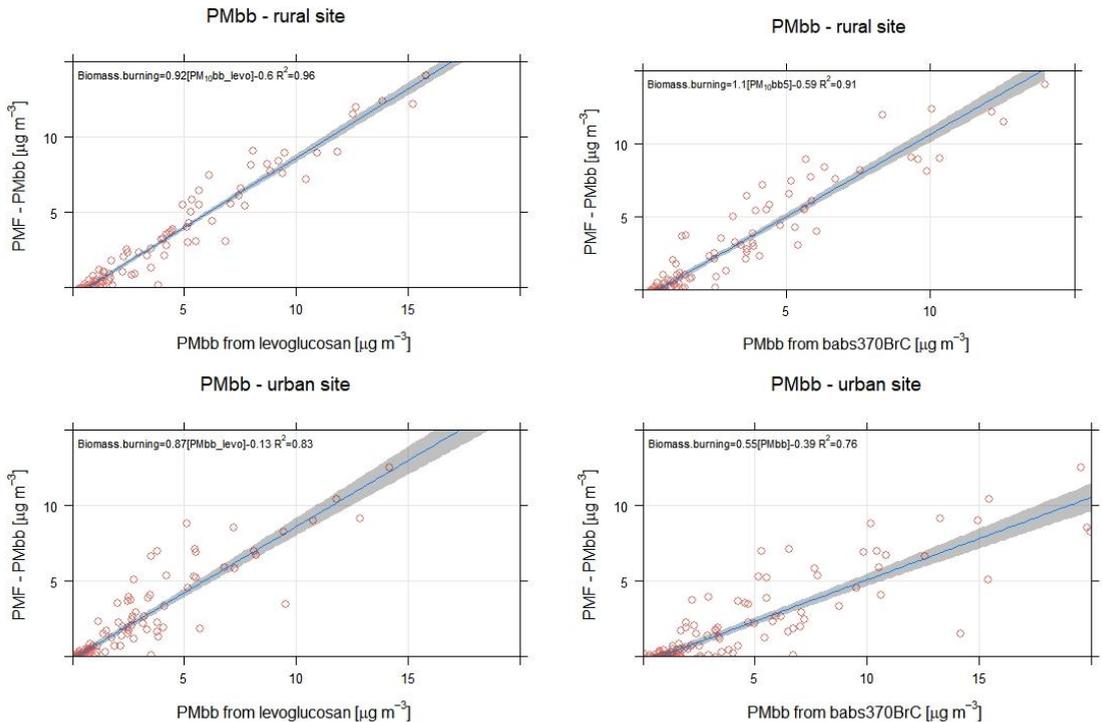


Figura 11.1.9. Correlazione tra le medie giornaliere del PMbb ottenuto attraverso i risultati del source apportionment da PMF e dalle misurazioni di levoglucosano (a sinistra) e dal coefficiente di assorbimento del BrC tramite le misurazioni UV dell'etalmetro, per il sito urbano di Aosta (grafici in basso) e per il sito rurale di Saint-Marcel (grafici in alto)

In generale, emerge una molto buona correlazione tra tutte le tecniche utilizzate in questo studio, con  $R^2 > 0,75$  per entrambi i siti di indagine, in particolare nel sito rurale, dove il coefficiente di correlazione  $R^2$  è maggiore di 0,91 per il confronto tra PMbb ricavato dal BrC e risultati della PMF. Per il sito urbano, le analisi PMF e le determinazioni di levoglucosano sono state eseguite da campioni raccolti nel sito di fondo urbano, il che può spiegare le correlazioni più deboli.

## Conclusioni

È stata condotta una campagna per valutare il contributo della combustione della biomassa all'inquinamento atmosferico nelle Alpi.

Sono stati esplorati diversi metodi per valutare il contributo della combustione della biomassa, basati sia sull'analisi chimica che sulle tecniche di assorbimento della luce. L'utilizzo delle proprietà ottiche del particolato (BC e BrC) ottenute da un misuratore in continuo come l'etalmetro offre una valida alternativa alle tecniche di source apportionment analitico (marker specifici o PMF) che richiedono per le Agenzie Ambientali un onere decisamente maggiore dal punto di vista della raccolta dei campioni di particolato e della loro successiva speciazione chimica in laboratorio.

Il contributo relativo della combustione della biomassa alla materia particolare (PM) è risultato maggiore negli ambienti rurali, raggiungendo valori fino all'80% in inverno.

Poiché la combustione della biomassa (legna e pellet) rimane una pratica diffusa nelle regioni alpine, si prevede che il contributo della biomassa svolgerà un ruolo sempre più importante sull'inquinamento atmosferico in quest'area. Sarà necessario definire piani di mitigazione a livello locale e regionale per l'utilizzo di questa fondamentale fonte di energia rinnovabile per ridurre al minimo gli svantaggi.

### **Ringraziamenti**

Gli autori ringraziano Alessandra Brunier, Giuliana Lupato, Sara Pittavino, Paolo Proment, Maria Cristina Gibellino (ARPA Valle d'Aosta) per le analisi chimiche; Marco Pignet, Stefano Drigo (ARPA Valle d'Aosta) per i campionamenti e per i dati dalla rete di monitoraggio di qualità dell'aria.

La partecipazione allo studio del Dott. Luca Ferrero si è svolta nell'ambito delle attività del Progetto MIUR "Dipartimenti di Eccellenza 2018-2022".

## Bibliografia

Aiken et al., O/C and OM/OC ratios of primary, secondary and ambient organic aerosols with high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometry. *Environmental Science and Technology*, 42, 4478-4485, 2008.

Diémoz et al., Transport of Po Valley aerosol pollution to the northwestern Alps – Part 2: Long-term impact on air quality, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 10129–10160, 2019.

Favez et al.; Bilan des travaux 2014-2015 du programme CARA. Rapport LCSQA 2015. Ref. : LCSQA-INERIS-DRC-16-152341-05992A.

Favez, O., Albinet, A., Aujay, R.: Impact de la combustion de biomasse sur les concentrations de PM<sub>10</sub> dans 10 agglomérations du Programme CARA au cours de l'hiver 2014-2015. Ref. LCSQA-INERIS: DRC-16-152341-05991A / programme CARA.

Favez O.: Estimation des concentrations de PM liées à la combustion de biomasse à partir des mesures d'absorption par le Brown Carbon (BrC). Ref. INERIS: DRC-18-167619-02994A / Prog. CARA 2017 - Etudes de sources PM en temps réel.

Favez et al., Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols during wintertime in an Alpine city (Grenoble, France). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 5295-5314, 2010.

Massabo, D., Caponi, L., Bernardoni, V., Bove, M.C., Brotto, P., Calzolari, G., Cassola, F., Chiari, M., Fedi, M.E., Fermo, P., Giannoni, M., Lucarelli, F., Nava, S., Piazzalunga, A., Valli, G., Vecchi, R., Prati, P., 2015. Multi-wavelength optical determination of black and brown carbon in atmospheric aerosols. *Atmos. Environ.* 108, 1-12.

Petit et al., Submicron aerosol source apportionment of wintertime pollution in Paris, France by double positive matrix factorization (PMF<sup>2</sup>) using an aerosol chemical speciation monitor (ACSM) and a multi-wavelength Aethalometer. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 13773-13787, 2014.

Putaud J. P., Cavalli F., Martins dos Santos S., Dell'Acqua, A., 2014. Long-term trends in aerosol optical characteristics in the Po Valley, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9129–9136, doi:10.5194/acp-14-9129-2014.

Puxbaum, H., B. Gomiscek, M. Kalina, H. Bauer, A. Salam, S. Stopper, O. Preining, and H. Hauck (2004), A dual site study of PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> aerosol chemistry in the larger region of Vienna, Austria, *Atmos. Environ.*, 38, 3949–3958.

Puxbaum, H., A. Caseiro, A. Sanchez-Ochoa, A. Kasper-Giebl, M. Claeys, A. Gelencser, M. Legrand, S. Preunkert, and C. Pio (2007), Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background, *J. Geophys. Res.*, 112, D23S05, doi:10.1029/2006JD008114.

Sabatier T., Paci A., Lac C., Canut G., Llargeron Y., Masson V., 2019. Semi-idealized simulations of wintertime flows and pollutant transport in an Alpine valley: Origins of local circulations (Part I), *Q J R Meteorol Soc.* 2020;146:807–826., doi: 10.1002/qj.3727.

Sabatier T., Paci A., Lac C., Canut G., Llargeron Y., Masson V., Rodier Q., 2019. Semi-idealized simulations of wintertime flows and pollutant transport in an Alpine valley. Part II: Passive tracer tracking, *Q J R Meteorol Soc.* 2020;146:827–845., doi: 10.1002/qj.3710.

Sandradewi, J., Prevot, A. S. H., Weingartner, E., Schmidhauser, R., Gysel, M., and Baltensperger, U.: A study of wood burning and traffic aerosols in an Alpine valley using a multi-wavelength Aethalometer, *Atmos. Environ.*, 42, 101–112, doi:10.1016/j.atmosenv.2007.09.034, 2008b.

Turpin & Lim, Species contribution to PM<sub>2.5</sub> mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass. *Aerosol Science and Technology*, 35, 602-610, 2001.

Viana M., Kuhlbusch T.A.J., Querol X., Alastuey A., Harrison R.M., Hopke P.K., Winiwarter W., Vallius M., Szidat S., Prévôt A.S.H., Hueglin C., Bloemen H., Wählin P., Vecchi R., Miranda A.I., Kasper-Giebl A., Maenhaut W., Hittenberger R., 2013. Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results, *Journal of Aerosol Science*, 39(10):827-849.

## 11.2 ANALISI DI UN EVENTO DI TRASPORTO DI POLVERE SAHARIANA IN REGIONE CAMPANIA MEDIANTE OSSERVAZIONE DI UNA COMBINAZIONE DI SATELLITI, MONITORAGGIO DATI AL SUOLO E MODELLI DI SIMULAZIONE CHIMERE

D'amore D.<sup>1</sup>, Budillon G.<sup>1</sup>, Buccolieri R.<sup>2</sup>, Autorino J.<sup>3</sup>, D'Ambrosio A.<sup>3</sup>, Onorati G.<sup>3</sup>

<sup>1</sup> UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI NAPOLI "PARTHENOPE"

<sup>2</sup> UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI LECCE

<sup>3</sup> ARPA CAMPANIA

### RIASSUNTO

Questo articolo è dedicato allo studio di un importante evento di trasporto di polvere sahariana verificatosi nel sud Italia dal 14 al 17 aprile 2018. Il Sahara è la più grande fonte mondiale di polvere del deserto ed influenza la qualità dell'aria, la salute umana, incide sui cambiamenti climatici, sulla dinamica dei nutrienti e sui cicli biogeochimici negli ecosistemi sia terrestri che oceanici. La polvere sahariana si sposta dall'Africa verso l'Europa, l'Asia e l'America attraverso il Mar Mediterraneo, l'Oceano Atlantico ed il Mar Rosso. L'Italia è uno dei Paesi più spesso raggiunti dalla polvere sahariana, in particolare la parte meridionale che è l'area di interesse di questo documento. L'evento viene qui analizzato combinando osservazioni satellitari (MODIS), dati monitorati e simulazioni CHIMERE per la regione Campania. Immagini MODIS e dati monitorati hanno ben evidenziato tale evento, mentre il modello CHIMERE ha permesso di ottenere la distribuzione spaziale delle concentrazioni di PM<sub>10</sub> nella regione, sovrastimandone le concentrazioni. Nel complesso, i risultati mostrano che (i) tale evento è stato davvero intenso, in particolar modo nel giorno 16 aprile, in cui è stata riscontrata la più alta concentrazione media giornaliera di PM<sub>10</sub> dell'anno (114,9 µg/m<sup>3</sup>) ed (ii) evidenziano l'importanza di adottare un approccio integrato per valutare l'impatto di questo tipo di eventi in un'area di interesse.

**Parole chiave:** polvere sahariana, Campania, modello CHIMERE, immagini MODIS, PM<sub>10</sub>

### ABSTRACT

This paper is devoted to the study of an important Saharan dust event which occurred in southern Italy on April 14<sup>th</sup> to 17<sup>th</sup> 2018. The Sahara is the world's larger source of desert dust influencing air quality, human health, climate change, nutrient dynamics and biogeochemical cycles of both terrestrial and oceanic ecosystems. Saharan dust moves from Africa to Europe, Asia and America across the Mediterranean Sea, the Atlantic Ocean and the Red Sea. Italy is one of the Countries more often reached by Saharan dust, especially the southern part which is the area of interest of this paper. The dust event is here analyzed combining satellite observations (by MODIS), monitored data and CHIMERE simulations for the Campania region. MODIS images and monitored data well highlighted such event, while CHIMERE model allowed to get the spatial distribution of the PM<sub>10</sub> concentrations in the region, even though concentrations were slightly overestimated. Overall, results show that (i) such event was really intense especially on April 16<sup>th</sup>, which experienced the highest PM<sub>10</sub> daily mean concentration of the year (114.9 µg/m<sup>3</sup>) and (ii) the importance to employ an integrated approach to evaluate the whole impact of such kind of events in an area of interest.

**Keywords:** Saharan dust, Campania, CHIMERE model, MODIS images, PM<sub>10</sub>

## Descrizione dell'area di studio

### *L'area di interesse*

La Campania è una delle 20 regioni italiane, situata approssimativamente a LAT 40° N e LON 14° E. Si estende lungo il Mar Mediterraneo, affaccia in particolare sul Mar Tirreno, ed è una delle regioni più piovose. Per il 51% il territorio campano è caratterizzato da colline, per il 34% da montagne e per il restante 15% da pianure alluvionali (Online.scuola.zanichelli.it).

La dorsale appenninica centrale, che si estende da NO a SE, comprende il Monte Matese, con la vetta più alta della Campania: 2050 m s.l.m., e con i massicci Taburno, Avella, Terminio, Cervialto, Alburno e Cerviati. Inoltre è accompagnato verso est da altopiani e bacini, come Benevento, Montecalvo Irpino e Ariano Irpino.

La Campania è inoltre caratterizzata da quattro importanti edifici vulcanici: Roccamonfina, Vesuvio e Campi Flegrei ed il complesso vulcanico dell'isola d'Ischia lungo la costa tirrenica per raggiungere la massima altitudine a circa 1200 m s.l.m.

La principale struttura geologica della Campania è rappresentata da quattro elementi strutturali di primo ordine (Www.difesa-suolo.regione.campania.it):

- area tirrenica, caratterizzata da crosta continentale assottigliata e, in alcune zone (Tirreno meridionale), da crosta oceanica, formata a partire dal Tortoniano superiore - Messiniano inferiore in seguito a processi di rifting avvenuti all'interno di una catena preesistente area tirrenica, caratterizzata da una sottile conchiglia continentale e da una conchiglia oceanica;
- catena appenninica, costituita da coltri di ricoprimento, a convergenza adriatica, e dai depositi di riempimento di bacini che si impostavano sulle coltri di ricoprimento in avanzamento;
- l'avanfossa appenninica, costituita da sedimenti plio-quadernari in parte sepolti sotto le falde appenniniche;
- avampaese, costituito da una potente successione carbonatica mesozoica, impostata su crosta

continentale, in graduale approfondimento verso SW al di sotto delle coltri appenniniche.

Dal punto di vista amministrativo, la Campania è suddivisa in cinque province: Napoli, Caserta, Avellino, Benevento e Salerno. Napoli ha un'altitudine di 148 m s.l.m., Caserta di 68 m s.l.m., Avellino di 348 m s.l.m., Benevento di 13 m s.l.m. e Salerno di 5 m s.l.m. ([Http://dipsa.unibo.it/catgis](http://dipsa.unibo.it/catgis)).

### **Precedenti eventi sulla polvere sahariana in Campania**

I principali eventi di trasporto di polvere sahariana sono stati analizzati e segnalati dall'ARPAC a partire dal 2014 ([www.meteoarpac.it](http://www.meteoarpac.it)), indicando la presenza di significativa polvere sahariana in Campania almeno tre volte l'anno, come di seguito riportato. Nei mesi di novembre e dicembre del 2014 ci sono stati due eventi di avvezione di polvere sahariana che hanno portato la temperatura dell'aria a 27° C (valore superiore di oltre 10° C alla temperatura media stagionale), polveri sostenute dal vento di Scirocco ([www.gmesatmosphere.eu](http://www.gmesatmosphere.eu)).

Sono stati segnalati anche sei eventi di polvere dal Sahara a febbraio, marzo, aprile e maggio 2015. In particolare nel mese di marzo tra il 24 ed il 26 c'è stato il cosiddetto fenomeno della "nuvola rossa" con nuvole piene o polvere sahariana che ha comportato precipitazioni ricche di polvere. In seguito anche il 14 e 15 maggio si sono verificati altri fenomeni di trasporto di polvere sahariana che hanno determinato un innalzamento della temperatura fino a 30 °C.

Nel 2016 ci sono stati tre eventi a febbraio, giugno e ottobre. In particolare, il 16 e 17 febbraio il cielo è diventato completamente giallo e la temperatura ha raggiunto i 25° C. Il 16 giugno è stato caratterizzato dalla presenza di anticiclone sub-sahariano sulla Libia e una perturbazione dalla Spagna che ha portato polvere sahariana in Campania. In particolare durante questo evento, è stato superato il valore limite delle concentrazioni di PM<sub>10</sub> di 50 µm/m<sup>3</sup>. Il 15 ottobre c'era un fronte freddo sull'Italia preceduto da un flusso di suolo

proveniente da S-SE con il trasporto di polvere sahariana.

Nel 2017 sono stati segnalati sei eventi relativi alla polvere sahariana in aprile, maggio, agosto, ottobre e dicembre. In aprile 26 e 27 c'è stato un forte vento geostrofico in quota e un centro di bassa pressione in quota al di sopra delle Alpi a supporto del flusso di polvere.

Il 3, 4 e 5 agosto, invece, l'anticiclone sull'Europa centrale ha trasportato polvere sahariana dal Marocco e dall'Algeria fino alla Campania. Il 12 e 13 dicembre c'è stato un significativo evento di polvere sahariana su Napoli e Caserta con raggiungimento di valori di concentrazione di PM<sub>10</sub> di 50 µg/m<sup>3</sup>.

Infine, anche per il 2018 possiamo annoverare quattro eventi di polvere sahariana nei mesi di Marzo ed Aprile. Dal 1 al 3 marzo e tra il 4 e 5 di Aprile le concentrazioni di PM<sub>10</sub> nella città di Napoli hanno raggiunto valori di 100 µg/m<sup>3</sup> a causa dell'ingente contributo di polveri di origine sahariana.

Dal 14 al 17 Aprile la concentrazione di PM<sub>10</sub> ha raggiunto valori di 70-75 µg/m<sup>3</sup> ovunque in Campania, con venti che hanno raggiunto i 35 m/s ([www.meteoarpac.it](http://www.meteoarpac.it)). La maggior parte di questi eventi si sono verificati in primavera e in autunno spesso quando i venti da ovest hanno soffiato sul Mar Mediterraneo e il Jet Stream ha raggiunto l'Africa.

## Metodologia

*Approcci disponibili per lo studio dei fenomeni di trasporto di polvere sahariana*

Per la valutazione della dinamica del trasporto della polvere sahariana sono disponibili diversi strumenti come osservazioni satellitari, tecniche di modellizzazione e stazioni di monitoraggio, brevemente riassunti di seguito:

Osservazioni satellitari: consentono una ricostruzione accurata della distribuzione areale della polvere per l'intera area mediterranea. I satelliti più utili sono quelli con adeguata copertura temporale e buona risoluzione

spaziale. Le osservazioni satellitari forniscono un punto di vista unico dal quale studiare il sistema terrestre. Forniscono infatti una vasta gamma di osservazioni, dalle misurazioni della circolazione atmosferica e oceanica alle misurazioni delle temperature dello strato più alto dell'atmosfera, fino a rappresentare sentinelle del sistema globale nello spazio. Consentono di osservare cambiamenti rapidi, tempeste significative, inondazioni e persino fioriture dannose di fitoplancton nell'oceano costiero (Consiglio Nazionale delle Ricerche, 2003). MODIS (Spettrometro per immagini a risoluzione moderata) è uno strumento della NASA che utilizza sensori collocati su due satelliti che forniscono una completa copertura giornaliera della terra. I dati hanno una varietà di risoluzioni spettrale, spaziale e temporale. Poiché il sensore MODIS è presente su entrambi i satelliti Terra e Aqua, in genere è possibile ottenere immagini al mattino (Terra) e al pomeriggio (Aqua) per qualsiasi posto del globo terrestre. I dati notturni sono disponibili anche nello spettro dell'infrarosso ([Yceo.yale.edu/what-modis](http://Yceo.yale.edu/what-modis)).

I satelliti Aqua e Terra fanno parte di EOS (Earth Observation System) programma della NASA e, con altri satelliti, forniscono osservazioni globali a lungo termine della superficie terrestre, biosfera, atmosfera e oceani. Grazie ad Aqua è possibile studiare precipitazioni, evaporazione e ciclo dell'acqua, invece Terra esplora le connessioni tra l'atmosfera del pianeta, terra, neve e ghiaccio, oceano ed equilibrio energetico per comprendere clima e cambiamenti climatici e per valutare sia l'impatto sull'essere umano che l'impatto delle catastrofi naturali su comunità ed ecosistemi ([www.nasa.gov](http://www.nasa.gov)).

Simulazioni modellistiche: per lungo tempo, i modelli a traiettoria sono stati usati quasi esclusivamente per studiare i movimenti della polvere nell'atmosfera (ad es. Merrill et al. 1985; Reiff et al. 1986; Martin et al. 1990). Ma la modellizzazione a traiettoria è incapace di quantificare la distribuzione spaziale della concentrazione di polvere nell'atmosfera. I modelli euleriani sono sicuramente l'alternativa più sofisticata. In grado di stimare il campo di concentrazione della polvere (Nickovich, 1996). Numerosi modelli di dispersione atmosferica sono stati

sviluppati da molti centri meteorologici mondiali come il Barcelona Dust Forecast Center, l'Università dell'Aquila con il modello FORECHEM, COPERNICUS (Global Monitoring for Environment and Security) ed il CEMEC (Centro meteorologico della Campania) che utilizza il modello CHIMERE.

CHIMERE è un modello di trasporto chimico euleriano sviluppato dall'Istituto Pierre Simon Laplace e Lisa (Laboratorio Interuniversitario dei Sistemi Atmosferici) del CNRS (Centre national de la recherche scientifique) e INERIS (Institut national de l'environnement industriel et des risques). Può essere implementato su diversi domini integrati sia su scala continentale (migliaia di miglia) che su scala regionale (100-200 km) con una risoluzione orizzontale tra 100 km e 1-2 km. CHIMERE riproduce i principali fenomeni chimico-fisici degli inquinanti atmosferici (emissione, diffusione, trasporto, reazioni e deposizioni chimiche e fotochimiche) e fornisce previsioni giornaliere di concentrazioni di ozono, polveri sottili e di altri inquinanti. In ogni punto della griglia vengono calcolate le concentrazioni medie delle celle che non tengono conto degli effetti locali dovuti a processi su piccola scala come canyon urbani o incroci.

Stazioni di monitoraggio: le stazioni fisse e mobili sono caratterizzate dalla presenza di strumentazione automatica (analizzatori) per misurare le concentrazioni di biossido di zolfo, ossido di azoto, ozono, monossido di carbonio e particolato. I campioni d'aria vengono analizzati con specifica frequenza temporale ed ogni strumento fornisce la concentrazione di uno specifico inquinante grazie all'applicazione di una caratteristica formula analitica. .

### Osservazioni satellitari

Sul sito web della NASA ci sono le immagini dell'area di studio archiviate da MODIS. L'arrivo della polvere sahariana in Sicilia il 13 aprile 2018 può essere visualizzato nella Figura 1a.. Le immagini sono state in particolare estratte dal sito Web MODIS Dust (<https://worldview.earthdata.nasa.gov>) selezionando l'area di interesse, scegliendo la risoluzione, selezionando il giorno, mese e anno.

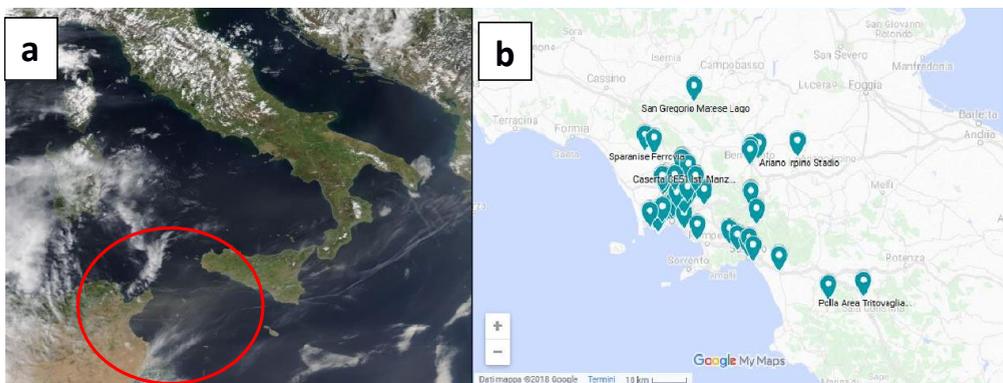


Figura 11.2.1. (a) Immagine della polvere MODIS del 13 aprile 2018 alle 13:30, mostra chiaramente la polvere sahariana che giunge dall'Africa alla Sicilia (cerchio rosso), (b) stazioni di monitoraggio ARPAC.

### *Dati di modellazione CHIMERE*

CHIMERE necessita di diversi dati di input quali meteorologia, condizioni al contorno, processi di emissione e risolve le trasformazioni chimico-fisiche e le equazioni di trasporto e diffusione per dare come output le concentrazioni degli inquinanti in atmosfera. Nell'input meteorologico ci sono dati in 3D (vento, temperatura, densità, umidità, livelli di altezza del modello, quantità di vapore acqueo, acqua precipitabile e quantità di ghiaccio) e dati 2D (temperatura a 2m, altezza di miscelazione, velocità di frizione, lunghezza di Monin Obukhov, velocità della scala convettiva, resistenza aerodinamica, flusso di calore latente e sensibile e precipitazioni). Le condizioni al contorno sono i valori di concentrazione degli inquinanti al limite dei domini. Questi valori possono essere acquisiti dagli output di altri modelli su scala sinottica o da output del modello CHIMERE con un dominio più grande dell'attuale dominio di simulazione. I processi che stimano le emissioni sono LANDUSE e BIOFACT per calcolare le emissioni biogeniche, deposizione umida, correzioni meteorologiche urbane, risospensione della polvere e tempo biogenico di emissione (Stortini M., 2006; ARPA-UMBRIA, 2009). I dati del modello CHIMERE in disponibilità di ARPAC sono dati temporali che coprono l'intero territorio regionale. Si tratta di file NetCDF su 25 ore (dalla mezzanotte del giorno corrente all'1 del giorno successivo) per ogni giorno, con tre giorni di anticipo; grazie al modulo NCO (operatore NetCDF) è stato possibile calcolare la concentrazione media giornaliera di PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>10</sub> e pDUST in Campania (LAT 41° N, LONG 13° E) dal 14 al 17 aprile 2018 ottenendo mappe di concentrazione che hanno consentito di estrarre dati per confrontarli con le concentrazioni misurate.

### *Dati monitorati*

La rete di monitoraggio della Campania, gestita da ARPAC, è caratterizzata da 41 stazioni automatiche fisse. Venti stazioni di monitoraggio si trovano a Napoli, cinque ad Avellino, quattro a Benevento, sette a Caserta e cinque a Salerno. Le stazioni di monitoraggio sono nate

nel 1994 con l'obiettivo di fornire analisi puntuali per valutare l'esposizione della popolazione alle emissioni inquinanti. Queste stazioni sono state quindi localizzate sulla base di caratteristiche sia orografiche che urbane. Gli inquinanti monitorati sono: bissido di azoto, monossido di carbonio, idrocarburi aromatici come benzene, toluene, xilene, anidride solforosa, ozono e particolato (PM<sub>10</sub> e PM<sub>2.5</sub>). I valori di concentrazione di PM<sub>10</sub> sono stati raggruppati in tre classi di concentrazione per valutare la qualità dell'aria:

1. 0 – 50 µg/m<sup>3</sup> di buona qualità dell'aria
2. 51 – 75 µg/m<sup>3</sup> qualità dell'aria mediocre
3. 76 – 100 µg/m<sup>3</sup> pessima qualità dell'aria

In questo lavoro le concentrazioni di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2.5</sub> sono state utilizzate per analizzare la presenza della polvere di origine sahariana dal 14 al 17 aprile 2018 in Campania. I dati sono stati divisi in due categorie, per le stazioni di fondo e le stazioni urbane, per mostrare quanto i valori di concentrazione di PM<sub>10</sub> siano influenzati dalle emissioni industriali o dal traffico urbano. I dati sono stati inoltre suddivisi per capoluoghi calcolando la media aritmetica per ciascuno di essi ottenendo cinque grafici per confrontare l'andamento della concentrazione di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2.5</sub>. Considerando che le concentrazioni di questi due inquinanti mostrano solitamente le stesse fluttuazioni è dimostrabile la presenza di polvere sahariana quando la concentrazione del PM<sub>10</sub> aumenta mentre quella del PM<sub>2.5</sub> resta quasi costante. Questo approccio è stato applicato a concentrazioni giornaliere di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2.5</sub> per tutti i giorni del mese di aprile 2018 e, con lo stesso metodo, sono stati creati cinque grafici per confrontare la concentrazione di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2.5</sub> in ogni capoluogo di provincia ed altri cinque per analizzarne le correlazioni. Abbiamo anche analizzato i dati orari delle concentrazioni di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2.5</sub> negli ultimi due giorni dell'evento di trasporto di polvere sahariana (16 e 17 aprile) in una stazione in cui il PM<sub>10</sub> ha raggiunto valori di concentrazione superiori agli altri capoluoghi.

## **Risultati**

### *Osservazioni satellitari*

Come mostrato nella Figura 11.2.1 il 13 aprile 2018, si è verificato un trasporto di polvere sahariana che dalle coste tunisine ha raggiunto le coste siciliane ed il Mar Tirreno, fenomeno ben documentato dalle immagini di

polvere MODIS. La polvere sahariana ha raggiunto la regione Campania e tutto il Mar Mediterraneo il 15 aprile, come mostrato in Figura 11.2.2.

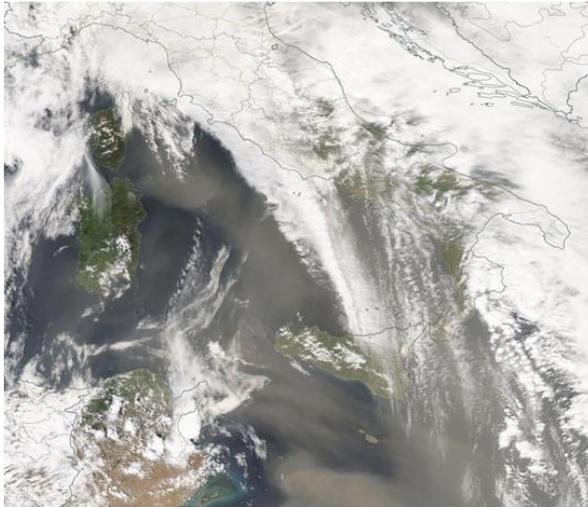


Figura 11.2.2. Immagine della polvere fonte MODIS del 15 aprile 2018 alle 01:30 p.m., mostra chiaramente la polvere sahariana su tutto il Mar Mediterraneo.

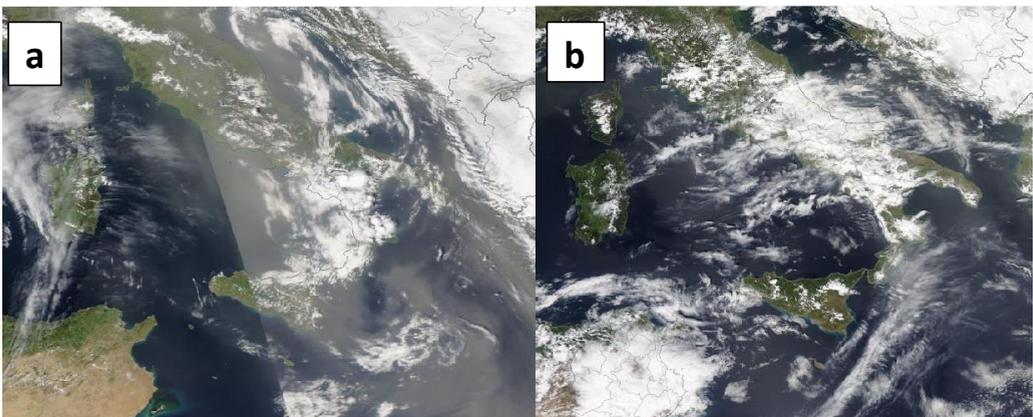


Figura 11.2.3. Immagini della polvere fornite dal MODIS del 17 aprile (a) e (b) 17 aprile 2018, entrambe alle 13:30.

Il 16 e 17 aprile 2018 vi è stato lo sviluppo per poi sopraggiungere la conclusione dell'evento (Fig. 11.2.3a,

11.2.3b). In particolare, il 16 aprile 2018 la polvere sahariana ha attraversato l'Italia meridionale per poi

spostarsi verso est (Fig. 11.2.3a) lasciare la penisola il 17 aprile 2018 (Fig. 11.2.3b).

Lo studio della situazione sinottica è fondamentale per comprendere il comportamento della polvere sahariana grazie all'analisi di superficie e analisi della copertura nuvolosa (osservazioni satellitari con polvere e colore naturale). Il 13 aprile 2018 sia l'Italia che il Nord Africa sono state interessate da un'alta pressione, con un fronte freddo che lasciava l'Italia, per poi spostarsi verso est lasciando un centro di bassa pressione nel Nord Africa il

14 aprile comportando un incremento della copertura nuvolosa in questi due giorni. La bassa pressione ha interessato l'Italia meridionale il 15 aprile, raggiungendo la Sicilia e la Sardegna meridionale con conseguente aumento della copertura nuvolosa sull'Italia. La presenza del Jet Stream (150 / 170 km/h) dall'Africa all'Italia è stata evidenziata anche dalle mappe Jet Stream 300 hPa di [www.meteociel.fr](http://www.meteociel.fr) (Figura 11.2.4).

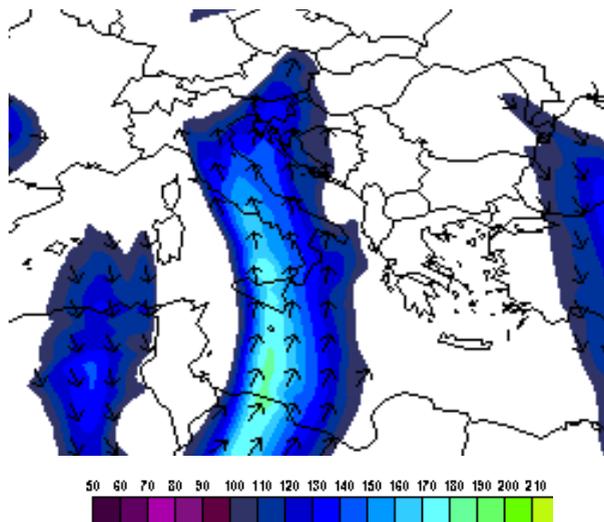


Figura 11.2.4. Mappa del Jet Stream 300 hPa del 15 Aprile 2018 ore 02:00 p.m mostra chiaramente il Jet Stream che si muove dalle coste della Tunisia all'Italia.

C'è stato un flusso di vento da nord partito dal Golfo di Sirte verso la Campania. Il vento alla quota di 600 m ha raggiunto i 35 m/s (126 km/h), come mostrato nelle mappe del vento in quota elaborate a partire dai dati acquisiti dal windprofiler di ARPAC. Il centro di bassa pressione si è trasferito in Italia il 16 aprile, con il suo centro nel Mar Tirreno vicino alle coste della Campania, con una parziale copertura nuvolosa e intense precipitazioni sulla regione. Il 17 aprile il centro di bassa pressione si è spostato verso est sulla costa adriatica con un'elevata copertura nuvolosa sull'Italia centrale e

meridionale ed intense precipitazioni. I valori di temperatura hanno subito un incremento di 4°- 6° C rispetto ai giorni precedenti, raggiungendo i 24° C il 15 aprile ([www.wetterzentrale.de](http://www.wetterzentrale.de); [www.meteociel.fr](http://www.meteociel.fr)).

#### *Dati monitorati*

Dalle 30 stazioni di monitoraggio ARPAC, è stato possibile estrarre i dati medi giornalieri di PM<sub>10</sub> e analizzare l'andamento della concentrazione in ciascuna stazione. A riprova dell'evento le concentrazioni medie giornaliere di PM<sub>10</sub> nei giorni del 16 e 17 aprile 2018

erano maggiori degli altri giorni, come mostrato in Figura 11.2.5a dove è anche possibile osservare che le concentrazioni di  $PM_{10}$  hanno iniziato ad aumentare rapidamente dal 13 aprile per poi calare alla fine del 17 aprile. Inoltre, la stessa figura mostra la presenza di altri eventi di trasporto di polvere sahariana all'inizio e alla fine del mese. Poiché le concentrazioni di  $PM_{10}$  sono influenzate dal traffico urbano, le stazioni sono state suddivise in stazioni di fondo (undici) e stazioni urbane (diciannove). Le stazioni di fondo sono situate lontano dai centri cittadini e dal traffico automobilistico, quindi si

prevede che  $PM_{10}$  sia composto prevalentemente da polvere naturale. Le Figure 11.2.5b, 11.2.5c mostrano valori di concentrazione media giornaliera di  $PM_{10}$  elevati in tutte le stazioni dal 14 al 17 aprile. La Fig. 5b mostra il picco più alto del valore di concentrazione di  $PM_{10}$  di  $114,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  nella stazione della zona industriale di Acerra. In Fig. 5c c'è un singolo picco alto il 12 aprile con un valore di  $149,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  corrispondente alla stazione ubicata nella zona industriale di Benevento, probabilmente legata solo alle emissioni industriali e non ad un apporto di polvere di origine sahariana.

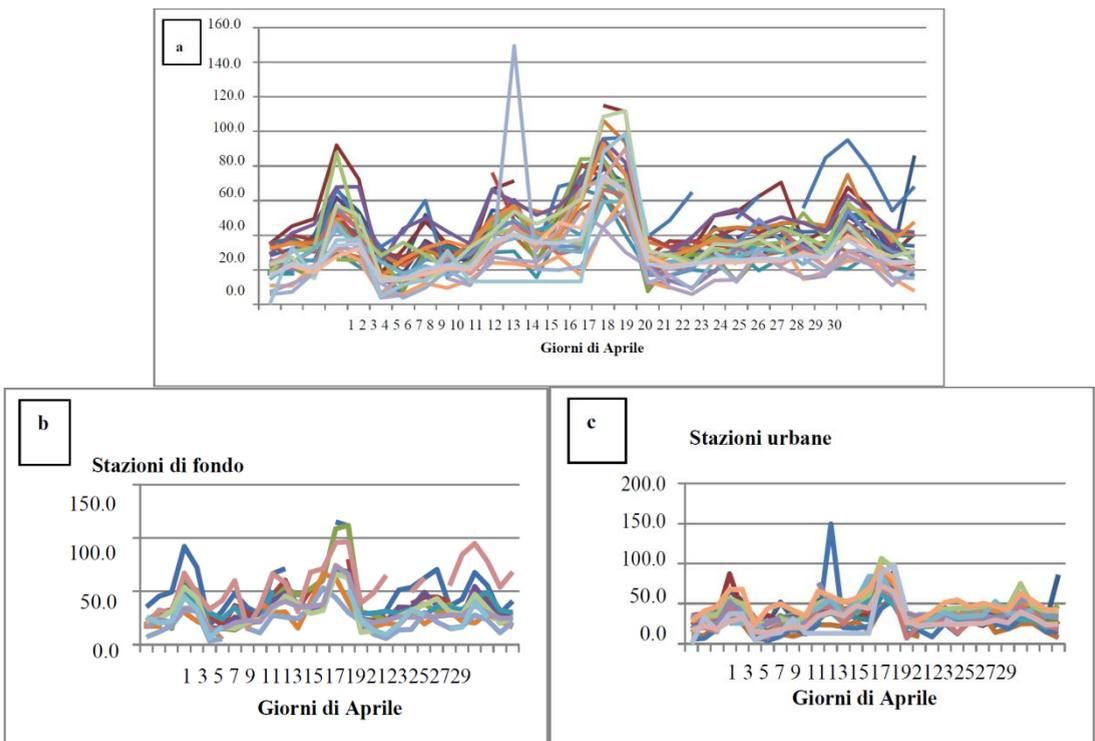


Figura 11.2.5. Concentrazioni medie giornaliere di  $PM_{10}$  ottenute da (a) tutte le 30 stazioni di monitoraggio dell'ARPAC, (b) stazioni di fondo e (c) stazioni urbane.

Inoltre, le stazioni sono state suddivise per capoluoghi per confrontare i valori di concentrazione media giornaliera di  $PM_{10}$  e  $PM_{2,5}$  come mostrato in Fig. 11.2.6.

Il  $PM_{2,5}$  ha mantenuto i suoi valori di concentrazione costanti durante tutto il mese, il  $PM_{10}$  invece ha avuto molti picchi ed in ogni capoluogo si è avuto un picco tra

il 14 ed il 17 aprile. A Napoli è stata rilevata una concentrazione media giornaliera di PM<sub>10</sub> di 83,3 µg/m<sup>3</sup> il 16 aprile e 71,1 µg/m<sup>3</sup> il 17 aprile. Altri capoluoghi con valori elevati di concentrazione media giornaliera sono stati Caserta e Salerno, rispettivamente, con 75,7 µg/m<sup>3</sup>

e 76,7 µg/m<sup>3</sup> il 16 aprile e 66,2 µg/m<sup>3</sup> e 77 µg/m<sup>3</sup> il 17 aprile.

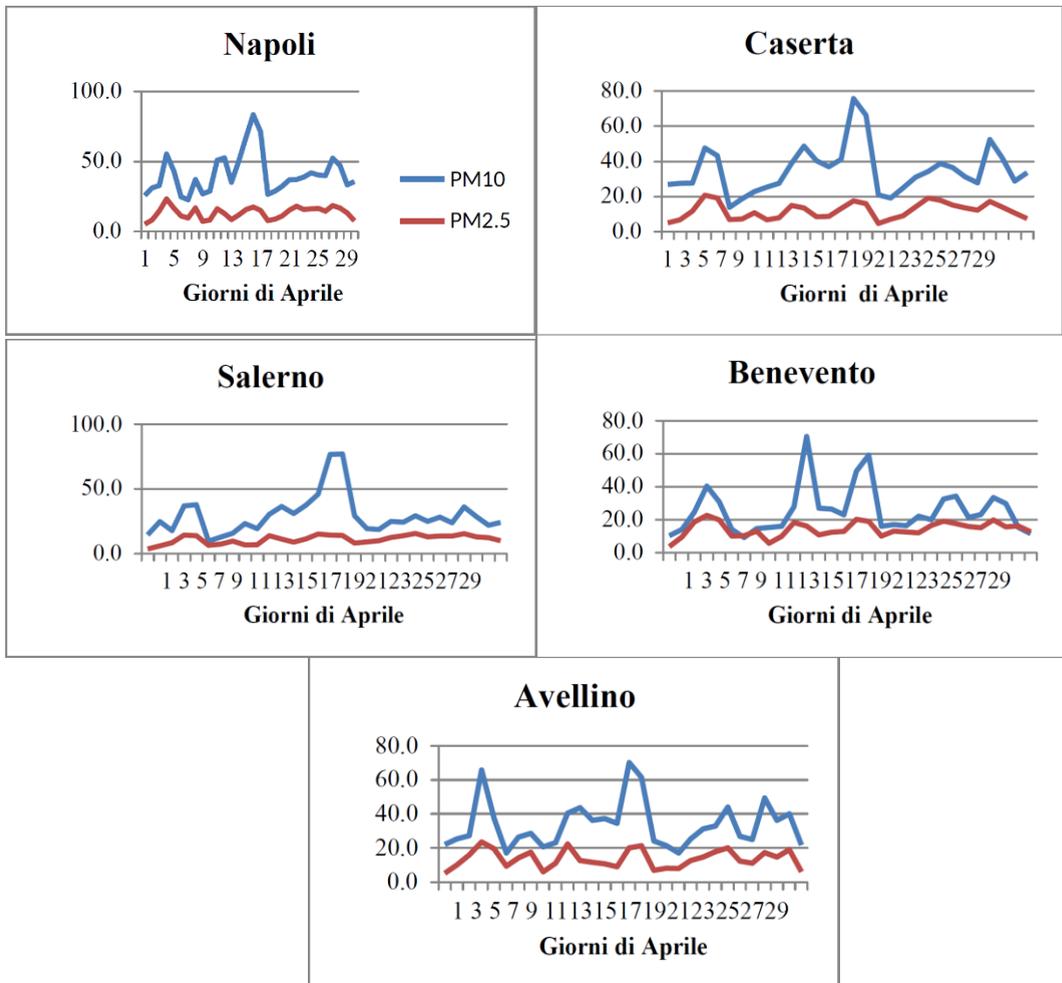


Figura 11.2.6. Andamenti concentrazione media giornaliera PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> per ciascun capoluogo della regione Campania

A conferma dell'avvento di polvere di origine sahariana è stata calcolata la correlazione tra le concentrazioni di

PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> in ciascun capoluogo per il mese di Aprile 2018.

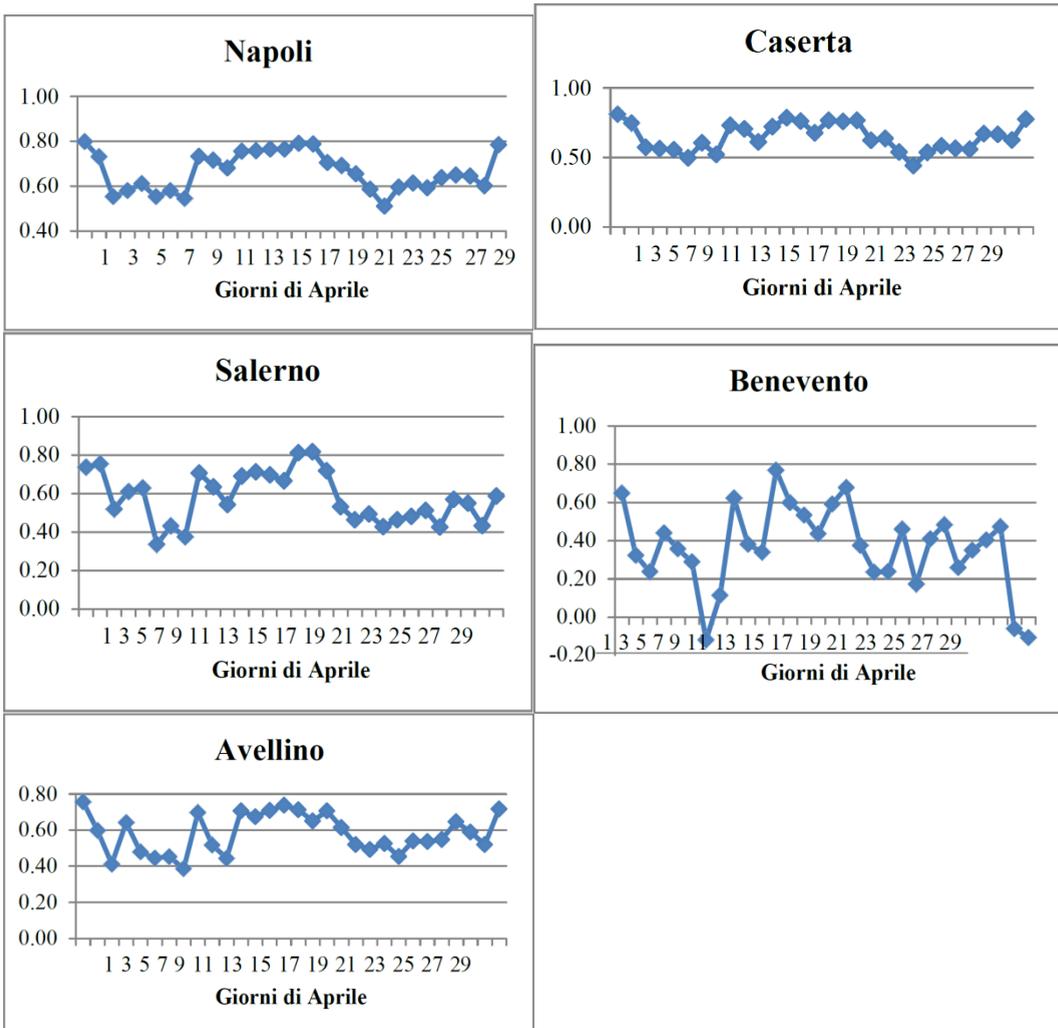


Figura 11.2.7. Correlazione tra  $PM_{10}$  e  $PM_{2.5}$  Aprile 2018.

La Figura 11.2.7 mostra che la concentrazione giornaliera media di  $PM_{10}$  è generalmente maggiore della concentrazione di  $PM_{2.5}$ , specialmente nei giorni in cui si

è verificato un evento sahariano. In particolare, la correlazione individuata per la città di Napoli mostra che  $PM_{10}$  e  $PM_{2.5}$  hanno un indice elevato di correlazione

(0,76) già dal 12 aprile, quindi probabilmente una piccola quantità di polvere sahariana è stata trasportata in regione Campania già nei giorni precedenti l'evento considerato.

## Simulazioni CHIMERE

### Validazione del modello

È stata seguita una procedura di validazione del modello per valutare in che modo CHIMERE abbia simulato le concentrazioni di PM<sub>10</sub>. A tal fine, sono stati utilizzati alcuni parametri statistici per confrontare dati di concentrazione di PM<sub>10</sub> osservati e previsti (Hanna et al., 1991, 1993) come il bias frazionario (FB), il bias medio geometrico (MG), l'errore quadratico medio normalizzato (NMSE), la varianza geometrica (VG), il coefficiente di correlazione (R) e la frazione di previsioni all'interno di un fattore di due delle osservazioni.

$$FB = \frac{\overline{C_o - C_p}}{0.5(\overline{C_o} + \overline{C_p})}; \quad MG = \exp(\overline{\ln C_o} - \overline{\ln C_p});$$

$$NMSE = \frac{(\overline{C_o - C_p})^2}{\overline{C_o C_p}}; \quad VG =$$

$$\exp[\overline{(\ln C_o - \ln C_p)^2}]$$

$$R = \frac{\overline{(C_o - \overline{C_o})(C_p - \overline{C_p})}}{\sigma_{C_o} \sigma_{C_p}}$$

$$FAC2 = \text{frazione dei dati che soddisfa } 0.5 \leq \frac{C_p}{C_o} \leq 2$$

dove:

C<sub>p</sub>: previsione da modello;

C<sub>o</sub>: osservazioni;

$\overline{C}$ : media del set di dati;

$\sigma$ : deviazione standard

Un modello perfetto dovrebbe avere MG, VG, R e FAC2 = 1.0; e FB e NMSE = 0,0. Esistono anche altri valori accettabili per questi parametri; FB = 0,67 implicherebbe un fattore medio di sottostima di due, e FB = -0,67 implicherebbe un fattore di sovrastima media di due; un fattore di due distorsioni medie implicherebbe MG = 0,5 o 2,0 ed un fattore di quattro distorsioni medie

implicherebbe che MG = 0,25 o 4,0; l' NMSE = 1.0 implica che l'errore quadratico medio è uguale alla media, mentre se NMSE diventa molto più grande di 1.0, si può dedurre che la distribuzione non è normale ma è più vicina alla distribuzione log-normale; VG esprime la dispersione di una distribuzione lognormale, che può essere espressa come "più o meno il 20%" o "più o meno un fattore di 10". Ad esempio, un fattore di 2 scatter implicherebbe un VG = 1.6 e un fattore di 5 scatter implicherebbe VG = 12 (Chang e Hanna, 2004).

Utilizzando i parametri precedenti, sono stati ottenuti i seguenti risultati:

$$FB = -0.44; \quad MG = 0.69; \quad NMSE = 0.44; \quad VG = 1.53; \quad R = 0.56; \quad FAC2 = 0.68$$

I valori di tutti i parametri sono accettabili, sebbene FB implichi un fattore medio di sovrastima.

### Mappe Chimere

La Figura 11.2.8 mostra quattro mappe CHIMERE della concentrazione media giornaliera di PM<sub>10</sub> dal 14 al 17 aprile 2018 in regione Campania per confrontare qualitativamente i dati osservati con le simulazioni CHIMERE giorno per giorno.

La Figura 11.2.8a mostra che nella regione Campania il 14 aprile 2018 i valori di concentrazione media giornaliera di PM<sub>10</sub> erano inferiori a 50 µg/m<sup>3</sup> (azzurro), ma è possibile vedere la polvere (gialla) che arriva da sud. Il 15 aprile è sopraggiunta la polvere sahariana con concentrazioni medie giornaliere di PM<sub>10</sub> molto elevate, specialmente sulla fascia costiera con valori superiori a 100 µg/m<sup>3</sup>, mentre è diminuito nella zona settentrionale. La Figura 11.2.8c mostra che la regione Campania è stata quasi totalmente coperta dalla polvere sahariana nel giorno del 16 aprile; le concentrazioni medie giornaliere di PM<sub>10</sub> erano superiori a 100 µg/m<sup>3</sup> (rosso scuro), ma i valori di concentrazione di PM<sub>10</sub> riscontrati erano compresi tra 60 ed 80 µg/m<sup>3</sup> (da giallo a rosso chiaro) in alcune stazioni interne. La concentrazione di polvere sahariana è quindi diminuita il 17 aprile, ma si è

mantenuta ancora alta lungo le coste della Campania e più bassa invece nelle zone interne.

Le immagini mostrano chiaramente che il modello CHIMERE ha sovrastimato i valori di concentrazione

medi giornalieri di  $PM_{10}$  dal 15 al 17 aprile. Tuttavia, lo sviluppo della polvere sahariana che si è spostato verso est durante l'evento è stato ben rappresentato.

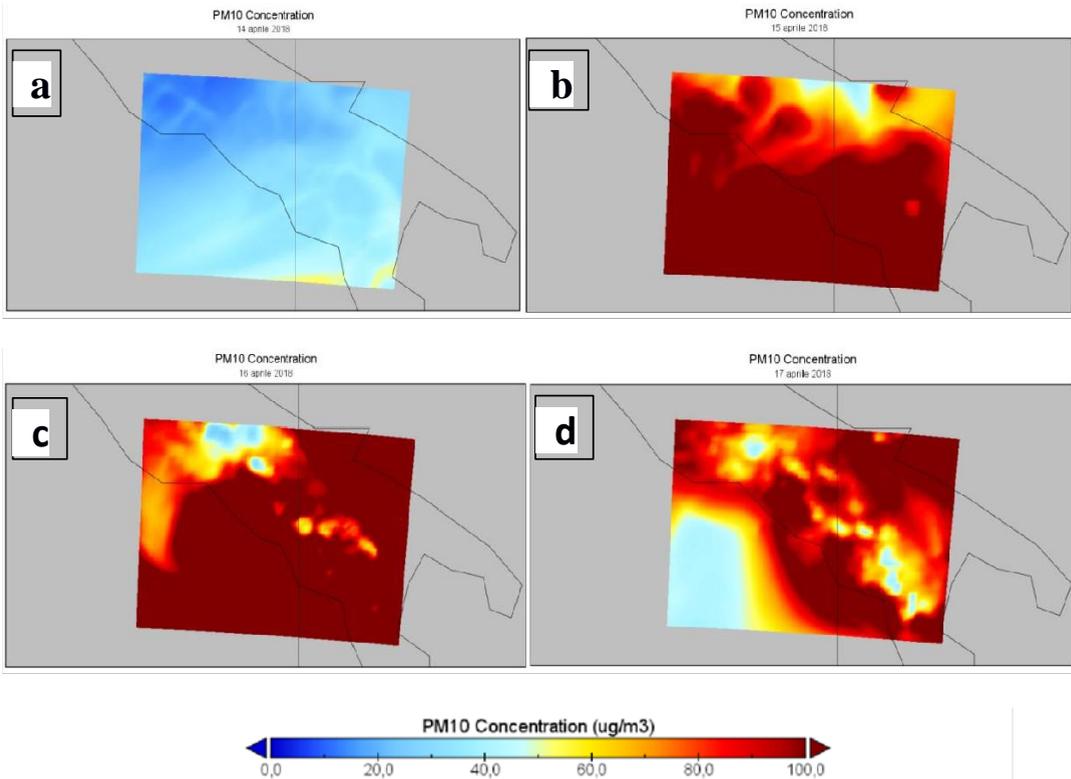


Figura 11.2.8. Mappe di CHIMERE della concentrazione media giornaliera di  $PM_{10}$  nei giorni 14, 15, 16 e 17 Aprile del 2018 in regione Campania

## Conclusioni

La polvere sahariana trasportata dal Nord Africa alla regione Campania dal 14 al 17 aprile 2018 ha comportato un intenso evento di polvere, maggiore del precedente registrato nella stessa area negli ultimi quattro anni. Il tutto è stato confermato dall'analisi delle

osservazioni satellitari e dei dati monitorati, nonché dalle simulazioni CHIMERE.

L'evento di trasporto di polvere sahariana è iniziato il 13 aprile con lo spostamento delle polveri dalle coste tunisine al Mar Mediterraneo mentre il 14 aprile il Nord Africa era interessato da un campo di bassa pressione. Il trasferimento della polvere è stato anticipato dal centro

di bassa pressione che si è spostato dall'Africa al Mar Mediterraneo il 15 aprile e dall'intenso Jet Stream diretto verso nord. Il 16 aprile il centro di bassa pressione si è avvicinato alle coste della Campania e nel frattempo la regione è stata interessata da intense precipitazioni. Nonostante le intense precipitazioni, i dati monitorati hanno mostrato che le concentrazioni medie giornaliere di  $PM_{10}$  si sono mantenute molto elevate, specialmente il 16 aprile.

Le principali conclusioni raggiunte da questo studio sono:

- dal 13 al 17 aprile 2018 l'evento di polvere sahariana si è verificato nella regione Campania (Italia meridionale) come mostrato da immagini Aqua-MODIS;
- i valori di concentrazione medi giornalieri di  $PM_{10}$ , che sono stati misurati nelle stazioni di monitoraggio situate nel territorio regionale, hanno iniziato ad aumentare notevolmente il 15 aprile 2018 con  $71,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$

raggiungendo il valore di  $114,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  il 16 aprile per poi diminuire il 17 aprile;

- le simulazioni del modello CHIMERE hanno mostrato la distribuzione spaziale della polvere sahariana che aveva interessato tutta la Campania con valori di concentrazione medi giornalieri molto elevati di  $PM_{10}$ .

Grazie alla combinazione di diversi approcci è stato possibile valutare sia qualitativamente (attraverso la distribuzione spaziale) che quantitativamente (attraverso i valori assoluti) l'evento della polvere sahariana ed i suoi principali aspetti. Un metodo simile potrebbe essere utilizzato dall'Agenzia regionale per Protezione ambientale ARPAC per avere una panoramica completa dei futuri eventi di polvere sahariana che potrebbero verificarsi nella regione Campania.

## Bibliografia

- Alpert, P., Kaufman, Y.J., Shay-El, Y., Tanre, D., da Silva, A., Schubert, S., Joseph, J.H., 1998. Quantification of dust-forced heating of the lower troposphere. *Nature* 395, 367–370
- ARPA UMBRIA, 2009, Scenari emissivi e di concentrazione in Umbria. Applicazione modello CHIMERE, relazione tecnica
- A.S. Goudie, N.J. Middleton, 2001, Saharan dust storms: nature and consequences, *Earth-Science Reviews* 56 (2001) 179–204
- Bryson, R.A., Barreis, I.A., 1967. Possibilities of major climatic modifications and their implications: northwest India, a case for study. *Bulletin of the American Meteorological Society* 48, 136–142
- Chang J.C. and Hanna S.R., 2004, Air quality model performance evaluation, *Meteorol Atmos Phys* 87, 167– 196 (2004)
- Engelstaedter S., Tegen I., Washington R., 2006, North African dust emissions and transport, *Earth Sci Rev* vol. 79
- Hanna SR, Strimaitis DG, Chang JC (1991) Hazard response modeling uncertainty (A quantitative method), vol. I: User's guide for software for evaluating hazardous gas dispersion models; vol. II: Evaluation of commonly-used hazardous gas dispersion models; vol. III: Components of uncertainty in hazardous gas dispersion models. Report no. A119=A120, prepared by Earth Tech, Inc., 196 Baker Avenue, Concord
- MA 01742, for Engineering and Services Laboratory, Air Force Engineering and Services Center, Tyndall Air Force Base, FL 32403; and for American Petroleum Institute, 1220 L Street, N.W., Washington, D.C., 20005
- Hanna SR, Chang JC, Strimaitis DG (1993) Hazardous gas model evaluation with field observations. *Atmos Environ* 27A: 2265–2285
- Jickells, T.D., Dorling, S., Deuser, W.G., Church, T.M., Arimoto, R., Prospero, J.M., 1998. Air-borne dust fluxes to a deep water sediment trap in the Sargasso Sea. *Global Biogeochemical Cycles* 12, 311–320
- Li, X., Maring, H., Savoie, D., Voss, K., Prospero, J.M., 1996. Dominance of mineral dust in aerosol light- scattering in the North Atlantic trade winds. *Nature* 380, 416–419.
- Maley, J., 1982. Dust, clouds, rain types and climatic variations in tropical north Atlantic. *Quaternary Research* 18, 1–16.
- Martin D., Bergametti G., Strauss B., 1990, On the use of the synoptic vertical velocity in trajectory model: validation by geochemical tracers, *Atmos. Environ.*
- Merril J. T., Black R., Avila L., 1985, Modelling atmospheric transport to the Marshall islands, *J. Geophys. Res.*
- Miller, R.L., Tegen, I., 1998. Climate response to soil dust aerosols. *Journal of Climate* 11, 3247–3267.
- Moulin, C., Guillard, F., Dulac, F. and Lambert, C.E., 1997, Long-term daily monitoring of Saharan dust load over ocean using Meteosat ISCCP-B2 data: 1. Methodology and preliminary results for 1983–1994 in the Mediterranean. *Journal of Geophysical Research*
- National Research Council, 2003, *Satellite observations of the Earth's Environment: Accelerating the Transition of Research to Operations*. Washington, DC: The National Academies Press.

- Nickovich S., 1996, Modelling of dust process for the Saharan and Mediterranean Area, Environmental Science and Technology Library
- Reiff J., Forbes G.S. Spieksma F.T., Reynders J.J., 1986, African dust reaching Northwestern Europe: a case study to verify trajectory calculations, J. Clim. Appl. Meteorol.
- Schollaert, S.E., Merrill, J.T., 1998. Cooler sea surface west of the Sahara Desert correlated to dust events. Geophysical Research Letters 25, 3529–3532.
- Schutz, L., Jaenicke, R., Pietrek, H., 1981. Saharan dust transport over the North Atlantic Ocean. In: Pewe, T.L. (Ed.), Desert Dust. Geological Society of America, Special Paper, vol. 186, pp. 87–100. Stortini M., 2006, La meteorologia e la diffusione degli inquinanti, ARPA SIM
- Swap, R., Ulanski, S., Cobbett, M., Garstang, M., 1996. Temporal and spatial characteristics of Saharan dust outbreaks. Journal of Geophysical Research 101 (D2.), 4205–4220.
- Xuelei Zhang, Lijing Zhao, Daniel Q. Tong, Guangjian Wu, Mo Dan and Bo Teng, 2016, A systematic Review of Global Desert Dust and Associated Human Health Effects, Atmosphere, 7, 158.

### 11.3 STUDIO DELL'IMPATTO DELLE ATTIVITÀ DI CAVA SULLA QUALITÀ DELL'ARIA: DUE CASI DI STUDIO

Corbella L, Gianelle V, Cuccia E, Dal Santo U, Colombi C, Algieri A.

ARPA LOMBARDIA

#### RIASSUNTO

L'impatto delle attività di cava sulla qualità dell'aria è legato prevalentemente al risollevarsi delle polveri, dovuto sia alle attività di coltivazione che al transito degli automezzi pesanti adibiti al trasporto del materiale estratto.

ARPA Lombardia per approfondire questa tematica ha svolto negli anni due campagne di monitoraggio della qualità dell'aria, la prima a Parabiago (MI) e la seconda a Rezzato (BS), due siti in prossimità di attività estrattive e di lavorazione del marmo.

Sui campioni di particolato raccolti nella campagna di Parabiago sono stati determinati i seguenti composti: componente elementale con  $Z > 11$  (ED-XRF), componente ionica (IC), idrocarburi policiclici aromatici (GC-MS). È stato inoltre installato un contatore ottico (OPC) ad alta risoluzione temporale in grado di determinare la concentrazione numerica delle particelle in funzione delle loro dimensioni e stimare così la frazione coarse, generalmente legata alla risospensione di polvere dal suolo.

Le concentrazioni medie giornaliere del  $PM_{10}$  hanno mostrato un andamento settimanale legato al transito dei veicoli pesanti: valori più alti nei giorni feriali e nette diminuzioni nei giorni festivi, indipendenti dalle condizioni meteorologiche in atto. Le concentrazioni delle particelle più fini non hanno evidenziato differenze sostanziali nei giorni festivi rispetto a quelli feriali, mentre la frazione coarse mostra solo nei giorni feriali pronunciati incrementi nelle ore di punta del traffico alla cava. Tali differenze si osservano anche nella composizione chimica; il contributo degli elementi terrigeni, ad esempio, passa dal 30% della massa totale del  $PM_{10}$  nei giorni festivi al 58% nei giorni lavorativi.

Nel caso di Rezzato, la locale centralina della Rete Regionale di rilevamento della Qualità dell'Aria (RRQA)

di ARPA Lombardia misura mediamente concentrazioni di  $PM_{10}$  superiori a quelle rilevate presso le altre stazioni della rete, comprese quelle della vicina città di Brescia. Si è quindi deciso di condurre una campagna di approfondimento che ha visto lo studio della composizione chimica del  $PM_{10}$  (componente carboniosa, componente elementale  $Z > 11$  e componente ionica). Particolare attenzione è stata posta alla concentrazione di carbonato di calcio ( $CaCO_3$ ), che è stata calcolata misurando il calcio (Ca) con la tecnica ED-XRF ed il carbonio presente sotto forma di carbonato con la tecnica TOR/TOT. Il contributo del carbonato di calcio, così misurato, è risultato essere in media il 24% del  $PM_{10}$ .

Il dataset di speciazione chimica è stato inoltre elaborato attraverso l'applicazione di PMF5 dell'US-EPA e l'andamento del fattore  $CaCO_3$  risolto dalla PMF è risultato in ottimo accordo, sia negli andamenti che nei valori assoluti, con le concentrazioni di  $CaCO_3$  ricavato dalle misure dando coerenza ai due approcci.

**Parole chiave:**  $PM_{10}$ , cava, risollevarsi, composizione chimica, carbonato di calcio

#### ABSTRACT

The impact of quarry activities on air quality is mainly linked to the resuspension of dust, due to both the cultivation activities and the transit of heavy vehicles used for the transport of the extracted material.

Over the years, ARPA Lombardia carried out two air quality monitoring campaigns: a first one in Parabiago (MI) and a second one in Rezzato (BS), two sites near quarrying and marble processing activities.

The following compounds were determined on the particulate samples collected in the Parabiago campaign: elemental component with  $Z > 11$  (ED-XRF), ionic

component (IC) and polycyclic aromatic hydrocarbons (GC-MS).

A high temporal resolution optical particle counter (OPC) has also been installed, in order to determine the numerical concentration of the particles according to their size and thus estimate the coarse fraction, generally linked to the resuspension of dust from the ground.

The PM<sub>10</sub> daily mean concentrations showed a weekly trend linked to the transit of heavy vehicles: higher values on working days and sharp decreases on holidays, independent of the current weather conditions. The concentrations of the finest particles did not show substantial differences on holidays compared to weekdays, while the coarse fraction showed marked increases only in weekdays in peak hours of traffic at the quarry. These differences are also observed in the chemical composition; the contribution of the terrigenous elements, for example, goes from 30% of the total mass of PM<sub>10</sub> on holidays to 58% on working days.

In the case of Rezzato, the local control unit of ARPA Lombardia measures on average PM<sub>10</sub> concentrations higher than those detected at the other stations of the network of Lombardy, including those of the nearby city of Brescia. It was therefore decided to conduct an in-depth campaign which included the study of the chemical composition of PM<sub>10</sub> (carbon component, elemental component Z>11 and ionic component). Particular attention was paid to the concentration of calcium carbonate (CaCO<sub>3</sub>), which was calculated by measuring calcium (Ca) with the ED-XRF technique and the carbon present in the form of carbonate with the TOR/TOT technique. The contribution of calcium carbonate, thus measured, was on average 24% of PM<sub>10</sub>.

The chemical speciation dataset was also elaborated through the application of PMF5 of the US-EPA and the trend of the CaCO<sub>3</sub> factor solved by PMF was in excellent agreement, both in trends and in absolute values, with the concentrations of CaCO<sub>3</sub> obtained from the measures giving coherence to the two approaches.

**Keywords:** PM<sub>10</sub>, cava, resuspation, chemical composition, calcium carbonate

## Introduzione

La Lombardia è la prima regione italiana per numero di aree destinate all'industria estrattiva e per quantità di minerali estratti da cave; sul territorio lombardo sono presenti 466 cave attive, ovvero circa il 10% di quelle italiane e nel 2017 sono state estratte più di 22,6 milioni di tonnellate di minerali, pari al 14,4% del totale nazionale (Istat 2019). Le problematiche ambientali legate alle attività estrattive sono sia di carattere temporaneo che permanente. Fra le pressioni temporanee emerge il potenziale peggioramento della qualità dell'aria. L'impatto delle attività di cava sulla qualità dell'aria è legato prevalentemente al risollevarimento delle polveri, dovuto sia alle lavorazioni che al transito degli automezzi pesanti adibiti al trasporto del materiale estratto.

ARPA Lombardia ha svolto due campagne di monitoraggio della qualità dell'aria con lo scopo di indagare e valutare l'impatto di tali attività sul territorio: la prima nel 2009 a Parabiago (MI) e la seconda nel 2017 a Rezzato (BS), due siti in prossimità di attività estrattive e di lavorazione del marmo. Queste due campagne hanno affrontato il tema tramite due approcci diversi: a Parabiago, mediante l'utilizzo di un contatore ottico di particelle, è stata isolata e studiata la frazione grossolana del PM<sub>10</sub>, legata principalmente a processi di formazione di tipo meccanico e quindi al risollevarimento delle polveri dal suolo. A Rezzato invece particolare attenzione è stata posta alla concentrazione di carbonato di calcio, che è stata calcolata sia a partire dai dati analitici sia tramite l'applicazione di tecniche di source apportionment.

## Parabiago

### Metodi

Dal 3 marzo al 7 aprile 2009, è stata realizzata a Parabiago una campagna di misura con un laboratorio mobile, dotato di strumentazione per il rilevamento in continuo di biossido di zolfo (SO<sub>2</sub>), ossidi di azoto (NO<sub>x</sub>), monossido di carbonio (CO), ozono (O<sub>3</sub>) e di un campionatore sequenziale per la determinazione della concentrazione media giornaliera di PM<sub>10</sub> con metodo

gravimetrico, posizionato a circa 30 m dall'imbocco con la strada privata che conduce alla cava (sito A); contemporaneamente è stato installato un secondo campionatore di PM<sub>10</sub> distante circa 350 m in direzione Nord dal sito A, non direttamente sottoposto all'influenza delle attività di cava ma comunque a tutte le altre sorgenti come riferimento di fondo (sito B).

Sui campioni di particolato raccolti sono stati determinati i seguenti composti: componente elementale con Z>11 (ED-XRF), componente ionica (IC), idrocarburi policiclici aromatici (GC-MS). Inoltre, al fine di ottenere informazioni più specifiche circa l'origine e le caratteristiche del particolato misurato nel sito A, è stato anche installato un Optical Particle Counter (OPC - Grimm mod.107) in grado di determinare la concentrazione numerica delle particelle in funzione delle loro dimensioni.

#### Risultati

Entrambi i campionatori di PM<sub>10</sub> sono rimasti in funzione dal 4 marzo al 6 aprile.

Le misure di fondo ambientale (sito B) mostrano una concentrazione media sul periodo di 46 µg/m<sup>3</sup> con un valore massimo giornaliero di 107 µg/m<sup>3</sup>, misurato il 15 marzo. L'andamento giornaliero delle concentrazioni è confrontabile con quanto rilevato dalla relativamente

vicina centralina di Magenta e lievemente superiore alla media dei valori rilevati dagli analizzatori automatici installati nelle cabine di Milano (via Pascal, Verziere e via Senato). I superamenti del valore limite giornaliero per la protezione della salute umana (50 µg/m<sup>3</sup>) in questo periodo sono stati 10, e le concentrazioni di PM<sub>10</sub> sono nettamente diminuite in coincidenza dei rinforzi di vento o di eventi piovosi.

Le concentrazioni di PM<sub>10</sub> misurate invece nel sito A hanno espresso un valore medio sul periodo di 94 µg/m<sup>3</sup> ed un massimo giornaliero di 249 µg/m<sup>3</sup> rilevato il giorno 17 marzo. I giorni di superamento del valore limite normativo sono stati 25 sui 34 di misura. Dalla Figura 11.3.1 appare evidente come la concentrazione media sul periodo e il numero di superamenti osservati presso il sito B di Parabiago siano del tutto confrontabili con quelli rilevati nelle postazioni di confronto, mentre presso il sito A i valori siano significativamente più elevati.

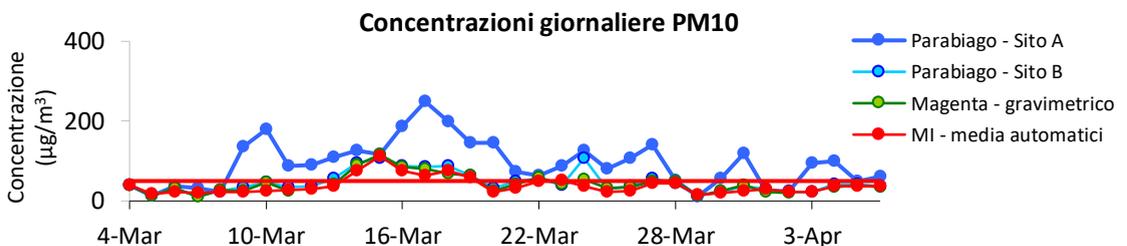


Figura 11.3.1. Concentrazioni medie giornaliere di PM<sub>10</sub> a Parabiago e in alcune stazioni della RRQA nel periodo di misura.

L'OPC utilizzato in questa campagna è uno strumento in grado di contare le particelle con dimensioni superiori a 0,25 µm e classificarle in 31 classi dimensionali. Dal numero delle particelle per ogni classe dimensionale, facendo ipotesi sulla densità delle particelle, sono state

calcolate le concentrazioni di massa del  $PM_{10}$ , del  $PM_{2,5}$  e del  $PM_1$  contemporaneamente e con risoluzione temporale oraria.

In Figura 11.3.2 si riportano a confronto le concentrazioni di massa ( $C_{massa}$ ) rilevate dai campionatori gravimetrici e quelle stimate con l'OPC. Il confronto mostra un'ottima corrispondenza tra le concentrazioni determinate dai due sistemi per quanto riguarda il  $PM_{10}$ . I giorni in cui si ha l'abbattimento di  $PM_{10}$  sono giorni di pioggia; i fenomeni ventosi non hanno invece influito sulla massa di  $PM_{10}$ ,

fatta eccezione per la relativa diminuzione del giorno 25 marzo in cui però la media giornaliera si è mantenuta comunque sopra i limiti ( $79 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

In Figura 11.3.3 sono riportati gli andamenti del giorno tipo di  $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$ ,  $PM_1$  e frazione "coarse" ( $PM_{10}-PM_{2,5}$ ) calcolati sull'intero periodo, per i giorni feriali e per le domeniche.

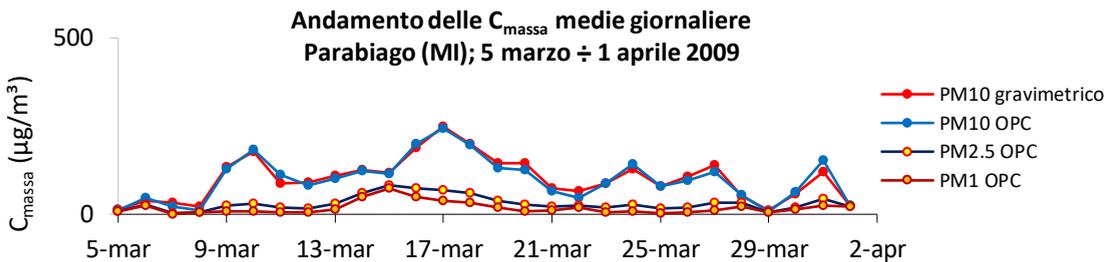


Figura 11.3.2. Concentrazioni medie giornaliere di  $PM_{10}$  misurate con metodo gravimetrico e calcolo delle concentrazioni medie giornaliere dalle misure dell'OPC per il  $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$  e  $PM_1$ .

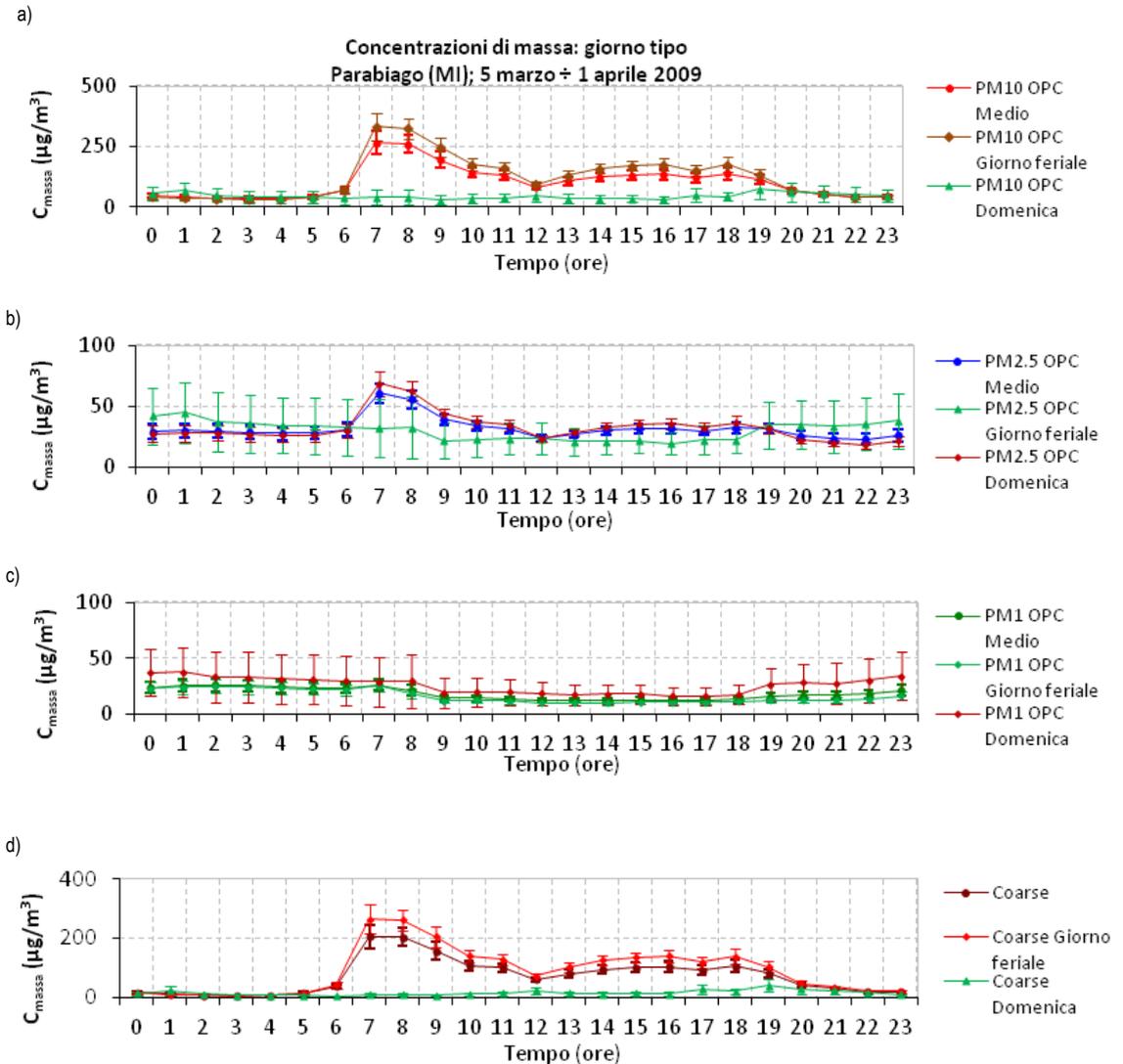


Figura 11.3.3. Giorno tipo delle concentrazioni di massa ricavate dall'OPC: PM<sub>10</sub> (a), PM<sub>2.5</sub> (b), PM<sub>1</sub> (c) e frazione coarse (d).

L'andamento temporale della frazione coarse mostra due picchi uno intorno alle 8 del mattino e uno alle 16-18, in corrispondenza delle ore di punta del traffico; tale tendenza non si riproduce nel giorno tipo festivo, cioè la

domenica, principalmente per la mancanza di una sorgente antropica specifica. Le particelle che appartengono al PM<sub>10</sub> ma non al PM<sub>2.5</sub>, ovvero quelle della cosiddetta frazione "coarse" o grossolane, sono

generalmente di origine meccanica (prevalentemente risospensione di polvere dal suolo per azione del vento o per la turbolenza generata dai veicoli sulla pavimentazione stradale). Dai grafici è evidente il diverso comportamento della frazione fine ( $PM_{10}$ ) rispetto, soprattutto, alla frazione “coarse”. Infatti, mentre le concentrazioni di  $PM_{10}$  non cambiano sostanzialmente nei giorni festivi rispetto a quelli feriali, e il loro livello nel corso delle 24 ore è essenzialmente modulato dal variare delle capacità dispersive dell’atmosfera, la frazione delle particelle grossolane mostra pronunciati incrementi nelle ore di punta del traffico, soprattutto la mattina. Inoltre, si osserva nel giorno tipo festivo, ovvero la domenica, un abbattimento della concentrazione causato principalmente dalla mancanza di una sorgente antropica specifica.

Per valutare eventuali fenomeni di trasporto di particelle in relazione alle loro dimensioni, sono state costruite le rose di inquinamento per tre gruppi dimensionali individuati tramite l’analisi a cluster applicata al set di dati di concentrazione numerica delle particelle, ovvero 0,25-0,70  $\mu m$ , 0,70-10  $\mu m$  e il terzo cluster costituito dalle particelle con dimensioni superiori a 10  $\mu m$ . Per ogni cluster dimensionale sono state calcolate le concentrazioni numeriche medie associate alla direzione del vento classificata in otto settori (Figura 11.3.4). Per la direzione del vento si sono considerati i dati rilevati dalla stazione di Arconate.

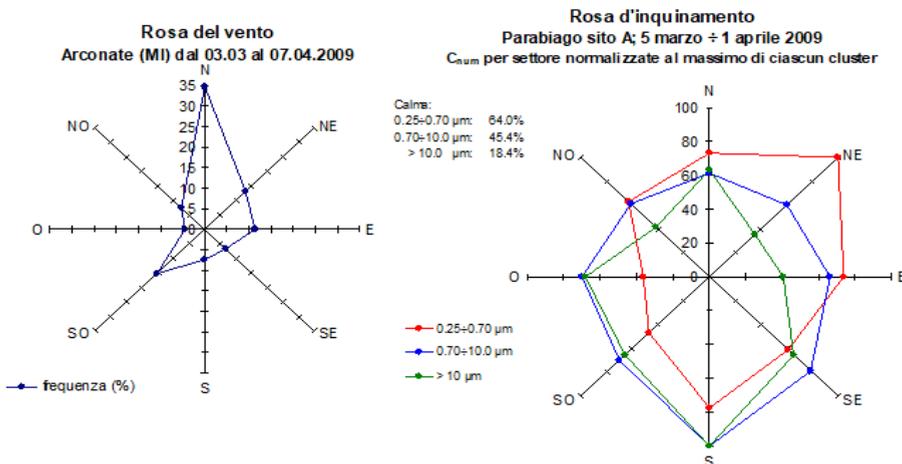


Figura 11.3.4. Grafici della rosa del vento (a sinistra) e della rosa dell’inquinamento (a destra)..

Fatta eccezione per le particelle più fini, la rosa relativa alle altre due classi dimensionali è omogenea ma con un’anisotropia sulla direzione sud, che indica un incremento delle concentrazioni delle frazioni con diametro maggiore di 0,7  $\mu m$  con vento proveniente da sud. È da considerare che lo strumento era effettivamente installato a nord della strada che conduce alla cava. Questo tipo di elaborazione dimostra come la

concentrazione di particolato maggiore nel sito A dipende essenzialmente da particelle della frazione coarse, prodotte da una sorgente locale mentre quelle fini (submicrometriche) hanno un comportamento spazialmente più omogeneo a causa della diffusione di inquinamento da tutto il bacino padano.

*Composizione chimica del particolato*

Per poter ricostruire la composizione chimica del particolato atmosferico sono state svolte diverse analisi sui filtri campionati a Parabiago; analisi in spettrometro in fluorescenza X (XRF) per la determinazione della frazione elementare con  $Z > 11$ , analisi in cromatografia ionica per la determinazione di anioni e cationi e analisi in gas-cromatografia per la determinazione di idrocarburi policiclici aromatici.

La determinazione degli elementi con numero atomico  $Z > 11$  ha permesso di valutare il contributo degli elementi legati al risollevarimento del suolo (elementi terrigeni) rispetto a tutti i restanti elementi disponibili (non terrigeni): il contributo dei terrigeni nel sito A passa dal 30% della massa totale nei giorni festivi al 58% nei giorni lavorativi mentre nel sito B dal 18% dei giorni festivi al 31% dei giorni lavorativi.

La componente ionica è fondamentale nella valutazione dell'importanza del contributo delle sorgenti da combustione (autoveicoli e riscaldamento) e della componente secondaria. Tra i composti solubili solfati, nitrati e ammonio sono gli ioni maggioritari. Nel particolato atmosferico questi ioni sono presenti principalmente come solfato d'ammonio e nitrato d'ammonio, i quali si formano in atmosfera a partire prevalentemente dalla reazione dell'ammoniaca, emessa soprattutto da attività agricole e dagli allevamenti, con gli ossidi di azoto e di zolfo.

La valutazione del nitrato d'ammonio e del solfato d'ammonio nel  $PM_{10}$  permette quindi la stima del contributo della componente secondaria inorganica del

particolato, meno correlata alle sorgenti strettamente locali e diffusa uniformemente sul territorio.

Si osserva che, a differenza degli elementi terrigeni, le componenti ioniche sono pressoché equivalenti nei due siti.

La determinazione degli Idrocarburi Policiclici Aromatici (IPA), è importante nella valutazione dell'emissione degli autoveicoli pesanti: sebbene sulla massa totale del  $PM_{10}$  il loro contributo è comunemente molto basso ( $0,003 \mu\text{g}/\text{m}^3$  e  $0,001 \mu\text{g}/\text{m}^3$  rispettivamente per il sito A e il sito B), la differenza tra le concentrazioni misurate nei due siti può essere considerata una misura indiretta del contributo degli autoveicoli pesanti.

#### *Chiusura di massa del $PM_{10}$*

Con l'insieme delle specie determinate analiticamente è stato possibile effettuare la chiusura di massa del  $PM_{10}$ , cioè la ricostruzione della composizione chimica del particolato atmosferico.

In Figura 11.3.5, si riportano le torte di chiusura di massa riferite alla campagna di Parabiago, per i siti A e B, sia come media del periodo di indagine, sia facendo una distinzione tra giorni lavorativi e giorni festivi. La parte di massa non determinata è dovuta, in particolare, alla mancanza di una componente fondamentale rappresentata dalla materia organica, che in questo contesto non è stata analizzata e, secondariamente, alla presenza di goccioline d'acqua derivanti da residui di umidità, oltre che da altre componenti minoritarie.

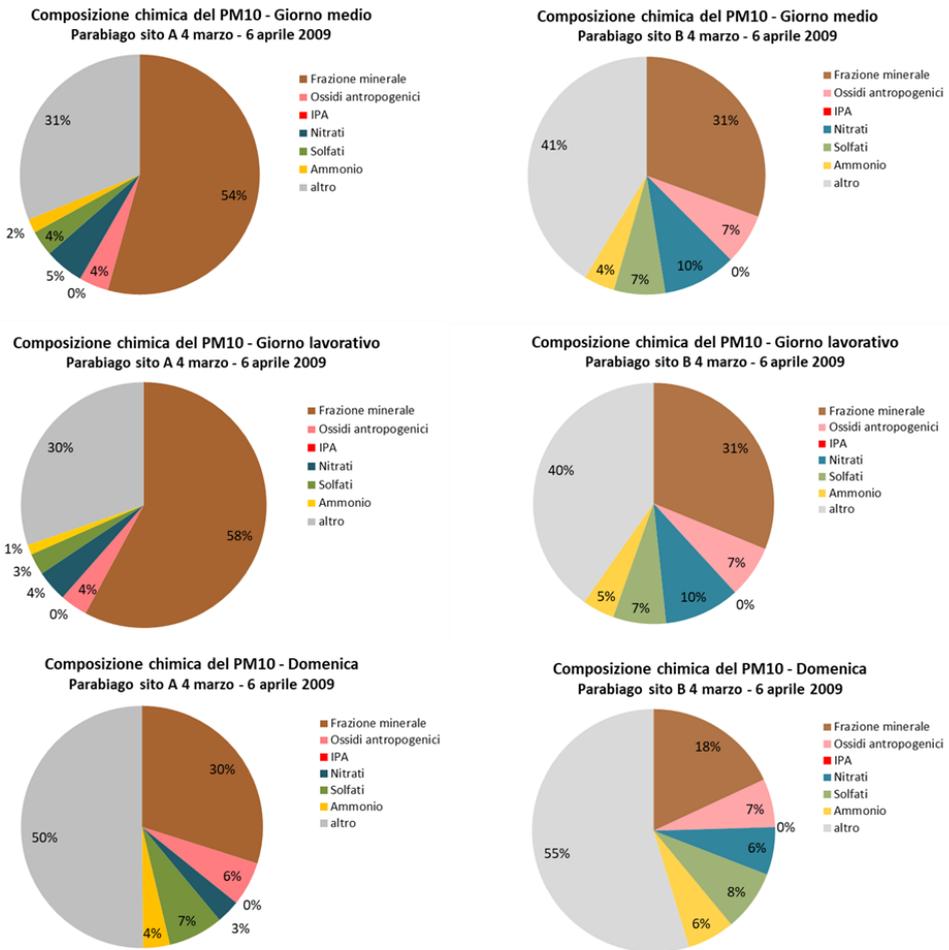


Figura 11.3.5. Torte di composizione della concentrazione media del PM<sub>10</sub> nei due siti elaborate per il periodo medio e i giorni tipo: lavorativo e la domenica.

Appare evidente la differenza tra i due siti di misura, a conferma di quanto emerso dallo studio dei dati ricavati dall'OPC. Nel punto A, situato in prossimità della cava, la componente maggioritaria risulta essere la materia cristallina, legata alla risospensione dal suolo; ciò è attribuibile al passaggio dei mezzi pesanti ed alle attività connesse alla presenza della cava. Al contrario le

componenti dovute alle altre attività antropiche risultano equivalenti nei due siti. La componente risospensione del suolo nel giorno festivo del sito A, essendo nulle le attività connesse alla sorgente locale, è pari a quella nel giorno lavorativo del sito B, nel quale, la domenica, questa componente si riduce ulteriormente. Questo comportamento suggerisce da parte delle attività

estrattive una possibile influenza anche sulla qualità dell'aria nel sito B, seppure in misura molto minore rispetto al sito A.

## Rezzato

### Metodi

L'approfondimento in merito alle cave presenti a Rezzato si è reso necessario in quanto poco distante dalle cave e anche da un impianto di frantumazione del marmo si trova la centralina di Rezzato facente parte della Rete Regionale di rilevamento della Qualità dell'Aria (RRQA) di ARPA Lombardia, di classificazione suburbana industriale, posta al confine dell'agglomerato residenziale. Spesso le concentrazioni di  $PM_{10}$  misurate a Rezzato sono superiori rispetto a quelle mediamente rilevate presso altre postazioni della RRQA Lombardia, ed in particolare rispetto a quelle misurate presso la vicina città di Brescia. Negli ultimi mesi del 2017 è stata condotta a Rezzato (BS) una campagna di approfondimento, svoltasi in due periodi, dal 5/09/2017 al 06/10/2017 e dal 20/11/2017 al 26/12/2017 per approfondire lo studio della composizione chimica del  $PM_{10}$ .

Sui campioni di  $PM_{10}$  sono state eseguite le analisi per la determinazione della componente elementale e della componente ionica, come fatto a Parabiago. In aggiunta, a Rezzato sono state determinate le concentrazioni della componente carboniosa tramite tecnica termo-ottica a

riflessione/trasmmissione - TOR/TOT. Particolare attenzione è stata posta alla determinazione del carbonato di calcio, calcolata dalla concentrazione di calcio ottenuta con la tecnica ED-XRF e da quella del carbonio carbonatico misurata con la tecnica TOR/TOT.

La tecnica TOR/TOT permette di misurare il carbonio carbonatico, in quanto quest'ultimo evolve nel quarto step di temperatura, nella fase in atmosfera inerte, ad una temperatura superiore ai  $750^{\circ}$  (Birch and Cary, 1996); durante l'analisi il campione è infatti sottoposto a diversi step di temperatura che comportano l'evoluzione dei diversi composti carboniosi presenti nel campione; all'evoluzione delle classi dei vari composti corrisponde la presenza di alcuni picchi nel termogramma, denominati per il carbonio organico OC1, OC2, OC3 e OC4. Le concentrazioni del carbonio organico evoluto nella quarta rampa di temperatura della fase inerte (OC4) misurate a Rezzato sono state confrontate con quelle misurate, nello stesso periodo, nella città di Milano (Milano via Pascal, sito di fondo urbano in zona città studi a Milano, di seguito indicato MI-Pascal). Dal confronto effettuato emerge che l'OC4 è presente in concentrazioni significativamente maggiori a Rezzato rispetto a MI-Pascal. Analogamente all'OC4, anche il Ca risulta essere presente a Rezzato in concentrazioni più elevate rispetto a MI-Pascal (Figura 11.3.6).

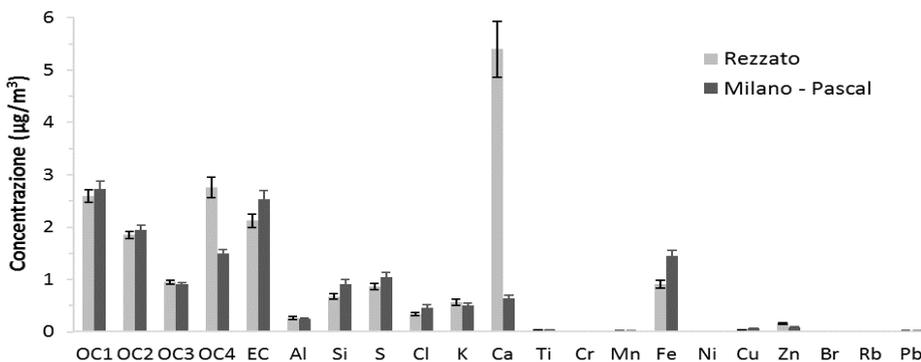


Figura 11.3.6. Confronto tra le concentrazioni medie delle diverse frazioni di OC, dell'EC e degli elementi misurati a Milano - Pascal e a Rezzato durante i due periodi di misura.

Come mostrato in Figura 11.3.7, il Ca e l'OC4 presentano una buona correlazione in entrambe le stagioni; tale correlazione si perde se si considera l'OC nel suo complesso.

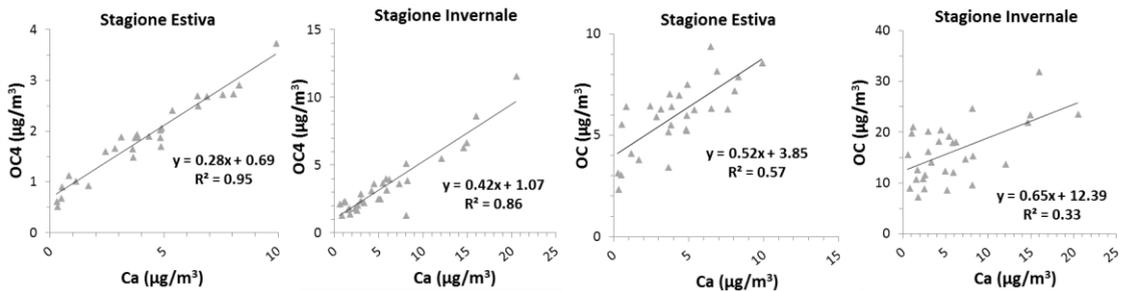


Figura 11.3.7. Correlazione tra le concentrazioni di Ca e OC4 e tra Ca e OC misurati a Rezzato durante i due periodi di misura.

Sia dall'intercetta significativamente non nulla presente nella correlazione tra Ca e OC4, sia dal confronto delle concentrazioni medie di OC4 a MI-Pascal e a Rezzato, emerge che non tutto il carbonio che evolve nella quarta rampa di temperatura della fase inerte (OC4) è in forma di carbonato (CO<sub>3</sub>).

Per determinare le concentrazioni di carbonato di calcio si è quindi reso necessario sottrarre alle concentrazioni di OC4 la frazione di carbonio non carbonatico.

La determinazione del carbonato (Figura 11.3.8) è stata quindi effettuata stimando la componente di OC4 non

carbonatica a partire dai rapporti tra le quattro classi di OC in un sito che si ipotizza non essere influenzato da particolari sorgenti di carbonato, come MI-Pascal.

Anche il Ca a Rezzato è composto da una parte terrigena ed una parte legata invece al CaCO<sub>3</sub> che devono essere opportunamente separate. La componente di Ca terrigena è stata calcolata a partire dalla concentrazione di silicio tenendo conto della correlazione tra Ca e Si misurata a MI-Pascal.

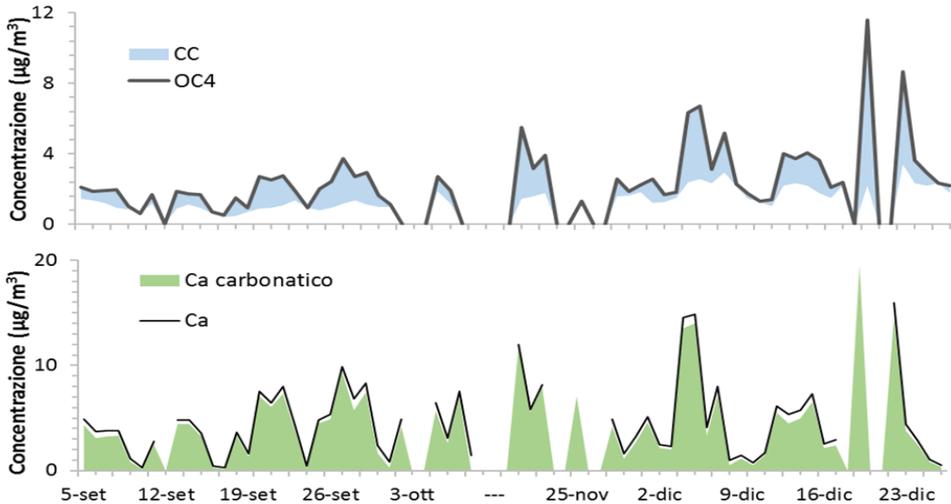


Figura 11.3.8. Andamento giornaliero delle concentrazioni di OC4 e di CC e di Ca carbonatico e Ca totale a Rezzato.

Poiché la tecnica TOR/TOT misura la massa del solo carbonio associato al carbonio carbonatico (CC), quest'ultima è stata trasformata in massa di  $\text{CO}_3$  tenendo conto dell'ossigeno.

Gli andamenti delle concentrazioni di Ca carbonatico e di  $\text{CO}_3$ , così determinate, mostrano, in Figura 11.3.9, un buon accordo tra loro.

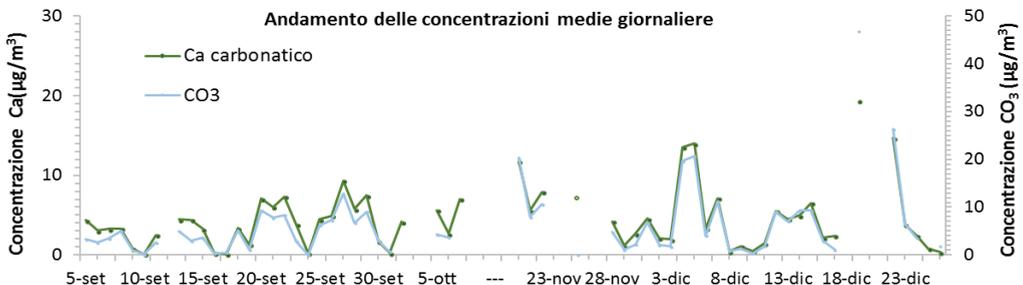


Figura 11.3.9. Andamento giornaliero delle concentrazioni di Ca carbonatico e di  $\text{CO}_3$  a Rezzato

Questa procedura ha permesso di determinare le concentrazioni giornaliere di  $\text{CaCO}_3$  a Rezzato. Tali concentrazioni spiegano le differenze di concentrazione tra il  $\text{PM}_{10}$  misurato a Rezzato e quello misurato nella

provincia di Brescia. Il carbonato di calcio presenta una netta diminuzione delle concentrazioni nel weekend ed è quindi da collegarsi alla movimentazione del materiale proveniente da alcune specifiche attività della zona.

### Chiusura di massa del PM<sub>10</sub>

In Figura 11.3.10 sono rappresentate le torte di composizione chimica determinate per Rezzato, sia come media totale che distinte tra i due periodi di misura.

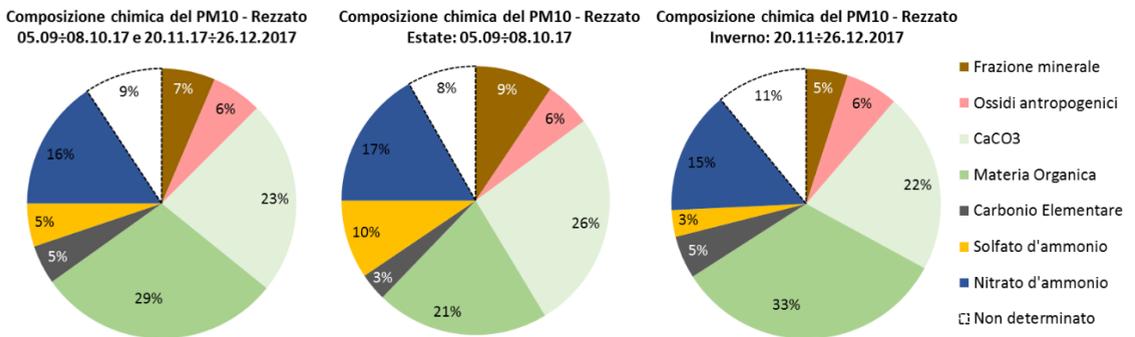


Figura 11.3.10. Caratterizzazione chimica media del PM<sub>10</sub>, nell'intero periodo e nei due periodi, estivo e invernale.

Nel periodo estivo i costituenti principali del PM<sub>10</sub> risultano essere le componenti secondarie (30% di cui 19% di nitrato d'ammonio e 4% di solfato d'ammonio). Durante l'inverno i costituenti principali del PM<sub>10</sub> risultano essere la componente organica (29%), legata in questa stagione soprattutto al traffico veicolare ed alla combustione della legna per il riscaldamento domestico, e il nitrato d'ammonio (19%), favorito dalle particolari condizioni atmosferiche, come genericamente si riscontra in tutto il territorio lombardo. Alle sorgenti tipiche si aggiunge, in entrambe le stagioni, il contributo del carbonato di calcio, il quale rappresenta il 30% della

massa del PM<sub>10</sub> durante la campagna invernale e il 27% durante la campagna estiva.

Come osservato a Parabiago, anche a Rezzato si evidenzia la presenza di una sorgente antropica specifica, ovvero l'attività estrattiva: il contributo del carbonato di calcio, infatti, presenta una netta diminuzione delle concentrazioni nel weekend, quando si hanno meno attività legate alla movimentazione ed al trasporto dei materiali nella cava (Figura 11.3.11).

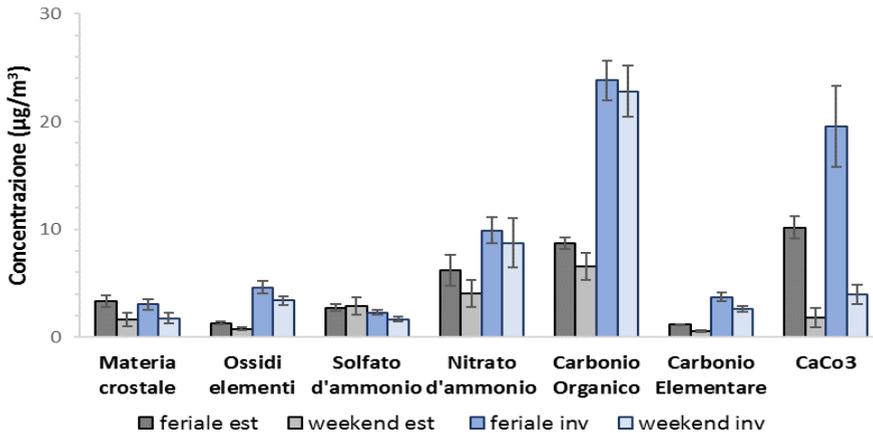


Figura 11.3.11. Concentrazioni medie, in valore assoluto, delle principali componenti del PM<sub>10</sub> nei giorni lavorativi e nel weekend, rispettivamente nel periodo estivo ed invernale.

### Analisi di Source Apportionment del PM<sub>10</sub>

Il dataset di speciazione chimica ottenuto per il sito di Rezzato è stato ulteriormente elaborato attraverso l'applicazione di tecniche di source apportionment, che permettono una valutazione anche quantitativa del contributo delle sorgenti, primarie e secondarie, alle concentrazioni di PM rilevate.

È stato applicato il modello a recettore multivariato PMF, nella sua ultima versione PMF5, sviluppato dall'agenzia ambientale americana (U.S. Environmental Protection Agency).

L'applicazione di PMF al database mostra sostanzialmente l'identificazione di sette fattori, che sono stati denominati: Traffico, Solfato Secondario Organico (SSO), Cloruri, Combustione di Biomassa, Suolo, Nitrito Secondario e CaCO<sub>3</sub>. In particolare, Solfato e Nitrito fanno riferimento alla formazione del particolato secondario inorganico, Cloruri si riferisce alla sorgente marina, Suolo alla componente naturale della risospensione di polveri e CaCO<sub>3</sub> tiene conto del carbonato di calcio presente nella zona sia per erosione

diretta del materiale della cava, sia per movimentazione e trasporto del materiale nella cava e nel vicino cementificio e risollevarlo da parte dei mezzi che lo trasportano.

In Figura 11.3.12 è mostrato il contributo dei diversi fattori alla massa del PM<sub>10</sub> nei due periodi considerati. Durante il periodo estivo il 15% della massa del PM<sub>10</sub> è attribuita al traffico (4,8 µg/m<sup>3</sup>), il 45% al secondario (28% e 8,7 µg/m<sup>3</sup> SSO, 17% e 5,2 µg/m<sup>3</sup> nitrito secondario), il 27% al CaCO<sub>3</sub> (8,5 µg/m<sup>3</sup>), il 13% al risollevarlo di polvere dal suolo (4,0 µg/m<sup>3</sup>) e meno dell'1% ai cloruri (0,1 µg/m<sup>3</sup>). Durante il periodo invernale il 16% della massa del PM<sub>10</sub> è attribuita al traffico (10,5 µg/m<sup>3</sup>), il 24% al secondario (7% e 4,5 µg/m<sup>3</sup> SSO, 17% e 11,6 µg/m<sup>3</sup> nitrito secondario), il 25% al CaCO<sub>3</sub> (16,7 µg/m<sup>3</sup>), il 7% al risollevarlo di polvere dal suolo (4,9 µg/m<sup>3</sup>) e meno dell'1% ai cloruri (0,4 µg/m<sup>3</sup>). Durante la stagione invernale, a dar conto della massa del PM<sub>10</sub>, si aggiunge anche la combustione di biomassa, che ne spiega il 28% (18,7 µg/m<sup>3</sup>).

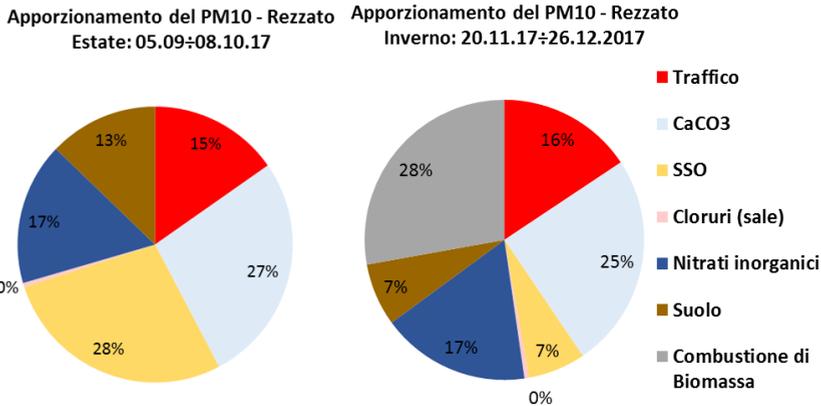


Figura 11.3.12. Contributi delle diverse sorgenti alla massa del PM<sub>10</sub>, rispettivamente per il periodo estivo ed invernale.

La PMF permette di risolvere l'andamento giornaliero della concentrazione di CaCO<sub>3</sub> nei due periodi. Questo andamento è stato confrontato con l'andamento del CaCO<sub>3</sub> ricavato a partire dalle concentrazioni di Ca e OC4 misurate. I due andamenti trovati confermano la coerenza dei due approcci utilizzati (Figura 11.3.13) e, in

particolare, confermano la validità del calcolo precedentemente effettuato per la determinazione dell'OC4 non carbonatico.

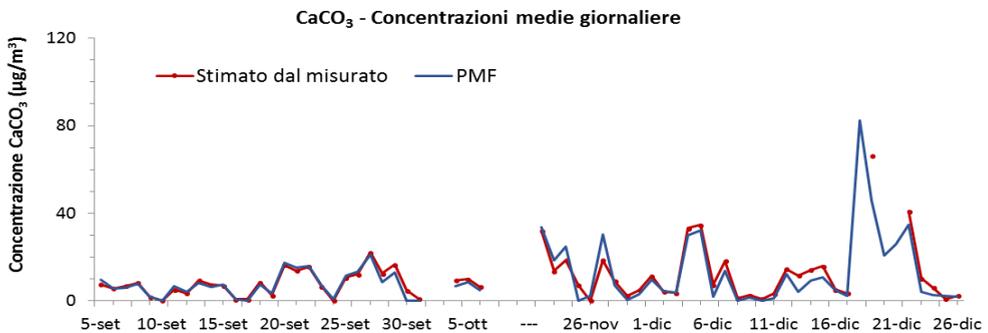


Figura 11.3.13. Andamento giornaliero delle concentrazioni di CaCO<sub>3</sub> ricostruito dalla PMF e ricavato dalle misure analitiche.

## Conclusioni

Le campagne di monitoraggio svolte a Parabiago e a Rezzato hanno confermato entrambe la rilevanza dell'impatto delle attività estrattive sulla qualità dell'aria. A Parabiago il  $PM_{10}$  misurato nel sito prossimo alla cava mostra in generale valori medi giornalieri molto alti e significativamente superiori rispetto a tutte le altre centraline della provincia. Le concentrazioni delle particelle più fini ( $PM_1$ ) non hanno evidenziato differenze sostanziali nei giorni festivi rispetto a quelli feriali, mentre la frazione coarse mostra solo nei giorni feriali pronunciati incrementi nelle ore di punta del traffico alla cava. Tali differenze si osservano anche nella composizione chimica; il contributo degli elementi terrigeni, ad esempio, passa nel sito A dal 30% della massa totale del  $PM_{10}$  nei giorni festivi al 58% nei giorni lavorativi mentre nel sito B dal 18% dei giorni festivi al 31% dei giorni lavorativi.

A livello regionale i valori di concentrazione media giornaliera di  $PM_{10}$  misurati nella cabina di Rezzato

risultano tra i maggiori delle stazioni della RRQA. Lo studio della composizione chimica del  $PM_{10}$  ha permesso di far emergere la presenza del carbonato di calcio che spiega le differenze di concentrazione tra il  $PM_{10}$  misurato a Rezzato e quello misurato nella provincia di Brescia. Il carbonato di calcio spiega in media il 23% del  $PM_{10}$  di Rezzato.

L'analisi di source apportionment applicata al database conferma il contributo di diverse categorie di sorgenti in proporzioni simili a quanto si trova comunemente in altri centri urbani, con l'aggiunta di una categoria di sorgente specifica legata alle attività di estrazione e di movimentazione dei materiali di cava. L'andamento giornaliero della concentrazione di  $CaCO_3$  risolto dalla PMF è stato confrontato con l'andamento del  $CaCO_3$  ricavato a partire dalle concentrazioni di Ca e carbonio carbonatico misurate. La compatibilità dei due andamenti conferma la coerenza dei due approcci utilizzati.

**Bibliografia**

- Birch M. E. & Cary R. A. (1996) Elemental Carbon-Based Method for Monitoring Occupational Exposures to Particulate Diesel Exhaust, *Aerosol Science and Technology*, 25:3, 221-241, DOI: 10.1080/02786829608965393
- EPA Positive Matrix Factorization 5.0 Fundamentals and User Guide
- Paatero, P. (1998). User's guide for positive matrix factorization programs PMF2 and PMF3 Part 1: Tutorial. prepared by University of Helsinki, Helsinki, Finland.
- Statistiche report. Attività estrattive da cave e miniere-AnNO<sub>2</sub>017. Istat, 2019

## 11.4 MONITORAGGI AEROPORTUALI: DODICI ANNI DI ESPERIENZE AFFRONTATE DA ARPA LOMBARDIA

Colombi C., Algieri A., Corbella L., Cuccia E., Dal Santo U., Carroccio L., De Martini A., Gianelle V.

### ARPA LOMBARDIA

#### RIASSUNTO

L'interesse per le emissioni di inquinanti atmosferici da parte di aerei e aeroporti ha avuto inizio negli anni '70, in concomitanza con l'aumento del traffico aereo commerciale. In effetti, le emissioni degli aeromobili possono produrre inquinanti atmosferici come ossidi di azoto, idrocarburi, monossido di carbonio e PM, che a loro volta possono comportare problemi ambientali più ampi, relativi all'ozono a livello del suolo e ai cambiamenti climatici e presentare potenziali rischi alla salute pubblica e all'ambiente. Dagli anni '90 sono stati apportati miglioramenti significativi per quanto riguarda l'efficienza dei motori e dei carburanti degli aerei e altri miglioramenti tecnici studiati per ridurre le emissioni. Tuttavia, gli aeromobili sono solo una delle diverse fonti di emissioni in un aeroporto.

Nell'ambito delle attività di monitoraggio, molteplici sono state le occasioni nelle quali ARPA Lombardia si è occupata di effettuare approfondimenti in merito alla qualità dell'aria (QA) nei dintorni di aeroporti, in particolare Milano-Malpensa (VA) e Bergamo-Orio al Serio (BG). Tali approfondimenti, una decina dal 1999 a Malpensa e oltre venti a Orio al Serio a partire dal 2003, sono stati effettuati per soddisfare richieste pervenute dal territorio circostante che nascevano sostanzialmente dalla volontà di comprendere l'impatto delle emissioni aeroportuali e delle attività ad esse connesse sulla QA e, in particolare, comprendere sia l'eventuale esistenza di composti emessi potenzialmente tossici (ad esempio Idrocarburi Policiclici Aromatici, IPA e Composti Organici Volatili, COV) che un aumento sostanziale delle polveri emesse come PM<sub>10</sub>.

In generale, sebbene sia possibile che i livelli di questi inquinanti nelle aree adiacenti gli aeroporti o all'interno del sedime aeroportuale, siano superiori rispetto alle aree più lontane, tuttavia, essi non sono

apprezzabilmente differenti rispetto agli ambienti urbani. In molti casi, inoltre, è estremamente difficile l'individuazione della sorgente specifica aeroportuale rispetto all'emissione di sorgenti non-aeroportuali, come l'emissione veicolare o una sorgente di combustione stazionaria. Queste considerazioni, note in letterature specifiche (Federal Aviation Administration) e anche maturate a seguito dei vari monitoraggi effettuati, sottolineano le difficoltà nella progettazione di un monitoraggio che nasce con tale scopo.

Per questo motivo, svariati sono stati gli approcci messi a punto nel corso degli anni da ARPA Lombardia, a partire dalle misure di concentrazione degli inquinanti tradizionali (parametri normati dal D. Lgs 155/2010), fino alla misura di IPA, COV e composti atmosferici cosiddetti pericolosi (Hazardous Air Pollutants, HAPs), come ad esempio il naftalene; dalla composizione chimico-fisica del PM<sub>10</sub>, fino alla misura al minuto della concentrazione numerica delle nanoparticelle (diametro aerodinamico > 6 nm) ed alla loro correlazione con il passaggio degli aerei. Mentre da una parte quest'ultimo approccio, scelto anche in base alle evidenze sperimentali pubblicate in letteratura, è stato l'unico che ha permesso di osservare la sorgente "aeromobile", la discussione dei monitoraggi ove si è andato a misurare la concentrazione degli inquinanti gassosi e non, non ha mostrato in nessun caso evidenze di impatti significativi all'esterno del sedime aeroportuale.

**Parole chiave:** monitoraggio, aerei, aeroporti, nanoparticelle, composti atmosferici pericolosi.

#### ABSTRACT

Interest in the emissions of air pollutants from planes and airports began in the 1970s, together with the increase in commercial air traffic. Indeed, aircraft emissions can produce atmospheric contaminants such as nitrogen oxides, hydrocarbons, carbon monoxide and PM, which can then lead to wider environmental problems related to ground-level ozone and climate change and generate potential risks related to public health and the environment. Since the 1990s, significant improvements have been made regarding the fuel efficiency of the aircrafts and other technical improvements to reduce emissions. However, aircrafts are only one of several sources of emissions at an airport.

As part of the monitoring activities, ARPA Lombardia has been involved in numerous investigation campaigns on air quality (AQ) around airports, in particular Milano-Malpensa (VA) and Bergamo-Orio al Serio (BG). These analyses, a dozen since 1999 at Malpensa and more than twenty at Orio al Serio since 2003, were carried out to satisfy requests received from the surrounding area which arose essentially from the desire to understand the impact of airport emissions and the activities related to them on AQ and, in particular, to understand both the possible existence of potentially toxic compounds (e.g. Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, PAHs, and Volatile Organic Compounds, VOCs) and a potential substantial increase in dust emitted as PM<sub>10</sub>.

In general, although it is possible that the levels of these pollutants in the areas adjacent to the airports or within the airport grounds are higher than in the more distant areas, however, they are not appreciably different compared to urban environments. In many cases, moreover, it is extremely difficult to identify the specific airport source with respect to the emission of non-airport sources, i.e. the vehicle emission rather than a stationary combustion source. These considerations, known in specific literatures (Federal Aviation Administration) and also highlighted as a result of the various monitoring carried out, underline the difficulties in designing a monitoring that arises for this purpose.

For this reason, ARPA Lombardia developed various approaches over the years, starting from the

concentration measurements of traditional pollutants (parameters regulated by Legislative Decree 155/2010), up to the measurement of IPA, VOC and compounds so-called dangerous atmospheric (Hazardous Air Pollutants, HAPs), such as naphthalene; from the chemical-physical composition of PM<sub>10</sub>, up to the measurement per minute of the numerical concentration of the nanoparticles (aerodynamic diameter > 6 nm) and their correlation with the passage of planes. While on the one hand the latter approach, also chosen on the basis of the experimental evidence published in the literature, was the only one that allowed to observe the "aircraft" source, the discussion of the monitoring where the concentration of pollutants was anyway measured, has not shown evidence of significant impacts outside the airport grounds.

**Keywords:** monitoring, aircraft, airport, nanoparticles, hazard atmospheric compounds

## Introduzione

L'attenzione per le emissioni aeroportuali e il loro contributo all'inquinamento atmosferico è andata aumentando nel corso degli ultimi anni. Gli aeroporti sono importanti risorse, giocando un ruolo chiave nel trasporto di persone e beni, favorendo anche il commercio internazionale. I principali aeroporti sono in genere situati vicino o all'interno di grandi città e quindi potrebbero avere un impatto sull'ambiente circostante, oltre che sul personale esposto dell'aeroporto.

Spesso, la popolazione residente nelle vicinanze di un aeroporto esprime preoccupazione per l'eventuale esposizione a sostanze potenzialmente pericolose provenienti dal traffico aereo. Tuttavia, gli ambienti aeroportuali comprendono un complesso mix di fonti di emissioni oltre a quelle degli aeromobili, ovvero i mezzi di rampa, le attrezzature di supporto e i veicoli di servizio, i veicoli degli stessi passeggeri, l'usura di freni e pneumatici, le turbine di potenza, i mucchi di sabbia e sale in inverno, gli impianti di riscaldamento, le strutture

di deposito del carburante e di manutenzione degli aeromobili. Le immissioni nei dintorni dell'aeroporto rappresentano inoltre le concentrazioni di fondo, che variano con il tempo e con le condizioni meteorologiche e si combinano con le emissioni degli aeroporti per produrre concentrazioni più elevate e un impatto maggiore.

Studi dettagliati di caratterizzazione del pennacchio hanno dimostrato che i motori degli aeromobili hanno i tassi di emissione più alti generalmente in condizioni di spinta e aumento della portata del carburante comunemente associato al decollo (Agrawal et al., 2008; Kinsey et al., 2010; Wey et al., 2006, 2007).

Osservando il decollo degli aerei da terra si nota uno scarico nero emesso dall'aeromobile che un qualunque osservatore può pensare possa causare un inquinamento dannoso. Tuttavia, il rapido movimento della sorgente tende ad allungare il pennacchio e, insieme ai movimenti vorticosi della scia dello scarico del getto, a contenerlo, contribuendo anche ad un aumento apparente della densità del pennacchio. Il rapporto tra il tasso di inquinanti emessi da aerei a reazione e la loro concentrazione nei pressi di un aeroporto è determinato dalla miscelazione tra i fumi di scarico e l'atmosfera circostante (J. Heywood 1971). Ci sono dunque diversi fenomeni fisici che agiscono contemporaneamente per determinare le concentrazioni al livello del suolo: il trascinamento dell'aria circostante e la sua miscelazione con i gas di scarico causati dal moto turbolento, la graduale salita dalla pista dovuta al galleggiamento, la miscelazione con l'aria circostante causata dalla turbolenza atmosferica e la convezione dovuta al vento.

Gli inquinanti principalmente emessi dai motori degli aerei sono principalmente quelli legati alle emissioni da traffico in generale, ovvero aerosol atmosferico (PM), monossido di carbonio, idrocarburi, ossidi di azoto e, indirettamente dalla sintesi fotochimica, ozono. Questa caratteristica ne rappresenta anche un forte fattore limitante nel monitoraggio dell'impatto di un aeroporto sulla qualità dell'aria (QA), principalmente a causa dell'elevato numero di fonti che li emettono, rappresentando quindi un problema di discriminazione

delle sorgenti. Nonostante ciò, numerosi sono gli studi condotti all'interno e nelle vicinanze degli aeroporti (B. Lyons et al. 2006; T.P. Nichols et al. 1981; E.K. Bastress 1973; J. Heywood et al. 1971; L. Shabad e G. Smirnov 1971; Tsani-Bazaca et al. 1982; Brown et al., 1996; Barbosa et al., 1999; Herndon et al., 2005). Questi studi mostrano un accordo generale sul fatto che le emissioni degli aeromobili rappresentano solo una piccola percentuale delle emissioni totali provenienti da tutte le fonti urbane. Inoltre, la maggior parte delle indagini sulla qualità dell'aria indica che le concentrazioni degli inquinanti atmosferici nei pressi degli aeroporti sono confrontabili a quelle dell'area metropolitana cui appartengono.

Nella review del 2003 la Federal Aviation Administration (FAA) ha individuato una serie di possibili traccianti delle emissioni dei velivoli, che vengono definiti pericolosi (Hazardous Air Pollutants, HAPs). Fra di essi, i primi dieci composti, da soli, rappresentano ben il 96% delle emissioni totali: aldeidi (formaldeide, acetaldeide e propionaldeide), COV (benzene, toluene, xylene, acroleina), IPA (1,3-butadiene e naftalene) e piombo. Tra le informazioni riportate dalla FAA si evince che, in generale, sebbene sia possibile che i livelli di questi inquinanti nelle aree adiacenti gli aeroporti siano superiori rispetto ad aree più lontane, tuttavia, essi non sono apprezzabilmente differenti rispetto agli ambienti urbani. In molti casi, inoltre, è estremamente difficile l'individuazione della sorgente specifica aeroportuale rispetto all'emissione di sorgenti non-aeroportuali, ovvero emissione veicolare piuttosto che sorgente di combustione stazionaria, oltre al fatto che eventuali studi di esposizione devono tenere in considerazione il tempo per il quale la popolazione è esposta ad inquinanti HAP, trattandosi in genere di eventi che non hanno una durata sufficiente perché siano rappresentativi di esposizioni a lungo termine e quindi croniche.

Alla luce dei potenziali effetti sulla salute legati al trasporto aereo, un certo numero di studi hanno esaminato le emissioni di combustione dei motori degli aeromobili. Le emissioni di PM da aeromobili sono

caratterizzate da particelle con diametri aerodinamici tipicamente inferiori a 100 nm (Petzold et al., 2003; Mazaheri et al., 2009; Zhu et al., 2011; Lobo et al., 2012), ovvero particelle ultrafini (UFP). La formazione di UFP è normalmente governata da fonti locali non stazionarie con emissioni altamente variabili in funzione del flusso di carburante (Kinsey et al., 2010) e della fase di atterraggio o di decollo. Diversi sono gli studi di letteratura che riportano un aumento di produzione di particelle ultrafini (UFP) nelle aree prossime agli aeroporti (Westerdahl et al., 2008; Hu et al., 2009; Klappmeyer et al., 2012; Hsu et al., 2013; Stafoggia et al., 2016; Masiol et al., 2017).

Anche se non esistono attualmente normative sulla concentrazione ambientale di UFP, diverse sono le pubblicazioni che le collegano con risultati negativi sulla salute (Utell e Frampton, 2000; Nemmar et al., 2001; Ibaldo-Mulli et al., 2002; Englert, 2004; Oberdorster, 2004; Delfino et al., 2005); quindi anche la quantificazione di contributi marginali come quelli riconducibili agli aeroporti diventa importante ai fini della pianificazione di politiche di intervento locali volte a ridurre le esposizioni della popolazione.

I principali aeroporti in Lombardia sono: Milano-Malpensa (MXP), Bergamo-Orio al Serio (LIME), Milano-Linate (LIML) e Brescia-Montichiari (LIPO). In parentesi sono stati riportati i codici ICAO (Organizzazione Internazionale di Aviazione Civile), che servono ad indicare univocamente gli aeroporti.

L'Aeroporto di Milano-Malpensa è un aeroporto intercontinentale situato nel comune di Ferno, in provincia di Varese; nasce agli inizi del secolo scorso come campo di aviazione per prototipi, ma è dagli anni '50 che prende piede il suo sviluppo e il successivo ingrandimento. È gestito dalla Società Esercizi Aeroportuali (SEA). Nel 2019 sono transitati da Malpensa circa 28 milioni di passeggeri e 558000 tonnellate di merci confermandolo primo aeroporto d'Italia per traffico merci e secondo aeroporto d'Italia per traffico passeggeri, dopo l'Aeroporto di Roma-Fiumicino (circa 43 milioni di passeggeri nel 2019). L'aeroporto

dispone di 2 terminal: il Terminal 1 è utilizzato dai voli di linea, charter e low cost, con l'eccezione della compagnia EasyJet che invece utilizza in modo esclusivo il Terminal 2.

L'Aeroporto di Bergamo-Orio al Serio, noto con il nome commerciale di Aeroporto Internazionale Il Caravaggio, nasce nel 1937 per scopi militari per passare a scalo civile negli anni '70. È situato principalmente nel comune di Orio al Serio ma occupa anche porzioni dei comuni di Grassobbio e Seriate, si trova a 5 km di distanza dal centro di Bergamo e 50 km dal centro di Milano. È il terzo scalo italiano per numero di passeggeri (più di 13 milioni nel 2019, con oltre 118000 tonnellate di merci). Lo scalo è principalmente utilizzato da compagnie aeree a basso costo.

L'Aeroporto di Milano-Linate, intitolato a Enrico Forlanini, è il settimo aeroporto italiano per traffico di passeggeri (6,5 milioni nel 2019). Accoglie il traffico nazionale e quello europeo di breve raggio. L'aeroporto dispone di un unico terminal e di due piste, una per il traffico commerciale e una per l'aviazione generale. Lo scalo milanese ricade nel comune di Peschiera Borromeo e in parte anche nel territorio del comune di Segrate.

L'aeroporto di Brescia-Montichiari è intitolato a Gabriele D'Annunzio, è situato a Montichiari e serve la città di Brescia. Rappresenta la principale base di smistamento della corrispondenza aerea di Poste Italiane: ogni notte partono e arrivano voli postali e cargo di Alitalia/Mistral Air. L'aeroporto beneficia inoltre di un'intensificazione del traffico merci, in forza di un accordo di partnership siglato tra Poste italiane e Amazon. Dal mese di novembre 2018, l'aeroporto accoglie i voli cargo del corriere internazionale DHL.

Inoltre, di minor importanza, vi sono gli aeroporti di: Alzate Brianza (LILB), Bresso (LIMB), Calcinate del Pesce (LILC), Cremona-Migliaro (LILR), Mantova-Migliaretto (LIDM), Valbrembo (LILV), Varese-Venegono (QVA, LILN), Vergiate (LILG), Voghera-Rivanazzano (LILH), Brescia-Ghedi (LIPL). Questi aeroporti sono per lo più adibiti a volo a vela, turismo, voli sportivi, manifestazioni, scuole di volo.

Vengono qui discussi i risultati dei monitoraggi effettuati da ARPA Lombardia a partire dal 1993 fino ad oggi negli aeroporti di Milano-Linate, Milano-Malpensa e Bergamo-Orio al Serio, effettuati per soddisfare richieste pervenute dal territorio circostante nate sostanzialmente dalla volontà di comprendere l'impatto delle emissioni aeroportuali e delle attività ad esse connesse sulla QA e, in particolare, comprendere l'eventuale esistenza di composti emessi potenzialmente tossici e un aumento sostanziale delle polveri emesse come PM<sub>10</sub>. Lo scopo è quello di fornire una review di esperienze affrontate, sia dal punto di vista della pianificazione dei monitoraggi che degli approfondimenti tecnici. Le relazioni elaborate negli anni sono disponibili alla pagina web: <https://www.arpalombardia.it/Pages/Aria/Relazioni-e-valutazioni/Relazioni-Stazioni-Mobili.asp>.

Mobili.asp;

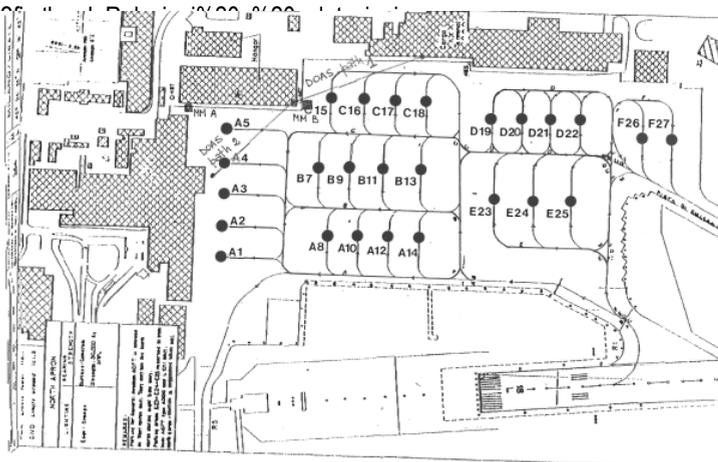


Figura 11.4.1. Piazzale di parcheggio degli aeromobili nell'aeroporto di Milano-Linate.

È a partire dagli anni 2000 che iniziano ad intensificarsi le richieste per approfondire le valutazioni della QA in

## Metodi

### *Progettazione degli studi*

La prima campagna realizzata per la valutazione dell'impatto di un aeroporto sulla QA è stata effettuata nel 1993 a Milano-Linate in periodo autunnale (dal 1° settembre al 19 ottobre) attraverso l'installazione di un laboratorio mobile nel piazzale di parcheggio degli aeromobili, quindi all'interno del sedime aeroportuale (Figura 11.4.1). Il laboratorio mobile era equipaggiato con la consueta strumentazione convenzionale (ossidi di zolfo, ossidi di azoto, CO, benzene, ozono, metano e idrocarburi non metanici) e non (DOAS, Differential Optical Absorption Spectroscopy).

aree residenziali e non intorno agli aeroporti. Questa tendenza è da ricondursi in parte ad un aumento del livello di sensibilizzazione della popolazione residente

sulle problematiche ambientali ma anche alla volontà degli enti di gestione e controllo aeroportuale di affidare all'ente preposto, ovvero ARPA, che già si occupava della gestione della Rete di Rilevamento della QA (RRQA), la gestione e realizzazione dei monitoraggi stessi. Già solo nei primi dieci anni, per la precisione dal 2003 al 2013, sono stati 22 i monitoraggi effettuati nei comuni intorno all'aeroporto di Orio al Serio (Figura 11.4.2), per un totale di 25 alla fine del 2018. Le campagne effettuate fino al 2012 hanno previsto l'utilizzo esclusivo del laboratorio mobile; dal 2013 al 2015 oltre al

laboratorio mobile sono state effettuate mappature mediante l'utilizzo di fiale adsorbenti ed è stata effettuata la speciazione chimica completa del  $PM_{10}$ ; nel 2017-2018 è stato monitorato il  $PM_{10}$  affiancato a contatori di particelle per la valutazione della distribuzione dimensionale dell'aerosol a partire da 6 nm, intorno al sedime aeroportuale e, in particolare, sotto le tracce di decollo e atterraggio degli aerei.

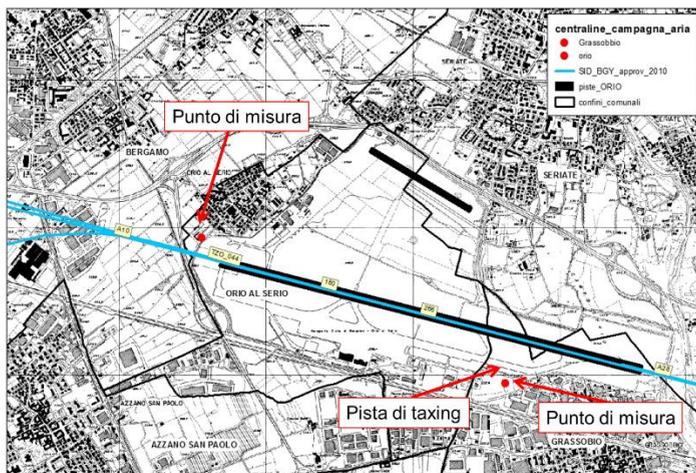


Figura 11.4.2. Tracce aeree e punti di misura in una delle campagne effettuate a Orio al Serio (2014).

Anche la qualità dell'aria nell'intorno aeroportuale di Milano-Malpensa (Figura 11.4.3) è stata oggetto di numerose analisi, soprattutto in seguito all'apertura del Terminal 1. Nelle immediate adiacenze dell'aeroporto sono collocate tre cabine della rete di monitoraggio della qualità dell'aria (Ferno, Lonate Pozzolo e Somma Lombardo). Ad integrazione delle misure in continuo sono state effettuate negli anni anche una serie di campagne con postazione mobile, sia per misure convenzionali che per il monitoraggio di microinquinanti. Gli approfondimenti nei comuni dell'area varesina più vicini all'aeroporto di Malpensa sono stati effettuati

tenendo conto delle ripetute sollecitazioni e preoccupazioni formulate dai Sindaci del CUV, Consorzio Urbanistico Volontario, relativamente alla possibile presenza in atmosfera di sostanze potenzialmente pericolose per la salute, in particolare, alla possibilità di quantificare gli idrocarburi, possibili traccianti del traffico aereo, che potrebbero essere presenti in concentrazioni critiche nell'area intorno all'aeroporto. La situazione di preoccupazione era alimentata sostanzialmente da una sentenza del Tribunale di Milano (n. 111169/08 del 22 settembre 2008) che accertava, sulla base di una perizia tecnica condotta tra il 2001 e il

2004 dall'Università di Milano "la gravissima compromissione di un'area di rilevante interesse naturalistico situata nei terreni di proprietà della Cascina Tre Pini situati nel SIC IT2010012" imputandola "alle attività del vicino aeroporto di Malpensa". Successivamente è stata accertata una Procedura di infrazione (n. 4096/2012), relativa alla violazione della Direttiva 92/43/CEE del Consiglio del 21 maggio 1992 sulla conservazione degli habitat, in merito a situazioni di degrado delle specie boschive di un'area del Comune di

Somma Lombardo (VA) nell'area SIC (sito di importanza comunitaria) IT2010012 "Brughiera del Dosso". Per questi motivi, ad integrazione delle misure in continuo sono state effettuate dal 1999 al 2016 anche una serie di monitoraggi ad ampia scala nei comuni del CUV e distribuiti a livello stagionale, mediante l'installazione di laboratori mobili a supporto delle cabine fisse e l'utilizzo di fiale adsorbenti e contatori di particelle.

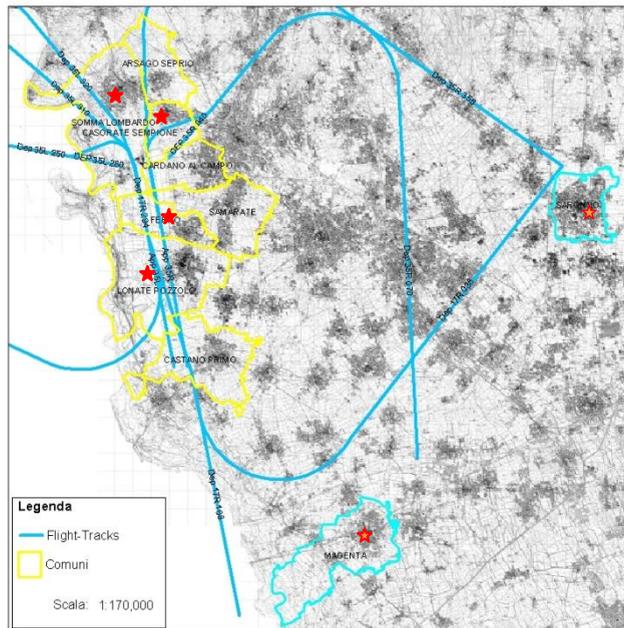


Figura 11.4.3. Ubicazione delle postazioni di misura della campagna 2011 a Milano-Malpensa.

## Risultati e Discussione

In Lombardia, le valutazioni degli impatti degli aeroporti sulla QA hanno avuto inizio con il monitoraggio dell'aeroporto di Milano-Linate nel 1993. La campagna è stata effettuata dal 1° settembre al 19 ottobre, nel piazzale di parcheggio degli aeromobili mediante l'installazione di un Laboratorio Mobile (NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, CO, NMHC, CH<sub>4</sub>) e di un DOAS, il cui sistema

trasmettitore-ricevitore è stato posto sul terrazzo dell'hangar Breda, angolo sud-ovest a quota 15 m, i due specchi montati su pali luce alle quote 14,3 e 7,3 m. Le quote sono state scelte in modo tale che fossero tutte poco superiori rispetto al livello dei reattori degli aerei. In generale, gli andamenti delle concentrazioni medie orarie e giornaliere degli inquinanti monitorati sono risultati modulati principalmente dagli eventi meteorologici, con valori confrontabili con le misure delle

circostanti cabine fisse. Le emissioni locali sono risultate preponderanti nella determinazione delle concentrazioni più elevate di NO<sub>x</sub>, NMHC, toluene e CO. Fortemente correlate sono risultate le concentrazioni di NO e NMHC. Considerando la dislocazione e le modalità di rilevamento dei sistemi di misura utilizzati, tali valutazioni sono state ritenute significative per una valutazione della QA fortemente puntuale, a livello del piazzale stesso. Fra i parametri misurati, gli Idrocarburi non metanici (mediante gascromatografo in continuo – rivelatore FID), ovvero l'insieme dei composti del carbonio e dell'idrogeno con l'esclusione del metano, essendo emessi per la cattiva e/o incompleta combustione del carburante dei veicoli (benzina, gasolio, jet fuel) insieme a particelle incombuste di carburante, potevano essere considerati un buon marker delle emissioni dai motori degli aeromobili, rappresentandone anche la fonte di odori, avvenendo in gran parte a livello del suolo. Si possono avere emissioni di NMHC anche dai veicoli con motore spento ma ancora caldo per evaporazione del carburante. Altri idrocarburi possono essere emessi per evaporazione nel travaso dei carburanti, per esempio, durante le fasi di riempimento di serbatoi e cisterne. Nonostante ciò, la situazione riscontrata a Linate non era tipica ma caratteristica di tutte le località urbane allora monitorate.

Circa una decina di campagne dal 1999 al 2010 effettuate nei comuni intorno all'aeroporto di Milano-Malpensa non sono risultate esaustive nel soddisfare le pressioni locali. Queste campagne sono state condotte mediante l'uso di laboratori mobili a supporto delle misure delle stazioni fisse. Sulla base della molteplicità dei dati raccolti nel corso degli anni, pur essendo l'aeroporto una sorgente emissiva importante, non è risultato nell'intorno una differenziazione sensibile dello stato di QA rispetto ad altre aree del territorio lombardo. Anche la QA misurata nelle tre postazioni fisse della rete collocate nell'area dell'intorno di Malpensa mostra una situazione confrontabile, e per alcuni inquinanti addirittura migliore, di quella delle altre aree di medesima classificazione nel territorio regionale.

Per questi motivi, tenendo conto delle ripetute sollecitazioni e preoccupazioni formulate dai Sindaci del

CUV, tra l'autunno del 2011 e l'estate del 2012 è stato effettuato un monitoraggio intensivo della QA volto in particolare alla quantificazione delle polveri aerodisperse e degli idrocarburi, possibili traccianti del traffico aereo, nell'area circostante l'aeroporto. A tal fine sono state scelte sei postazioni, due punti di "bianco" e quattro sotto le rotte degli aerei. In ogni postazione sono state effettuate quattro campagne intensive della durata di due settimane ciascuna, distribuite nelle quattro stagioni dell'anno, per garantire una copertura adeguata sia dal punto di vista delle attività antropiche che relativamente alla variabilità meteorologica. Le misure effettuate, parallelamente al consueto monitoraggio in continuo degli inquinanti convenzionali, hanno riguardato la determinazione degli elementi e degli IPA in fase particolato, sui filtri di PM<sub>10</sub>, e il rilevamento in fase gas tramite fiale adsorbenti del naftalene, delle aldeidi e di COV, individuati quali possibili traccianti delle emissioni dei velivoli dalla FAA. Fra di essi, sono stati misurati i primi dieci composti che, da soli, rappresentano - il 96% delle emissioni totali. Poiché alcuni composti previsti non sono comunque specifici della sola emissione degli aerei, nelle due stazioni più prossime al sedime aeroportuale è stata installata anche strumentazione di tipo ottico, per ottenere informazioni di supporto nell'individuazione delle possibili sorgenti. Analogamente, su alcuni campioni è stato determinato il levoglucosano, tracciante specifico delle emissioni da biomassa, quale discriminante per le combustioni.

Come atteso, l'analisi delle concentrazioni giornaliere di PM<sub>10</sub> nelle quattro campagne non ha messo in evidenza differenze significative tra i siti potenzialmente sottoposti alle emissioni aeroportuali rispetto ai siti di controllo e all'agglomerato urbano milanese. L'andamento delle concentrazioni è risultato modulato prevalentemente dalle condizioni meteorologiche generali. Analogamente per COV, aldeidi e naftalene, non si sono osservate particolari situazioni di criticità. Il naftalene, la cui soglia olfattiva risulta essere 440 µg/m<sup>3</sup>, ha le medesime sorgenti dei COV in aria, oltre alle esalazioni in prossimità di depositi o distributori di carburante, fenomeno che ha giustificato le uniche differenze nelle concentrazioni della campagna invernale osservate nei

due siti più a ridosso dei depositi di carburante dell'aeroporto rispetto agli altri siti (Casorate Sempione e Somma Lombardo, Figura 11.4.4). Le medie sui periodi ( $0,744 \pm 1,290 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) sono comunque risultate nel

range di variabilità dei tipici valori urbani di letteratura, ovvero da  $0,01 \mu\text{g}/\text{m}^3$  a  $6,31 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (Jia et al., 2010).

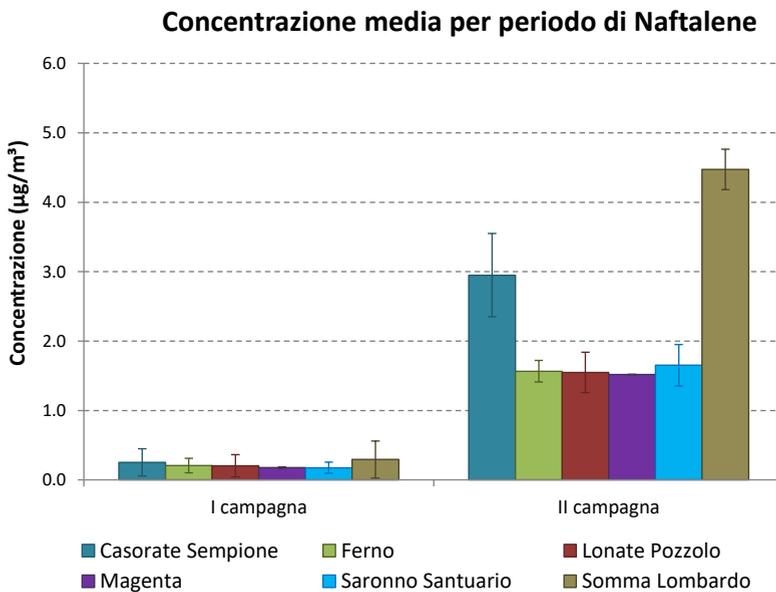


Figura 11.4.4. Concentrazione media di Naftalene per ciascuna campagna.

In fase particolato, il B(a)P è tracciante delle combustioni in genere ovvero, oltre che emesso dai motori, è prodotto dalle combustioni di biomassa come avviene, ad esempio, dai camini ad uso domestico. Proprio nel sito di Ferno, dove le concentrazioni di B(a)P sono maggiori, è

stata evidenziata una forte correlazione con altri due traccianti specifici di questa tipologia di combustione: il levoglucosano e il potassio (Figura 11.4.5).

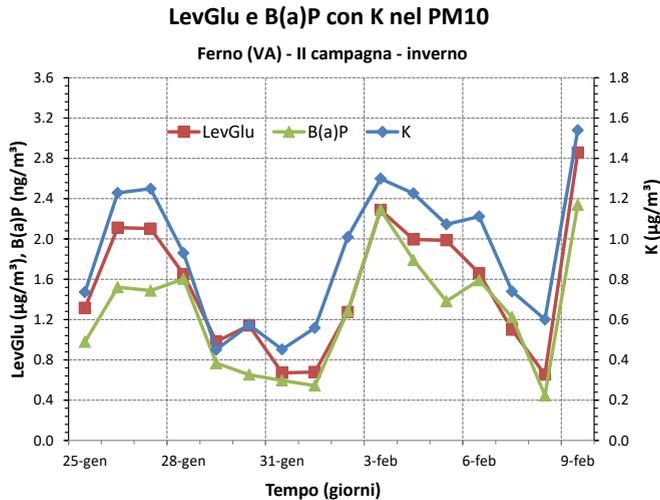


Figura 11.4.5. Andamento giornaliero delle concentrazioni di levoglucosano, B(a)P e K nella II campagna invernale a Ferno.

L'analisi delle distribuzioni dimensionali del particolato ha mostrato andamenti tipici (Figura 11.4.6): il particolato più grossolano, di origine meccanica, ha avuto un andamento giornaliero regolato dai flussi di traffico. Nei fine settimana, a minori flussi di traffico sono corrisposte concentrazioni numeriche inferiori per questo cluster di particelle. Invece il cluster del particolato più fine, in parte primario, prodotto dalle combustioni, ed in parte secondario, generato da modificazioni chimico-fisiche dei precursori (agglomerazione di particelle nanometriche, condensazione, etc.), è apparso regolato essenzialmente dalle condizioni termodinamiche, più favorevoli alla diluizione nelle ore diurne rispetto alle ore notturne. Inoltre, a Ferno, a differenza di Somma Lombardo, le concentrazioni numeriche delle particelle sono risultate maggiori nei fine settimana rispetto ai giorni feriali. L'analisi a cluster (analisi gerarchica sulle serie auto scalate, indice di similarità coefficiente di Pearson R, rappresentante di classe centroide) applicata alle concentrazioni relative numeriche e gravimetriche di IPA e degli elementi ha mostrato le tipiche correlazioni da siti non sottoposti ad alcuna sorgente dominante, ovvero il cluster degli elementi terrigeni, il cluster degli

elementi associati ad attività industriali varie (ad esempio, Cr, Pb, Ni e Cu), quello associato alle attività di combustione (IPA, levoglucosano e, talvolta, K e Rb) e l'indicazione della componente di particolato secondario associata allo zolfo. L'associazione degli elementi terrigeni ha confermato la presenza di una sorgente di risospensione dal suolo delle polveri che può essere associata sia al passaggio di autoveicoli in genere sia al movimento turbolento delle masse d'aria. Le specie relative alle combustioni delle biomasse sono risultate correlate nei vari siti in misura in dipendenza di diversi fattori: la tipologia del sito e quindi delle sue emissioni locali, la tipologia di biomassa utilizzata e la sua modalità di combustione, nonché dall'omogeneità dell'area e della diffusione del particolato più fine.

Sostanzialmente, tutte le elaborazioni effettuate sull'insieme dei dati raccolti non hanno messo in evidenza impatti sulla qualità dell'aria ambiente direttamente o indirettamente connessi alle emissioni legate alle attività aeroportuali.

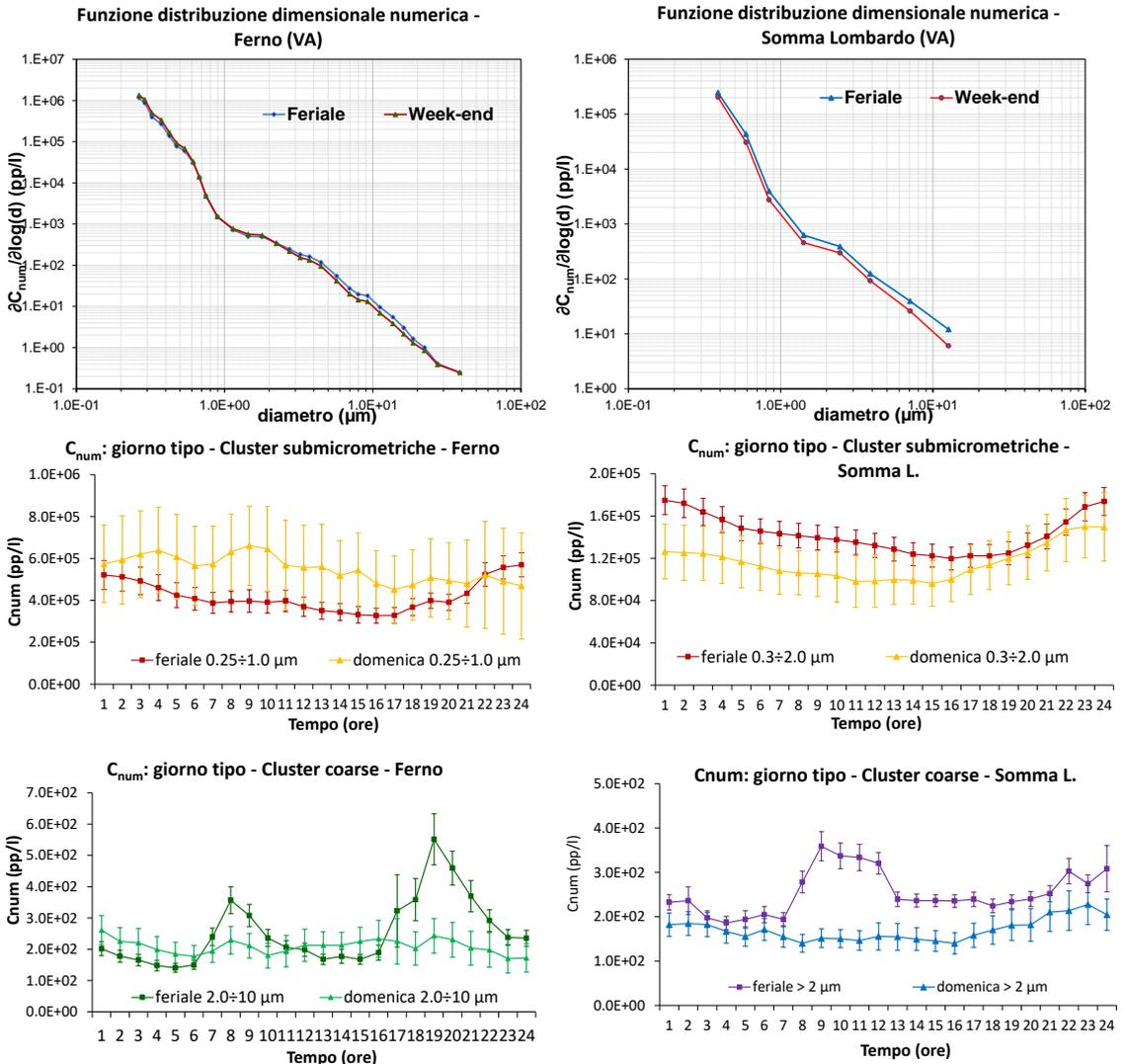


Figura 11.4.6. Elaborazioni dei dati OPC per Ferno (sinistra) e Somma Lombardo (destra): distribuzione dimensionale numerica (in alto), giorno tipo del cluster delle particelle submicrometriche (in mezzo) e di quello della frazione coarse (sotto).

A seguito della Procedura di Infrazione 4096/2012, relativa alla violazione della Direttiva 92/43/CEE del Consiglio del 21 maggio 1992 sulla conservazione degli

habitat, in merito a situazioni di degrado delle specie boschive di un'area del Comune di Somma Lombardo (VA) nell'area SIC IT2010012 "Brughiera del Dosso", è

stato effettuato un ultimo monitoraggio nell'area di Milano-Malpensa, volto a valutare lo stato di conservazione degli ecosistemi e di alcune componenti abiotiche dell'area vasta Malpensa, in collaborazione con la Fondazione Lombardia Ambiente e l'Università Cattolica di Brescia, per quanto concerne la matrice biologica e vegetativa. Riguardo gli inquinanti gassosi presenti in atmosfera, l'attenzione è stata rivolta verso i due principali inquinanti fitotossici, ovvero  $\text{NO}_2$  e  $\text{O}_3$ , e IPA sul  $\text{PM}_{10}$  per un totale di 17 punti di misura, di cui 3 all'interno dell'area SIC Brughiera del Dosso. È stato effettuato anche il monitoraggio delle deposizioni umide in campo aperto (bulk), per l'anno solare 2016.

Per quanto riguarda l' $\text{NO}_2$  (Figura 11.4.7), il valore medio della concentrazione media annuale per le stazioni di

riferimento è stato  $29 \pm 6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , inferiore ai valori misurati nel supersito di riferimento di fondo urbano di MI-Pascal ( $43 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) e al valore limite annuale per la protezione della salute umana di  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Anche le concentrazioni massime orarie non hanno mai superato il valore limite di  $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Sia le concentrazioni medie giornaliere che le massime orarie giornaliere hanno avuto un andamento in linea con quanto tipicamente accade nella pianura padana, con valori maggiori nei periodi più freddi dell'anno sia a causa di una maggiore emissione delle sorgenti che ad un favorito accumulo degli inquinanti stessi per la meteorologia.

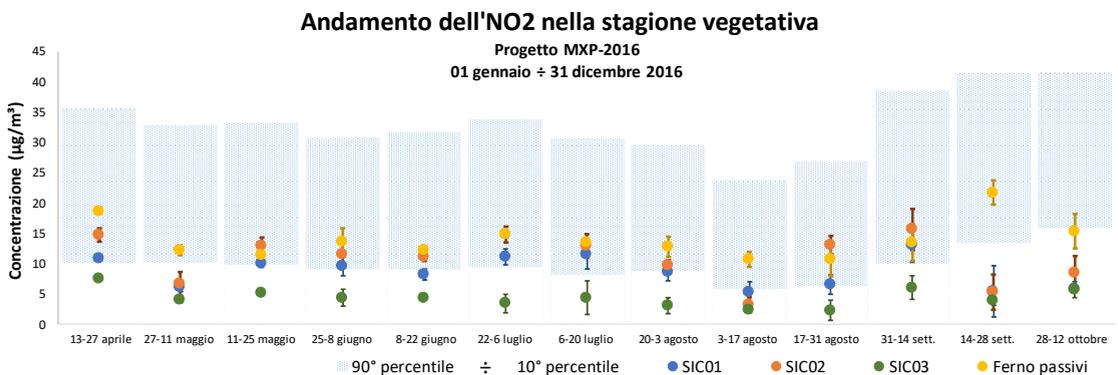


Figura 11.4.7. Andamento dell' $\text{NO}_2$  nella stagione vegetativa..

Come noto, il periodo critico per l'ozono è la stagione estiva, in quanto la radiazione solare e l'alta temperatura favoriscono la formazione di questo inquinante secondario che viene prodotto attraverso reazioni fotochimiche che coinvolgono gli ossidi di azoto ( $\text{NO}_x$ ) e i composti organici volatili (COV); è in questa stagione che tipicamente si registrano i superamenti registrati in questa campagna. Tuttavia, i valori medi delle concentrazioni (Figura 11.4.8) e gli andamenti dell' $\text{O}_3$  sono risultati confrontabili fra le stazioni con le medesime

caratteristiche. Il valore relativo di ozono per l'esposizione delle piante per la valutazione degli effetti ecotossicologici sulla vegetazione è l'AOT40 (Accumulated ozone over Threshold of 40 ppb), ovvero la somma della differenza tra le concentrazioni orarie superiori a  $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$  e  $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in un dato periodo di tempo (dal 1° maggio al 31 luglio) ed utilizzando solo i valori orari rilevati ogni giorno tra le 8:00 e le 20:00. Il D.Lgs.155/2010 fissa come valore obiettivo per l'AOT40  $18000 \mu\text{g}/\text{m}^3\text{h}$  come media su 5 anni, valore superato

quasi ovunque nei siti considerati. Infatti, l'ozono può penetrare nelle piante attraverso gli stomi delle foglie distruggendo la clorofilla ed interrompendone così la crescita fino alla morte. Analogamente, le elaborazioni delle concentrazioni di PM<sub>10</sub> ed IPA non hanno mostrato

differenze significative rispetto alla situazione precedentemente monitorata.

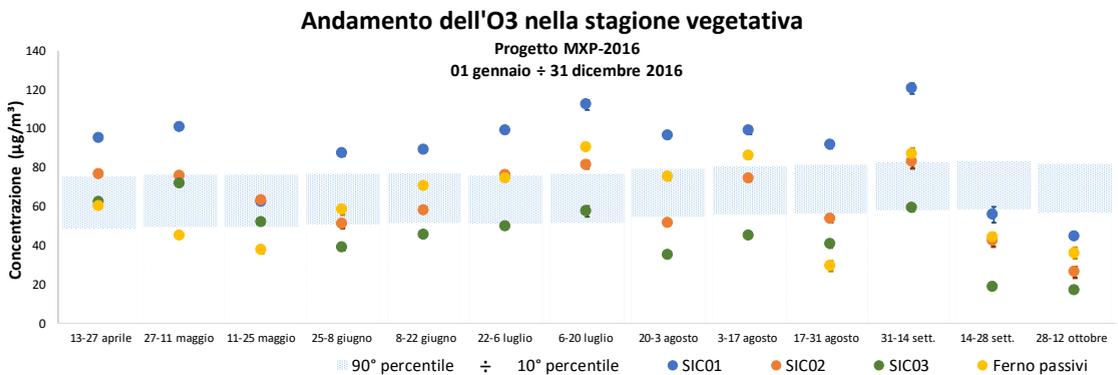


Figura 11.4.8. Andamento dell'O<sub>3</sub> nella stagione vegetativa.

L'aeroporto di Bergamo-Orio al Serio è certamente quello che ha visto un elevato numero di campagne di monitoraggio, seppur alcune di breve durata rispetto agli standard, a causa delle forti pressioni antropiche dell'area circostante, raggiungendo ben 22 campagne in 10 anni (dal 2003 al 2013) e ulteriori 3 dal 2015 al 2018.

Le indagini dal 2003 al 2012 sono state condotte esclusivamente mediante l'utilizzo di laboratori mobili equipaggiati con la strumentazione convenzionale per il monitoraggio della QA; dal 2013 al 2015 si sono aggiunte le mappature di microinquinanti legati alle attività aeroportuali, quali aldeidi, COV e naftalene, e la speciazione chimica completa del PM<sub>10</sub>; il monitoraggio effettuato nel 2017-2018 si è concentrato sulla determinazione del PM<sub>10</sub> e della concentrazione numerica di particelle per classi dimensionali tramite OPC e UFP.

Le elaborazioni dei dati raccolti dai laboratori mobili hanno mostrato sostanzialmente gli stessi risultati, ovvero per gli inquinanti ubiquitari si è osservato una sostanziale uniformità dell'inquinamento atmosferico

locale rispetto a tutte le postazioni regionali, coerentemente con quanto rilevato nei monitoraggi degli altri aeroporti e con quanto pubblicato in letteratura (Yu et al., 2004; A. Unal et al., 2005). Alle stesse conclusioni si è giunti anche analizzando le elaborazioni dei microinquinanti: non si sono osservate particolari situazioni di criticità. Il naftalene in questi monitoraggi è risultato addirittura sempre al di sotto dei limiti di rilevabilità strumentale (0.2 µg/m<sup>3</sup>).

Anche la speciazione chimica del PM<sub>10</sub> (Figura 11.4.9), effettuata in una campagna invernale (dal 23 dicembre 2014 al 7 marzo 2015), non ha mostrato differenze significative tra i due siti a ridosso del sedime aeroportuale e posti uno nelle immediate vicinanze della pista prettamente adibita ai decolli (nord-est rispetto al sedime aeroportuale) e l'altro vicino alla pista di taxing degli aerei (a sud dell'aeroporto), rispetto al sito usato come bianco per quella campagna, Casirate d'Adda, posto a circa 22 km in direzione sud-ovest rispetto all'aeroporto. Le concentrazioni di tutte le componenti

sono risultate praticamente uguali se non inferiori per la componente secondaria.

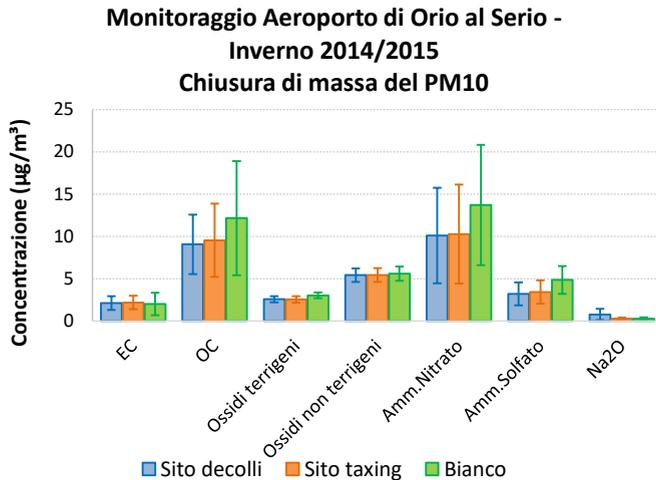


Figura 11.4.9. Chiusura di massa del PM<sub>10</sub> nella campagna 2014/2015 a Orio al Serio.

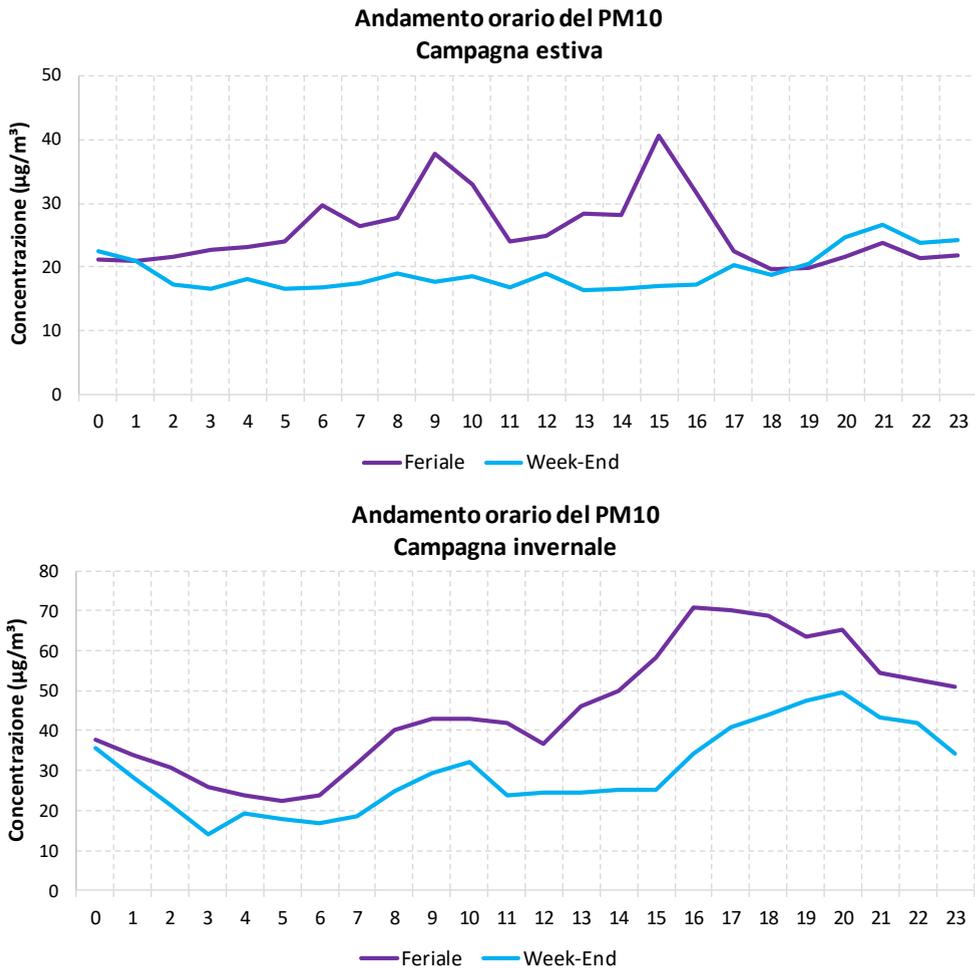
Il monitoraggio che più si è diversificato dagli altri per architettura è stato l'ultimo in ordine temporale, effettuato nell'intorno dell'aeroporto di Orio al Serio. Sulla base delle informazioni condivise dalla società che gestisce l'aeroporto, sono stati scelti cinque punti sotto le tracce radar degli aerei, comunque già esplorati nelle campagne precedenti. Fra essi sono stati considerati anche i due siti della campagna precedente, ovvero quelli posti a nord-est (qui Punto 4) e a sud (ora Punto 2) del sedime aeroportuale con l'aggiunta di un punto (Punto 1) posto a sud-est e affacciato alla pista adibita sia a decollo che atterraggio.

Quest'ultimo monitoraggio (dal 6 giugno all'11 luglio 2017 e dal 28 novembre 2017 al 10 gennaio 2018) ha riguardato la misura del PM<sub>10</sub> con risoluzione giornaliera e delle concentrazioni numeriche delle particelle aerodisperse per classi dimensionali, a partire da 6 nm, con elevata risoluzione temporale (1 minuto).

Come atteso, il comportamento del PM<sub>10</sub> è risultato simile in tutta la regione, con concentrazioni tra il 25° ed il 75° percentile dell'insieme di tutti i valori rilevati in Lombardia. L'osservazione dei dati raccolti con l'OPC ha mostrato, in generale, andamenti più dinamici per i cluster costituiti da particelle più fini: questo comportamento è tipico in quanto le particelle più grossolane e quindi di formazione meccanica o da risollevaramento hanno tempi di residenza in atmosfera dell'ordine di poche ore e risentono più facilmente dei fenomeni di rimozione. Utilizzando i dati di PM<sub>10</sub> giornalieri misurati con il sistema gravimetrico nel Punto 1, a partire dal numero delle particelle per ogni classe dimensionale, facendo ipotesi sulla densità delle particelle stesse, è stata stimata la concentrazione di massa del PM<sub>10</sub> (si veda in Appendice) e si è estesa la ricostruzione anche negli altri punti della campagna, ove non presenti i campionatori gravimetrici. Il processo è stato quindi iterato alle concentrazioni numeriche orarie, stimando così le concentrazioni orarie di PM<sub>10</sub> ed

elaborando gli andamenti del giorno tipo nelle due campagne (Figura 11.4.10): durante la campagna estiva all'andamento pressoché piatto del week-end, si sovrappongono due picchi diurni (alle 9 e alle 15) del giorno feriale, e un lieve innalzamento anche alle ore 6; durante la campagna invernale, come atteso, l'andamento dei giorni feriali mostra valori più elevati rispetto ai festivi in considerazione delle maggiori emissioni. Si evidenzia come nelle ore notturne, le concentrazioni non diminuiscono in maniera drastica in quanto le particelle di aerosol, ad eccezione delle particelle grossolane, hanno tempi di residenza in

atmosfera dell'ordine dei giorni. La diminuzione delle concentrazioni nella parte centrale della giornata è dovuta principalmente all'innalzamento dello strato di rimescolamento per effetto dei moti convettivi innescati dal riscaldamento degli strati bassi dell'atmosfera e alla conseguente maggiore disponibilità di aria in cui l'inquinante può diluirsi.

Figura 11.4.10. Giorno tipo del PM<sub>10</sub>.

Per poter tenere conto del passaggio degli aerei, sono state utilizzate le tracce radar relative al passaggio degli aeromobili (decolli e atterraggi) nei periodi dei campionamenti. Nel periodo estivo il numero di decolli e atterraggi giornalieri è stato grossomodo equivalente ( $133 \pm 6$  decolli e  $134 \pm 7$  atterraggi in media); nel periodo invernale invece si è osservato una diversa organizzazione e distribuzione dei decolli e degli

atterraggi ( $77 \pm 24$  e  $30 \pm 26$  rispettivamente, in media). Gli andamenti delle particelle nelle due stagioni hanno mostrato diversi picchi (Figura 11.4.11): si è osservato un aumento della concentrazione numerica coerentemente con il passaggio degli aerei solamente quando il sito si trovava sottovento. Il giorno-tipo festivo della campagna invernale ha mostrato i due tipici picchi del traffico, correlati all'impronta dei passaggi aerei;

questo comportamento potrebbe essere stato però solo casuale perché il giorno-tipo feriale, con i due picchi più prominenti, non ha mostrato correlazioni col giorno-tipo del passaggio degli aerei.

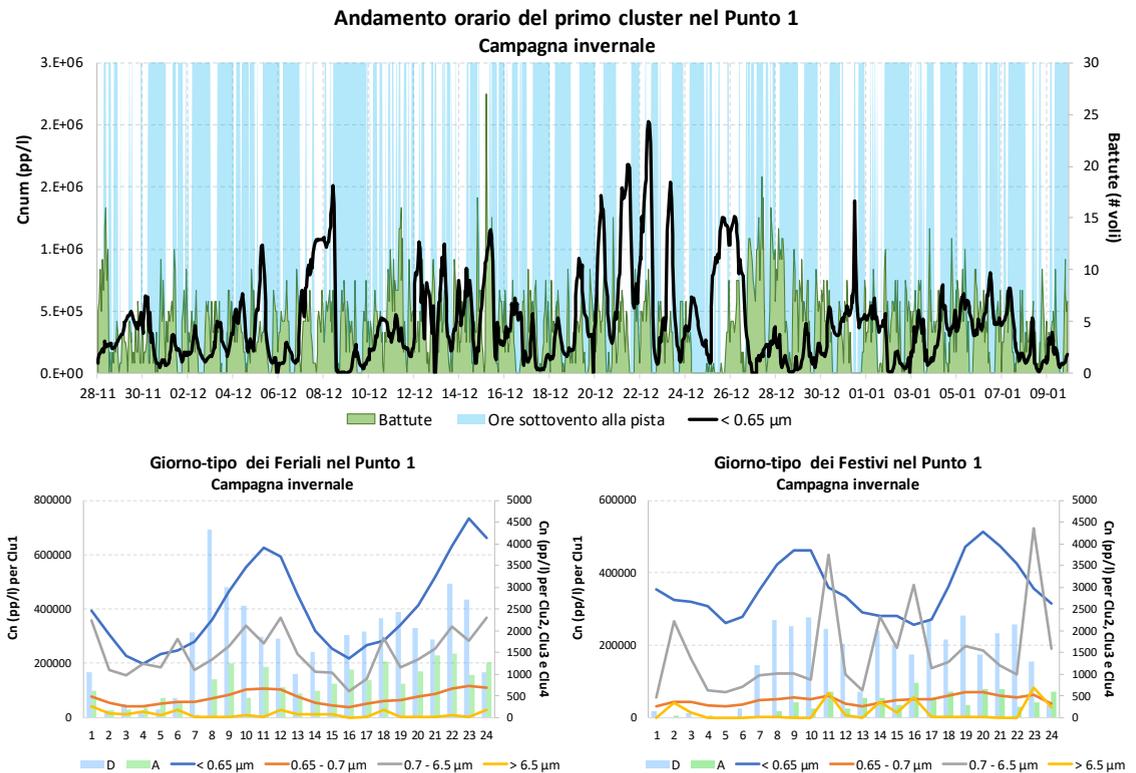


Figura 11.4.11. - Andamento orario del primo cluster (sopra) e giorno tipo dei feriali (sotto a sinistra) e dei festivi (sotto a destra) dei cluster individuati insieme all'informazione delle tracce radar.

Interpolando le concentrazioni numeriche misurate da OPC e UFP, sotto l'ipotesi di equivalenza tra diametro di light-scattering e diametro aerodinamico, è stato possibile elaborare le funzioni di distribuzione dimensionale numerica e volumetrica delle particelle a partire da quelle con diametro aerodinamico maggiore o uguale a 6 nm. La concentrazione numerica delle

particelle diminuiva all'aumentare del diametro aerodinamico, come tipicamente accade: nel Punto 1 si è avuto all'incirca la stessa concentrazione numerica nella prima classe (36888729 pp/l e 35456990 pp/l, rispettivamente per la campagna estiva e quella invernale), con concentrazioni superiori rispetto a quanto misurato d'estate nel Punto 4 (10240223 pp/l); ciò ha

potuto suggerire la presenza di una fonte di produzione di particelle ultrafini nel Punto 1 a differenza del Punto 4. Tuttavia, poiché la concentrazione di massa è fortemente dipendente dal volume, sono le particelle di dimensioni maggiori ad avere un ruolo importante nella determinazione della concentrazione ponderale e questo giustifica la mancanza di differenze nelle concentrazioni gravimetriche del PM<sub>10</sub> tra i vari siti. Elaborando poi i dati al minuto con le informazioni ricavate dalle tracce radar si sono ottenuti i grafici della Figura 11.4.12 che mostrano le distribuzioni dimensionali numeriche e volumetriche elaborate nel Punto 1 (più a ridosso della pista) nei periodi di presenza e assenza di voli, nelle due campagne di monitoraggio, ricavati selezionando solo i minuti in cui sono state registrate le battute degli aerei. La forma delle due distribuzioni è la stessa descritta precedentemente, con valori assoluti diversi. Le concentrazioni numeriche raggiungono valori non confrontabili tra i periodi di presenza e assenza dei voli, rispettivamente 89545232 pp/l e 37914934 pp/l in estate e 83302538 pp/l e 40947467 pp/l, rispettivamente, in inverno, sottolineando l'influenza del passaggio degli aeromobili sul punto in esame. Tale influenza non viene ravvisata invece nel Punto 4 con grafici della

distribuzione numerica sostanzialmente coincidenti nei due periodi (12706936 pp/l e 12186436 pp/l rispettivamente al passaggio degli aerei e senza passaggio, per la prima classe dimensionale). Per il Punto 1, il rapporto tra le concentrazioni volumetriche, tra periodi con passaggi aerei e senza, sulla moda di accumulazione è stato 1.1 e sulla moda coarse 2.6, nel periodo estivo; nel periodo invernale tali rapporti sono stati 1.1 e 1.6 rispettivamente. Ciò sembra indicare che il passaggio degli aerei abbia avuto anche un'influenza sulla frazione coarse a causa delle turbolenze create dal risollevarsi della polvere dal suolo al passaggio degli aerei, che a loro volta producono polvere di tale frazione, sia in fase di decollo che di atterraggio, a causa dell'usura degli pneumatici. Invece, la distribuzione volumetrica elaborata per i periodi di passaggio degli aerei sopra il Punto 4 è sempre inferiore a quella elaborata in assenza di voli. Ciò sembra confermare che in quel punto, ovvero nei pressi del cimitero di Orio al Serio, e per analogia in tutti gli altri punti ad esclusione del Punto 1, il passaggio degli aerei non abbia nessuna influenza.

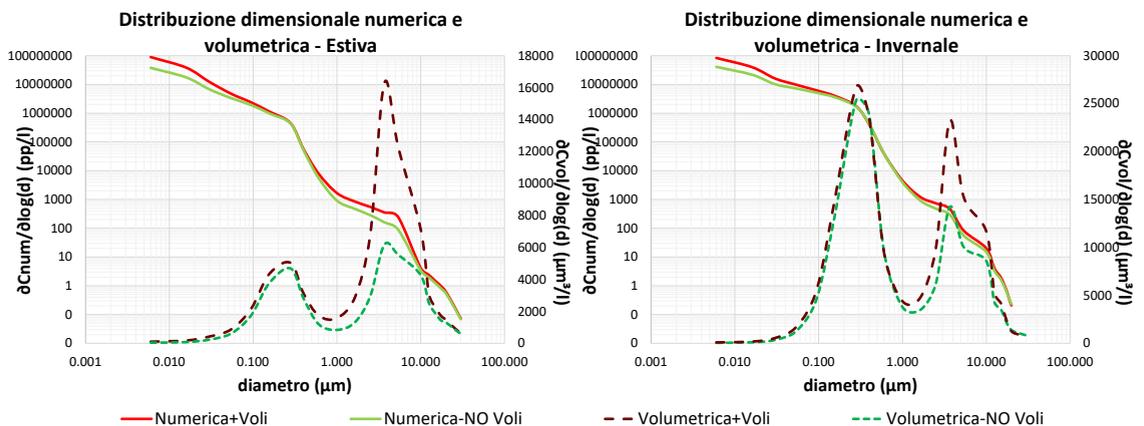


Figura 11.4.12. Distribuzione dimensionale numerica e volumetrica nel Punto 1 nei due periodi di monitoraggio, elaborate in presenza (linee rosse e bordeaux) e assenza di voli (linee verde chiaro e scuro).

Nonostante la forte evidenza che gli aeroporti siano un'importante sorgente di UFP, resta complicato riconoscere il fingerprint associato alla distribuzione numerica a causa della natura semi-volatile dei composti emessi dagli aerei, dei possibili meccanismi di formazione di aerosol secondario, degli effetti di diluizione dall'emissione all'immissione, piuttosto che la presenza di altre sorgenti con strutture modali simili, come il traffico stradale (Masiol e Harrison, 2014). Tenendo in considerazione le esperienze di letteratura, il dataset a disposizione è stato ulteriormente elaborato attraverso l'applicazione di tecniche di source apportionment tramite l'applicazione di EPA-PMF5 (Paatero et al., 1994; Hopke, 2003; Ogulei et al., 2007; Harrison et al., 2011). Per tutta la trattazione analitica si rimanda alla relazione pubblicata (Colombi et. Al., 2018).

Come dati di input al modello si sono considerate le concentrazioni numeriche differenziali orarie a partire da 6 nm; le particelle grossolane sono state sommate nella classe " $> 15 \mu\text{m}$ ". Le incertezze associate alle concentrazioni numeriche di input sono state calcolate in accordo con il metodo empirico proposto da Ogulei et al. (2007). Come variabile totale è stata selezionata la concentrazione numerica totale delle particelle (PNC) e marcata come debole per evitare di guidare strettamente l'individuazione dei profili. Sono stati effettuati 3 tipi di elaborazioni (run): Punto 1 nel periodo estivo, Punto 4 nel periodo estivo e Punto 1 nel periodo invernale. Il riconoscimento dei fattori risultanti è stato effettuato osservando le caratteristiche modali delle distribuzioni risolte, il comportamento del giorno-tipo, la direzionalità dei fattori rispetto la direzione del vento, il contributo del fattore al PNC, osservando il trend orario, e per confronto con i lavori di letteratura sopra menzionati.

Per tutti e 3 i run la miglior soluzione è stata l'identificazione di 10 fattori, alcuni dei quali con conformazione simile per pattern e fingerprint: per questo

motivo e per semplificarne dell'esposizione, i fattori simili sono stati raggruppati. Per la stagione estiva sono stati quindi risolti 6 fattori sia nel Punto 1 che nel Punto 4: la nucleazione, spiegata sostanzialmente da particelle nanometriche e il cui comportamento, nel Punto 1, è fortemente correlato al trend giornaliero del traffico aereo; l'aerosol secondario inorganico (Inorganic SA), caratterizzata sostanzialmente da particelle della moda di accumulazione, comportamento che si evince anche dal pattern diurno; il traffico stradale, suddiviso nella componente di fresca emissione (Fresh Road Traffic), caratterizzata da particelle nanometriche, e in quella invecchiata (Aged Road Traffic), caratterizzata da particelle submicrometriche; l'aerosol secondario arricchito in ozono ( $\text{O}_3$  rich. SA), che tiene conto dell'importante ruolo della fotochimica nella formazione di ozono, con un pattern crescente nelle ore centrali della giornata; un fattore (Resusp.+Ind.) che racchiude l'insieme delle particelle originate da azioni meccaniche e quindi riconducibile al risollevarlo ed alle attività industriali in genere, con una composizione dimensionale mista. Elaborando gli output della PMF5 sulla base della varianza spiegata di ciascuna classe dimensionale da parte dei fattori riconosciuti, è stata ricostruita la Figura 11.4.13, nella quale si possono facilmente riconoscere le familiarità tra fattori nei 3 run. Il fingerprint della nucleazione ha messo in evidenza la stessa tipologia di composizione nel passaggio da stagione estiva ad invernale nel Punto 1 e differente dal Punto 4, ad indicare una diversa causalità, ovvero l'influenza degli aerei nel Punto 1 rispetto al Punto 4. Il traffico stradale, invece, che nei due siti ha la stessa tipologia di formazione ha mostrato un'impronta del tutto simile, così come la componente industriale.

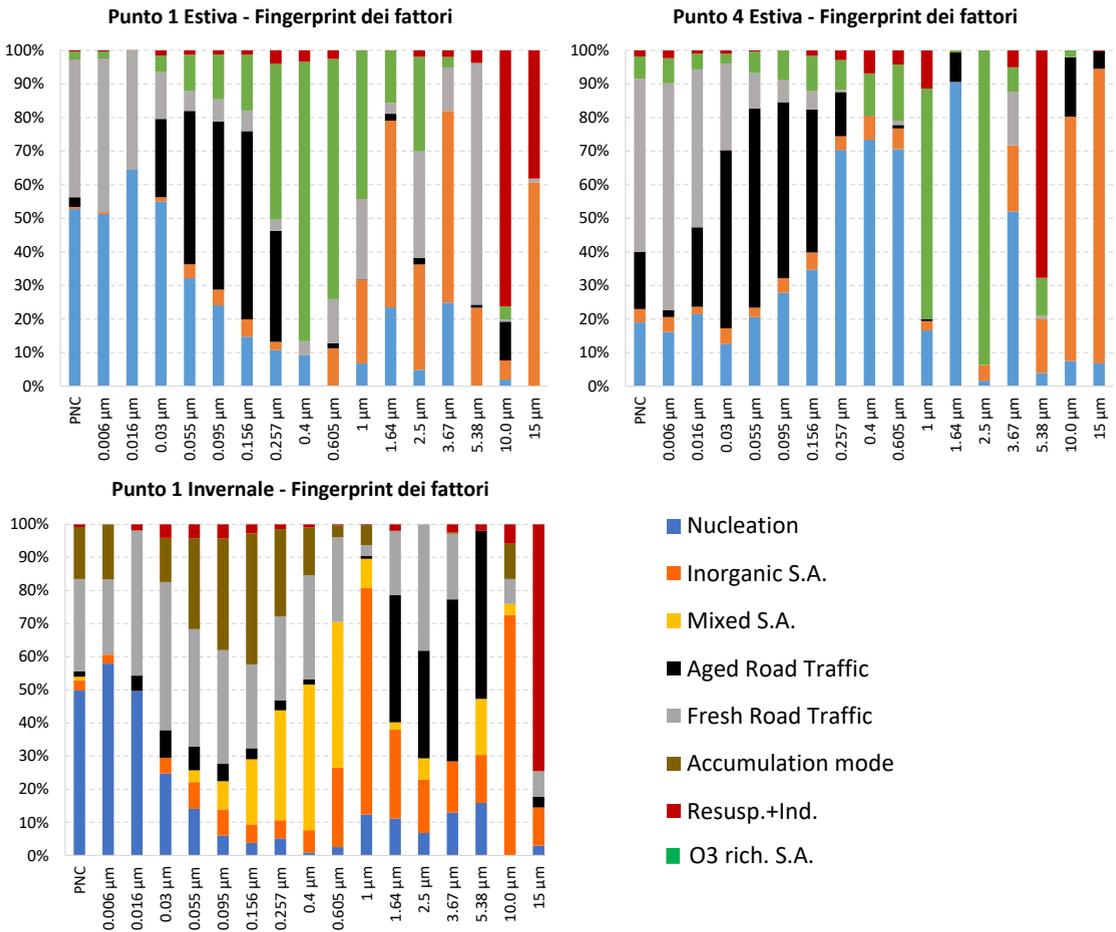


Figura 11.4.13. Fingerprint dei fattori.

L'osservazione dei fingerprint ha evidenziato una certa familiarità tra alcuni fattori, tra i quali la nucleazione con la stessa tipologia di composizione nel passaggio da stagione estiva ad invernale nel Punto 1 e differente dal Punto 4, ad indicare una diversa causalità, ovvero presumibilmente l'influenza degli aerei nel Punto 1 rispetto al Punto 4. Il traffico stradale, invece, che nei due siti ha la stessa tipologia di formazione ha mostrato

un'impronta del tutto simile, così come la componente industriale.

La nucleazione è il principale processo di produzione delle particelle fini dell'aerosol atmosferico, essendo costituita principalmente da particelle nell'intorno dei 10 nm, costituendone la componente principale della concentrazione numerica totale. Inoltre, è noto da letteratura che i fenomeni di nucleazione sono

verosimilmente associati ai passaggi aerei, in particolare nei pressi delle piste di decollo e atterraggio, e quando il punto si trova sottovento ai mezzi stessi; i risultati ottenuti in questa campagna confermano quanto riportato in letteratura, infatti il contributo della nucleazione al PNC è stato del 19% nel Punto 4 e del 50-53% (rispettivamente in inverno e in estate) nel Punto 1, cioè a ridosso del sedime aeroportuale. Cercando perciò di quantificare il contributo di un fattore così impattante alla concentrazione di massa del PM<sub>10</sub> sono stati applicati gli stessi ragionamenti utilizzati per la ricostruzione della concentrazione di PM a partire dalla concentrazione numerica, trovando così un contributo al PM<sub>10</sub> del 5% nel Punto 1 in entrambe le campagne e del 2% al Punto

## Conclusioni

Ripercorrendo temporalmente i monitoraggi effettuati nel corso degli anni e facendo tesoro dell'esperienza acquisita, i risultati possono essere suddivisi in tre livelli: approccio tradizionale con parametri convenzionali, misura di microinquinanti tramite campionatori passivi, valutazione della distribuzione dimensionale del particolato.

Questi tre livelli hanno caratteristiche differenti, tra cui il tempo di mediazione delle misure. Infatti, le misure convenzionali con laboratorio mobile, poiché hanno lo scopo di fare un confronto con i limiti imposti dalla normativa vigente, archiviano le misure come concentrazioni orarie; la misura del PM<sub>10</sub> e/o del PM<sub>2,5</sub> e la relativa eventuale speciazione, a meno di particolari applicazioni, permette una raccolta giornaliera di dati. Ciò non toglie che gli analizzatori possano essere programmati per l'archiviazione al minuto ma la loro installazione per misure di immissione, a causa della molteplicità di sorgenti che intercorrono nella loro produzione, porterebbe il rischio di produrre dati molto rumorosi, rendendone complessa la validazione. La mancanza di marker specifici tra le misure convenzionali rende questo tipo di approccio insufficiente se esclusivo nella determinazione dell'impatto di un aeroporto sulla QA circostante.

Il campionamento dei microinquinanti tramite fiale passive ha il vantaggio di consentire l'effettuazione di mappature e quindi poter coprire simultaneamente un'ampia scala spaziale ma l'informazione ha una risoluzione troppo elevata (da qualche giorno ad una settimana) da essere utilizzata per la valutazione generale dell'impatto di una sorgente non potendone discriminare la puntualità, ad esempio il passaggio di mezzi, che può caratterizzare un giorno tipo.

L'impiego di strumentazione non convenzionale come i contatori di particelle, per loro natura e non dovendo rispondere a esigenze normative, consente di spingere le elaborazioni delle concentrazioni numeriche a livello del minuto permettendo quindi correlazioni anche con le tracce radar relative al passaggio degli aeromobili. L'utilizzo poi di strumenti più sofisticati come gli UFP permette di valutare anche i fenomeni di nucleazione, processo associato ai passaggi degli aerei e quindi verosimilmente riconoscibile in queste tipologie di applicazione. Tuttavia, nonostante possa essere evidenziato un impatto del traffico aereo in termini di produzione di particelle ultrafini, poiché la concentrazione di massa è fortemente dipendente dal volume e quindi sono le particelle di dimensioni maggiori ad avere un ruolo importante nella determinazione della concentrazione ponderale, si ravvisa un impatto modesto sulla concentrazione in massa del PM<sub>10</sub>, come confermato anche da dati di letteratura.

Sulla base della molteplicità dei dati raccolti nel corso degli anni è possibile effettuare una valutazione sintetica della qualità dell'aria nei pressi di aeroporti, evidenziando come, pur essendo l'aeroporto una sorgente emissiva importante, non risulta nell'intorno una differenziazione sensibile dello stato di qualità dell'aria rispetto ad altre aree del territorio provinciale.

## Appendice: Strumenti e metodi di campionamento

### *Laboratorio mobile*

Sostanzialmente, tutte o quasi le campagne effettuate dal 1993 ad oggi hanno previsto l'utilizzo di un laboratorio mobile: in alcuni casi quale riferimento esclusivo, in altri quale strumento di supporto. In generale i laboratori mobili in dotazione ad ARPA Lombardia sono dotati di strumentazione del tutto simile a quella presente nelle stazioni fisse della RRQA; gli analizzatori automatici installati rispondono, infatti, alle caratteristiche previste dalla legislazione vigente all'epoca della misura e comunque recepite dall'attuale normativa (D.Lvo 155/2010).

Un laboratorio mobile è tipicamente attrezzato con strumentazione per il rilevamento di: biossido di zolfo (SO<sub>2</sub>), monossido di carbonio (CO), ossidi di azoto (NO<sub>x</sub>), ozono (O<sub>3</sub>), benzene, toluene, PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub>, oltre ai principali parametri meteorologici (temperatura, pressione atmosferica, pioggia, radiazione solare, velocità e direzione del vento).

Secondo la UNI EN 12341/2014, la misura del PM<sub>10</sub> e/o PM<sub>2,5</sub> viene effettuata con l'utilizzo di campionatori sequenziali e pesata gravimetrica dei filtri utilizzati per la raccolta della polvere, prima e dopo l'esposizione; a meno di particolari esigenze, questo tipo di strumento viene programmato per fornire dati giornalieri.

Anche il posizionamento di un laboratorio mobile è stato collocato rispettando i criteri di ubicazione su macroscale e su microscale per il posizionamento delle stazioni fisse di rilevamento contenuti nell'Allegato III del Decreto Legislativo 155 del 13 agosto 2010.

Per alcune campagne, è stata effettuata la speciazione chimica del PM<sub>10</sub>, ovvero i filtri raccolti sono stati sottoposti ad analisi per la determinazione di elementi, IPA, ioni inorganici, componente carboniosa (OC-EC) e levoglucosano.

La determinazione degli elementi, tra cui il piombo, viene effettuata mediante un analizzatore a Fluorescenza a

Raggi X (XRF, Panalytical Epsilon 5). In relazione alle caratteristiche del detector, è possibile rilevare la radiazione X di elementi con numero atomico superiore a 11, ovvero: alluminio (Al), silicio (Si), fosforo (P), zolfo (S), cloro (Cl), potassio (K), calcio (Ca), titanio (Ti), vanadio (V), cromo (Cr), manganese (Mn), ferro (Fe), nichel (Ni), rame (Cu), zinco (Zn), bromo (Br), rubidio (Rb), stagno (Sn), Bario (Ba), piombo (Pb), antimonio (Sb) e stronzio (Sr). La conoscenza della concentrazione di tali elementi, attraverso le opportune elaborazioni, consente di determinare la frazione del PM<sub>10</sub> relativa alla risospensione di polvere dal suolo piuttosto che all'emissione da parte di sorgenti industriali o altro.

Mediante Gas-Cromatografia con detector a Spettrometria di Massa (GC-MS) vengono determinati i 12 IPA in fase particolato più importanti dal punto di vista tossicologico, acenafilene, benzo(a)antracene, crisene, benzo(b)fluorantene, benzo(k)fluorantene, benzo(j)fluorantene, benzo(a)pirene, indeno, dibenzo(a,h)antracene, benzo(g,h,i)perilene, dibenzo(a,e)perilene, e il naftalene, presente nella sola fase gassosa e campionabile tramite cartuccia a diffusione, con carbone attivo quale sostanza sensibile.

La valutazione della componente ionica (cloruri, fosfati, fluoruri, nitrati, solfati, ammonio, sodio, calcio potassio magnesio), viene determinata in Cromatografia Ionica (IC, Metrohm-881 Compact IC pro) e permette la stima del contributo della componente secondaria inorganica del particolato, quindi meno correlata alle sorgenti strettamente locali. In particolare, i nitrati sono indicativi delle sorgenti da combustione (autoveicoli e riscaldamento) e raggiungono le maggiori concentrazioni in inverno in quanto le basse temperature ne favoriscono la condensazione. I solfati, invece, pur essendone favorita la formazione nella stagione estiva, a causa dall'intensa radiazione solare, mantengono un contributo pressoché costante durante tutto l'anno. In atmosfera, nitrati, solfati ed ammonio si legano al particolato sotto forma di sali quali ammonio nitrato ed ammonio solfato.

La determinazione analitica della componente carboniosa del PM, ovvero carbonio organico (OC) ed elementare (EC), viene effettuata con metodo termo-

ottico, ovvero TOT/TOR Thermal-Optical Transmittance/Reflectance (Sunset Laboratory), secondo i criteri definiti dalla norma CEN/TR 16243:2011, con applicazione del protocollo NIOSH-Like (D.M. 25/05/2015): la frazione carboniosa del PM viene volatilizzata, ossidata e poi quantificata sulla base del segnale di CO<sub>2</sub> prodotto nel processo analitico. La risposta del segnale viene poi convertita in termini di concentrazione di EC e OC: mentre la prima componente costituisce un inquinante primario, la frazione OC include sia emissioni primarie che aerosol organici secondari.

Il levoglucosano è uno zucchero anidro che si forma a seguito della decomposizione termica della cellulosa durante la sua combustione ed è quindi emesso come particolato; per questo motivo rappresenta un marker specifico della combustione di biomasse nel PM (Simoneit et al.,1999). Viene determinato in IC con l'aggiunta di un detector amperometrico (IC-PAD, Metrohm). A causa del consumo di legna nel riscaldamento residenziale, le concentrazioni di levoglucosano e dei suoi isomeri (ad esempio mannosano e galattosano) sono in genere alte durante i mesi invernali, mentre generalmente al di sotto dei limiti di rilevabilità strumentale durante i mesi estivi.

#### *Le fiale passive*

In diverse campagne sono stati utilizzati i campionatori passivi, ovvero dispositivi costituiti da una cartuccia sulla quale gli inquinanti di interesse vengono adsorbiti. La cartuccia è posta all'interno di un cilindro di materiale plastico poroso che permette all'aria di penetrare per diffusione al suo interno con velocità di diffusione nota. Ciascun campionatore viene quindi esposto in campo, riparato da una apposita piccola casetta per proteggerlo dagli agenti atmosferici ma senza impedimento alla libera circolazione dell'aria. Al termine dell'esposizione la cartuccia viene analizzata in laboratorio per ottenere la concentrazione media degli inquinanti rilevabili nel periodo di esposizione. In particolare, la cartuccia per la determinazione dell'NO<sub>2</sub> è costituita da polietilene microporoso rivestito di trietanolammina (TEA) umida; il biossido di azoto è chemiadsorbito dalla TEA sotto forma

di ione nitrito, determinato poi mediante spettrofotometria visibile. Per le aldeidi, ovvero sostanzialmente formaldeide e acetaldeide, la sostanza sensibile è 2,4 dinitrofenilidrazina. L'analisi di laboratorio è stata condotta in Cromatografia Liquida con detector Massa-Massa (LC/MS-MS). Infine, per quanto riguarda i COV, ovvero benzene, toluene, etilBenzene, meta/para-xilene e orto-xilene, così come il naftalene, la cartuccia a diffusione ha il carbone attivo quale sostanza sensibile. L'analisi di laboratorio è stata condotta in GC-MS. Tipicamente, le fiale vengono esposte con frequenza settimanale e, per ciascun parametro, almeno due in parallelo per la verifica di riproducibilità.

I COV rappresentano un'ampia gamma di composti organici (tra i quali ricadono anche le aldeidi) provenienti da fonti sia antropiche che naturali, i quali possono reagire fotochimicamente con gli ossidi di azoto in presenza di radiazione solare e contribuire all'incremento della formazione di ozono come inquinante secondario. Tra le numerose sostanze organiche volatili presenti in aria, le aldeidi rivestono notevole interesse sia per le loro proprietà tossicologiche sia perché sono precursori di altri inquinanti fotochimici. Le aldeidi oltre che da fonti naturali, possono essere emesse direttamente da fonti mobili (emissioni veicolari) o stazionarie (processi industriali), oppure possono formarsi in atmosfera in seguito alla foto-ossidazione degli idrocarburi. Le reazioni atmosferiche di formazione delle aldeidi avvengono principalmente nel periodo diurno, ma hanno luogo anche nel periodo notturno, quando sono presenti ossidanti come l'ozono ed il radicale nitrato. La formaldeide, in particolare, è un composto organico in fase di vapore, caratterizzato da un odore pungente. Tutti questi composti sono costituiti da atomi di carbonio e idrogeno e, nelle aldeidi, anche da un atomo di ossigeno e quindi hanno una comune sorgente diffusa, ovvero le combustioni da motori in genere, che utilizzano combustibili fossili perlopiù in fase liquida.

Il naftalene è un IPA a due anelli benzenici fusi, ovvero che condividono due atomi di carbonio. A temperatura ambiente è un solido cristallino bianco dall'odore intenso e caratteristico. Poco solubile in acqua, si scioglie abbastanza bene nell'etanolo e ancora meglio nei

solventi organici. Può facilmente sublimare. Si ottiene per distillazione dal catrame, dal carbone e dal petrolio. Oltre all'impiego nell'industria chimica principalmente come materia prima per la sintesi dell'anidride ftalica e di coloranti, trova uso domestico anche come insetticida, specialmente contro le tarme. In passato è stato utilizzato come combustibile nel campo automobilistico e ferroviario.

#### Strumentazione non convenzionale

Alcune campagne hanno visto l'applicazione di strumentazione non convenzionale.

Fra queste, nella campagna del 1993 a Milano-Linate è stato utilizzato un DOAS, acronimo di Differential Optical

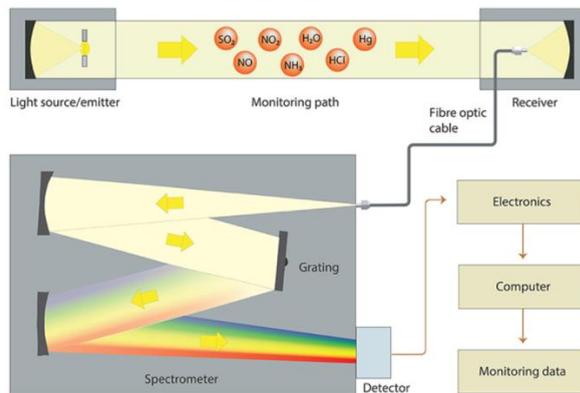


Figura 11.4.14. Schema di funzionamento del DOAS in dotazione (<https://www.opsis.se/en/Products/Monitoring-Methods/UV-DOAS-Technique>).

In diverse campagne si è scelto di affiancare la misura gravimetrica del PM con il conteggio per classi delle particelle stesse mediante l'utilizzo di Optical Particle Counters (OPC, Grimm, mod. 107). L'OPC è in grado di determinare la concentrazione numerica delle particelle in funzione delle loro dimensioni. Il principio di funzionamento del sistema OPC (Figura 11.4.15) consiste nel condurre il flusso d'aria campione in una opportuna camera di misura; un fascio laser investe l'aria campione ed un rivelatore posto a 90° rispetto alla

Absorption Spectroscopy (Figura 11.4.14) che calcola la concentrazione di alcuni inquinanti aerodispersi tramite la misura dell'assorbimento differenziale di un fascio aperto di radiazione ultravioletta e visibile da parte delle molecole delle specie considerate lungo un cammino ottico. Essenzialmente è costituito da una lampada allo xenon in pressione per l'emissione del fascio di radiazione, uno specchio posto all'estremità del cammino ottico per la riflessione del fascio, un ricevitore associato ad uno spettrometro per l'analisi della radiazione di ritorno, un calcolatore per la gestione strumentale e l'elaborazione dei dati.

direzione del fascio laser rileva la luce diffusa dalle particelle; ogni impulso rilevato corrisponde al passaggio di una particella e l'altezza dell'impulso è correlata con la sua dimensione. Pertanto, l'OPC è in grado di contare le particelle con dimensioni superiori a  $0.25 \pm 0.3 \mu\text{m}$ , in base alle caratteristiche di costruzione, e di classificarle in un certo numero di classi dimensionali, con frequenza al minuto. Al fine di evitare il conteggio di eventuali goccioline d'acqua aerodisperse, questi strumenti sono dotati di sistemi di essiccazione fondati su differenti

tipologie sulla base delle scelte dei costruttori (ad esempio diluizione dell'aria campione con aria secca e pulita, riscaldamento dell'aria campione, gel di silice, etc.). La misura delle concentrazioni numeriche per classe dimensionale consente di ricostruire la curva di distribuzione dimensionale. A partire dal numero delle particelle per ogni classe dimensionale, facendo ipotesi sulla densità delle particelle stesse, si può stimare la concentrazione di massa del PM<sub>10</sub> attraverso opportuni algoritmi (Colombi et al., 2013).

In linea teorica, nell'ipotesi di particelle sferiche di dimensioni note e densità delle stesse, funzione solo della loro dimensione, il problema si semplifica nel calcolo:

$$M = \sum_i^n \frac{\pi}{6} d_i^3 \rho_i \varepsilon_i C_i$$

dove:

$M$  è la concentrazione del PM<sub>10</sub>,

$n$  è il numero di classi dimensionali rilevato dall'OPC considerato,

$d_i$  è il diametro delle particelle della  $i$ -esima classe dimensionale,

$\rho_i$  è la densità delle particelle della  $i$ -esima classe,

$\varepsilon_i$  è l'efficienza di raccolta che definisce la frazione del PM di interesse,

$C_i$  è la concentrazione numerica della  $i$ -esima classe.

Tuttavia, nella realtà le particelle non sono sferiche e di conseguenza la densità non è funzione solamente del diametro; per questo motivo con gli OPC non si può misurare la massa del particolato ma solo stimarla, attraverso ulteriori ipotesi sulla funzione che rappresenta la densità.

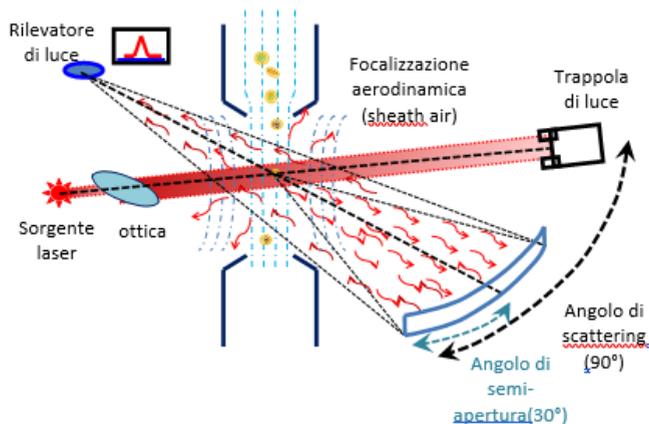


Figura 11.4.15. Principio di funzionamento dell'OPC.

Nel corso dell'ultimo monitoraggio effettuato, la campagna a Orio al Serio, è stato installato per un certo periodo, in parallelo all'OPC, uno strumento per la misura della concentrazione numerica delle particelle con diametro aerodinamico a partire da 6 nm (UFP) e della

loro distribuzione dimensionale fino a 10  $\mu\text{m}$ , aumentando così lo spettro della caratterizzazione fisica del particolato. Tale strumento conta le particelle attraverso la misura di impulsi elettrici a bassa pressione (Dekati mod. Elpi+). Il principio di funzionamento è

schematicamente il seguente (Figura 11.4.16): le particelle che vengono aspirate attraverso la testa di prelievo tramite una pompa operante a 10 l/min, passano attraverso una corona (charger) e vengono così caricate ad un livello di carica noto; dopo il charger le particelle passano attraverso un impattore a cascata a bassa pressione, che le classifica, in base alla loro dimensione

aerodinamica, in 14 classi mediante opportuni elettrometri. La classificazione è effettuata mediante la misura della corrente elettrica registrata dall'elettrometro ed è direttamente proporzionale alla concentrazione numerica delle particelle su quello stadio.

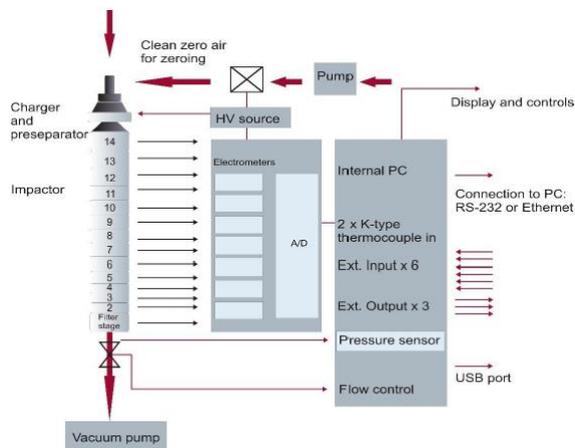


Figura 11.4.16. Schema operativo dello strumento Elpi+.

## Bibliografia

- Agrawal H., Sawant A. A., Jansen K., J. Miller W., Cocker D. R., Characterization of chemical and particulate emissions from aircraft engines, *Atmospheric Environment*, Volume 42, 2008, 4380-4392.
- Barbosa S., Ayers E., Belknap M., Air monitoring study at Los Angeles International Airport, District, S.C.A.Q.M. (Ed.), 1999, 39.
- Brown R.C., Miake Lye R.C., Anderson M.R., Kolb C.E., Effect of aircraft exhaust sulfur emissions on near field plume aerosols, *Geophysical Research Letters*, Volume 23, 1996, 3607–3610.
- Bastress E. K., Impact of aircraft exhaust emissions at airports, *Environmental Science and Technology*, Volume 7 (9), 1973, 811–816.
- Colombi C., Angius S., Gianelle V., Lazzarini M., Particulate matter concentrations, physical characteristics and elemental composition in the Milan underground transport system, *Atmospheric Environment*, Volume 70, January 2013, 166-178.
- Colombi C., Algieri A., Monitoraggio speciale della qualità dell'aria nell'intorno dell'aeroporto Caravaggio di Orio al Serio – 2017: Relazione finale, [https://www.arpalombardia.it/qariafiles/RelazioniMM/RMM\\_OrioalSerio\\_20171231.pdf](https://www.arpalombardia.it/qariafiles/RelazioniMM/RMM_OrioalSerio_20171231.pdf).
- Delfino R. J., Sioutas C., and Malik S., Potential Role of Ultrafine Particles in Associations between Airborne Particle Mass and Cardiovascular Health, *Environmental Health Perspectives*, Volume 113 (8), 2005, 934-946.
- Englert N., Fine particles and human health—a review of epidemiological studies, *Toxicology Letters*, Volume 149, 2004, 235–242.
- Federal Aviation Administration, Selected source materials and annotated bibliography on the topic of hazardous air pollutants associated with aircraft, airports, and aviation, July 1, 2003.
- Harrison R. M., Beddows D. C. S., Dall'Osto M., PMF Analysis of wide-range particle size spectra collected on a major highway, *Environmental Science and Technology*, Volume 45, 2011, 5522–5528.
- Herndon S.C., Onasch T.B., Frank B.P., Marr L.C., Jayne J.T., Canagaratna M.R., Grygas J., Lanni T., Anderson B.E., Worsnop D., Miake-Lye R.C., Particulate emissions from in-use commercial aircraft, *Aerosol Science and Technology*, Volume 39, 2005, 799–809.
- Heywood J., Gas turbine combustor modeling for calculating nitric oxide emissions, Abstract book of 7th Propulsion Joint Specialist Conference, 14-18 June 1971, <https://doi.org/10.2514/6.1971-712>.
- Hopke P. K., Recent development in receptor modelling, *Journal of Chemometric*, Volume 17, 2003, 255-265.
- Hsu H. H., Adamkiewicz G., Houseman E. A., Vallarino J., Melly S. J., Wayson R. L., Spengler J. D., Levy J. I., The relationship between aviation activities and ultrafine particulate matter concentrations near a mid-sized airport, *Atmospheric Environment*, Volume 50, 2012, 328-337.
- Hu S., Fruin S., Kozawa K., Mara S., Winer A. M., Paulson S. E., Aircraft emission impacts in a neighborhood adjacent to a general aviation airport in Southern California, *Environmental Science and Technology*, Volume 43, 2009, 8039–8045.

- Ibald-Mulli A, Wichmann H. E., Kreyling W., Peters A., Epidemiological Evidence on Health Effects of Ultrafine Particles, *Journal of Aerosol Medicine*, Volume 15 (2), 2004.
- ICAO (International Civil Aviation Organization), Airport Air Quality Manual, First Edition – 2011, [https://www.icao.int/publications/Documents/9889\\_cons\\_en.pdf](https://www.icao.int/publications/Documents/9889_cons_en.pdf).
- Jia C., Batterman S., A Critical Review of Naphthalene Sources and Exposures Relevant to Indoor and Outdoor Air, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, Volume 7, 2010, 2903-2939.
- Kinsey J. S., Dong Y., Williams D. C., Logan R., Physical characterization of the fine particle emissions from commercial aircraft engines during the aircraft particle emissions experiment (APEX) 1 to 3, *Atmospheric Environment*, Volume 44, 2010, 2147–2156.
- Klapmeyer M. E., Marr L. C., CO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, and particle emissions from aircraft and support activities at a regional airport, *Environmental Science and Technology*, Volume 46, 10974–10981, 2012.
- Lobo P., Hagen D. E., Whitefield P. D., Measurement and analysis of aircraft engine PM emissions downwind of an active runway at the Oakland International Airport, *Atmospheric Environment*, Volume 61, 2012, 114–123.
- Lyons T. J., Ercoline W., O’Toole K., Grayson K., Aircraft and Related Factors in Crashes Involving Spatial Disorientation: 15 Years of U.S. Air Force Data, *Aviation, Space, and Environmental Medicine*, Volume 77 (7), 2006, pp. 720-723(4).
- Masiol M., Harrison R. M., Aircraft engine exhaust emissions and other airport-related contributions to ambient air pollution: a review, *Atmospheric Environment*, Volume 95, 2014, 409–455.
- Masiol M., Harrison R. M., Vu T. V., Beddows D. C. S., Sources of sub-micrometre particles near a major international airport, *Atmospheric Chemistry and Physics*, Volume 17, 2017, 12379-12403.
- Mazaheri M., Johnson G. R., and Morawska L., Particle and gaseous emissions from commercial aircraft at each stage of the landing and takeoff cycle, *Environmental Science and Technology*, Volume 43, 2009, 441–446.
- Nemmar A., Hoylaerts M. F., Hoet P. H. M., Dinsdale D., Smith T., Xu H., Vermynen J., Nemery B., Ultrafine Particles Affect Experimental Thrombosis in an In Vivo Hamster Model, *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, Volume 166 (7), 2002.
- Nichols T., Ostry M. E., Fuller M. R., Marking ground targets with radio transmitters dropped from aircraft, Research Note NC-274. St. Paul, 1981 - [fs.usda.gov](http://fs.usda.gov)
- Oberdorster G., Sharp Z., Atudorei V., Elder A., Gelein R., Kreyling W., Cox C., Translocation of inhaled ultrafine particles to the brain, *Inhalation Toxicology*, Volume 16, 2004, 437-445.
- Ogulei D., Hopke P. K., Chalupa D. C., Utell M. J., Modeling Source Contributions to Submicron Particle Number Concentrations Measured in Rochester, New York, *Aerosol Science and Technology*, Volume 41 (2), 2007, 179-201.
- Paatero P., Tapper U., Positive matrix factorization: a nonnegative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, Volume 5, 1994, 111–126.
- Parker J., Air Pollution at Heathrow Airport, London: April-September 1970, *SAE Transactions*, Volume 80 (2), 1971, 1366-1388.

Petzold A., Stein C., Nyeki S., Gysel M., Weingartner E., Baltensperger U., Giebl H., Hitztenberger R., Doppelheuer A., Vrchoťický S., Puxbaum H., Johnson M., Hurley C. D., Marsh R., Wilson C. W., Properties of jet engine combustion particles during the PartEmiss experiment: Microphysics and Chemistry, *Geophysical Research Letters*, Volume 30 (13), 2003, 1719.

Shabad L. M., Smirnov G. A., Aircraft engines as a source of arcinogenic pollution of the environment [benzo(a)pyrene studies], *Atmospheric Environment*, Volume 6 (3), 1972, 153-164.

Simoneit B.R.T., Schauer J. J., Nolte C. G., Oros D. R., Elias V. O., Fraser M. P., Rogge W. F., Cass G. R., Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles, *Atmospheric Environment*, Volume 33, 1999, 173-182.

Stafoggia M., Cattani G., Forastiere F., di Bucchianico A. D. M., Gaeta A., Ancona C., Particle number concentrations near the Rome-Ciampino city airport, *Atmospheric Environment*, Volume 147, 2016, 264–273.

Tsani-Bazaca E., McIntyre A., Lester J., Perry R., Ambient concentrations and correlations of hydrocarbons and halocarbons in the vicinity of an airport, *Chemosphere*, Volume 11 (1), 1982, 11-23.

Unal A., Hu Y., Chang M. E., Odman M. T., Russell A. G., Airport related emissions and impacts on air quality: Application to the Atlanta International Airport, *Atmospheric Environment*, Volume 39, Issue 32, October 2005, 5787-5798.

Utell M. J., Frampton M. W., Acute Health Effects of Ambient Air Pollution: The Ultrafine Particle Hypothesis, *Journal of Aerosol Medicine*, Volume 13 (4), 2009.

Westerdahl D., Fruin S. A., Fine P. L., Sioutas C., The Los Angeles International Airport as a source of ultrafine particles and other pollutants to nearby communities, *Atmospheric Environment*, Volume 42, 2008, 3143-3155.

Wey C.C., Aircraft particle emissions experiment (APEX), NASA TM, 2006-214382.

Wey C.C., Anderson B.E., Wey C., Miake-Lye R.C., Whitefield P., Howard R., Overview on the aircraft particle emissions experiment, *Journal of Propulsion and Power* Volume 23 (5), 2007, 898–905.

Yu P. K. N., Cheung Y. P., Cheung T. M., Henry R. C., Identifying the impact of large urban airports on local air quality by nonparametric regression, *Atmospheric Environment*, Volume 38(27), September 2004, 4501-4507.

Zhu Y., Fanning E., Yu R. C., Zhang Q., Froines J. R., Aircraft emissions and local air quality impacts from takeoff activities at a large International Airport, *Atmospheric Environment*, Volume 45, 2011, 6526-6533.

## 11.5 CONTRIBUTO DEGLI INCENDI BOSCHIVI ALLE CONCENTRAZIONI DI PM<sub>10</sub> SUL TERRITORIO DELLA CITTÀ METROPOLITANA DI TORINO NEL MESE DI OTTOBRE 2017

F. Lollobrigida , M.M. Grosa , A. Pannocchia, C. Bussi , M. Fontana, A. Bruno, M. Maringo , M. Sacco, C. Bertello  
ARPA PIEMONTE

### RIASSUNTO

In Piemonte il mese di ottobre 2017 è stato caratterizzato da condizioni meteorologiche favorevoli allo sviluppo e alla successiva rapida propagazione degli incendi boschivi che hanno colpito soprattutto il territorio della Città Metropolitana di Torino. Durante la mattina del 27 ottobre, in particolare, il radar meteorologico installato sulla collina torinese ha rilevato la progressiva estensione del pennacchio di fumo prodotto dagli incendi dalla Valle di Susa - una delle aree maggiormente colpite dal fenomeno - verso le zone di pianura. Nei giorni più critici, vale a dire dal 24 al 27 ottobre, al fenomeno ha corrisposto un elevato aumento delle concentrazioni di particolato aerodisperso tanto che il PM<sub>10</sub> ha raggiunto nell'area urbana valori di media giornaliera dell'ordine di 200-300 µg/m<sup>3</sup> che non venivano misurati da almeno un decennio.

Allo scopo di stimare l'entità dello specifico contributo degli incendi al PM<sub>10</sub> è stata effettuata la determinazione del levoglucosano e del carbonio organico (OC) sui campioni giornalieri prelevati nelle stazioni dell'area metropolitana torinese e presso la stazione di Susa. I risultati hanno evidenziato che nei giorni di maggiore intensità degli incendi la concentrazione di levoglucosano è aumentata significativamente rispetto ai giorni precedenti, sia in termini assoluti che come percentuale sul PM<sub>10</sub>. Sulla base dei fattori di conversione levoglucosano - PM<sub>10</sub>, come da fonti di letteratura si è stimato che nei giorni più critici il contributo percentuale degli incendi boschivi al PM<sub>10</sub> in termini massici di componente primaria sia stato in media dell'ordine del 15- 20% nell'area urbana e del 25-30% a Susa.

Il confronto tra i dati rilevati dalla rete regionale di monitoraggio nell'area urbana torinese e negli altri tre capoluoghi della pianura piemontese che non sono stati interessati dal fenomeno (Novara, Vercelli e Alessandria) evidenzia che l'aumento delle concentrazioni di PM<sub>10</sub> a Torino nei giorni più critici è stato in media dell'ordine del 40% e quindi circa il doppio di quello stimabile sulla base del solo contributo primario. L'ipotesi che il contributo massiccio alla componente secondaria del PM<sub>10</sub> degli incendi boschivi sia stato significativo quanto quello primario è suffragata in primo luogo dall'andamento temporale della concentrazione di OC nel PM<sub>10</sub>, che ricalca sia a Torino che a Susa quello del levoglucosano; in secondo luogo dallo strumento di misura in continuo della concentrazione numerica di particelle, installato nella città di Torino (Ultrafine Particle Monitor 3031-TSI Inc.), che ha rilevato nei giorni più critici un significativo aumento del numero di particelle di dimensioni comprese tra 0,1 e 1 micron, intervallo che, rientrando all'interno del modo di accumulazione, segnala di norma l'intensificazione dei processi di formazione secondaria. L'ipotesi concorda inoltre con quanto riportato in recenti lavori secondo cui nel bacino padano, anche in condizioni emissive standard, il contributo secondario al particolato da parte della combustione di biomassa è quantitativamente confrontabile con quello primario.

**Parole chiave:** PM<sub>10</sub>, incendi boschivi

### ABSTRACT

In October 2017 the meteorology in Piedmont region was particularly favorable to development and fast spread of forest fires., which especially hit the province of Turin.

To mention one case in particular, in the morning of October, 27 the meteorological radar located on the Turin hill clearly showed that the plume of smoke gradually shifted from Susa Valley- one of the areas where the forest fires were more intense – to the plain.

During the most critical days - namely from October, 24 to October, 27 – a large increase of particulate matter concentration was reported, so much that PM<sub>10</sub> showed in Turin urban area daily means in the order of 200-300 µg/m<sup>3</sup> which have not been measured for at least ten years.

In order to estimate the contribution of forest fires to PM<sub>10</sub>, levoglucosan and organic carbon (OC) laboratory analysis was performed on daily samples of Turin urban area monitoring stations and Susa one. During days when forest fires were stronger the results show that levoglucosan significantly increased as both numerical concentration and percentage in PM<sub>10</sub>. During the most critical days the primary percentage contribution of forest fires to PM<sub>10</sub> was estimated to be in the order of 15- 20% and 25-30% in Turin urban area and in Susa respectively.

Comparison between PM<sub>10</sub> data in Turin urban area and in the three provincial capitals which were not hit by forest fires (Novara, Vercelli e Alessandria) highlights that during the most critical days PM<sub>10</sub> concentration increase was about 40% on the average, namely about twice the estimated primary contribution by the forest fires. There are evidence of a significant secondary contribution to PM<sub>10</sub> by forest fires as well. First of all, the time modulation of levoglucosan follows the one of OC both in Turin and in Susa; secondly, the instrument that measures particulate numerical concentration located in Turin (Ultrafine Particle Monitor 3031-TSI Inc.) reported during the most critical days an increase in the number of particles between 0,1 e 1 micron, namely a range belonging to the accumulation mode which is typically linked to secondary particulate matter formation. It is

noteworthy that according to some studies also under standard emissions condition the secondary contribution to PM<sub>10</sub> from biomass burning in the Po Valley is comparable to primary one.

**Keywords:** PM<sub>10</sub>, forest fire

## Introduzione

In Piemonte il mese di ottobre 2017 è risultato il più secco degli ultimi 60 anni e il secondo mese di ottobre più caldo dal 1958. Il frequente contrasto barico a ridosso dell'arco alpino nordoccidentale ha determinato numerosi episodi di foehn, causando vento forte nelle vallate alpine spesso in sconfinamento alle zone pianeggianti. L'anomalia della situazione meteorologica del mese di ottobre ha contribuito a creare condizioni favorevoli per lo sviluppo e la successiva rapida propagazione degli incendi boschivi che hanno colpito le aree montane e pedemontane della Città Metropolitana di Torino, in particolare il Pinerolese, la Valle di Susa, il Canavese e la Valle Orco.

Una descrizione dettagliata del fenomeno e delle attività messe in atto da Arpa Piemonte nel corso dell'emergenza è contenuta in uno specifico rapporto tecnico (ARPA Piemonte, 2017). Lo sviluppo degli incendi ha inevitabilmente inciso in maniera significativa anche sulla qualità dell'aria, non solo nelle zone più prossime ai fenomeni ma anche nell'area urbana di Torino. Come dettagliato nel paragrafo successivo il PM<sub>10</sub> e il PM<sub>2,5</sub> sono risultati i parametri sui quali il contributo aggiuntivo dell'incendio è risultato più significativo, mentre il terzo parametro che presenta superamenti dei limiti di legge nel semestre freddo dell'anno – vale a dire il biossido di azoto – ha invece mostrato una criticità molto inferiore. Nei giorni di maggiore intensità degli incendi, cioè dal 24 al 27 ottobre, il PM<sub>10</sub> ha raggiunto nell'area urbana valori di media giornaliera dell'ordine di 200-300 µg/m<sup>3</sup> che non venivano misurati da almeno un decennio.

Va sottolineato che nel 2017 si è verificato sul territorio della Città Metropolitana di Torino un significativo peggioramento degli indicatori di legge di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> rispetto al 2016, interrompendo la tendenza alla diminuzione delle concentrazioni che era stata osservata negli ultimi anni. I due fattori che potenzialmente possono avere causato questo fenomeno sono, da un lato le condizioni meteorologiche che sono risultate nel 2017 maggiormente sfavorevoli alla dispersione degli inquinanti, dall'altro il contributo aggiuntivo degli incendi boschivi.

### Obiettivi dello studio

Obiettivo generale dello studio è valutare quale dei due fattori citati nell'introduzione sia stato quello prevalente nel determinare il peggioramento degli indicatori di qualità dell'aria per PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> nel 2017 rispetto agli anni precedenti. A tale scopo è stata messa a punto una specifica metodologia per stimare l'entità del contributo aggiuntivo alle concentrazioni di particolato aerodisperso

determinato dagli incendi boschivi e di conseguenza l'importanza in termini quantitativi di tale contributo sugli indicatori di qualità dell'aria relativi a PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub>.

Sono inoltre riportati i risultati di una serie di approfondimenti relativi alla speciazione del PM<sub>10</sub> finalizzati alla valutazione del contributo degli incendi boschivi alla componente sia primaria che secondaria.

### Analisi dei dati di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> nel periodo in cui hanno avuto luogo gli incendi boschivi

In Figura 11.5.1 è riportato l'andamento delle concentrazioni medie giornaliere di PM<sub>10</sub> nel mese di ottobre, suddivise per zona

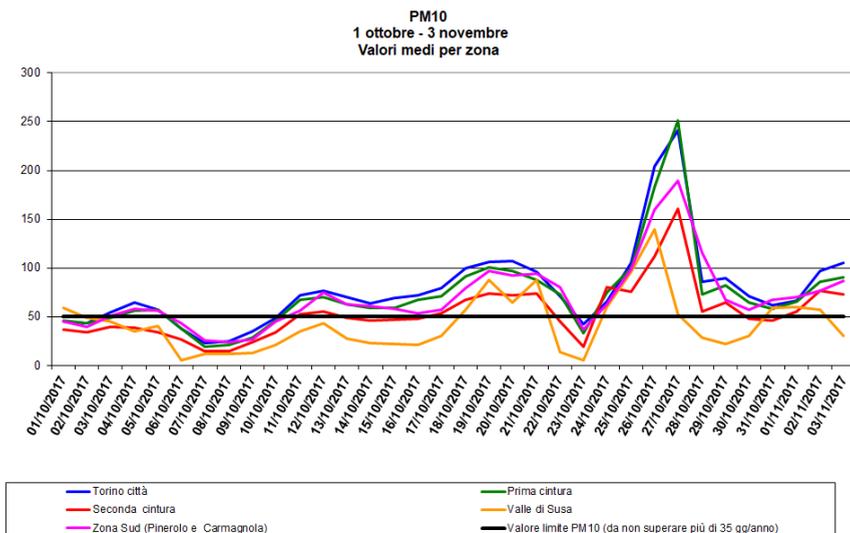


Figura 11.5.1. PM<sub>10</sub> Medie giornaliere per zona (µg/m<sup>3</sup>)

Risulta evidente come dal 24 al 27 ottobre si abbia un elevato e generalizzato aumento delle concentrazioni, in

particolare nell'area urbana torinese. Il fatto che l'aumento delle concentrazioni di PM<sub>10</sub> sia attribuibile agli incendi boschivi è testimoniato da tre elementi:

- l'aumento coincide temporalmente con il periodo più critico degli incendi stessi. Nei giorni di domenica 22 e lunedì 23 ottobre si è assistito a un incremento generalizzato della ventosità legato a uno degli episodi di foehn richiamati nell'introduzione, con raffiche sino a 50-100 Km/h. L'elevata ventosità, se da un lato ha favorito nel breve periodo la dispersione degli inquinanti e quindi una brusca diminuzione delle concentrazioni di PM<sub>10</sub>, dall'altro ha riattivato i focolai nelle zone vallive. Di conseguenza i giorni da martedì 24 ottobre a venerdì 27

ottobre hanno visto un notevole incremento dell'intensità degli incendi;

- sino al 23 ottobre la concentrazione media dell'area urbana torinese di PM<sub>10</sub> segue quella dei tre capoluoghi piemontesi che non sono stati interessati dagli incendi boschivi, vale a dire Alessandria, Vercelli e Novara (Figura 11.5.2); dal 24 ottobre le concentrazioni medie nelle due aree si differenziano progressivamente e iniziano a riallinearsi solo il 28 ottobre, quando gli incendi sono in via di spegnimento definitivo;

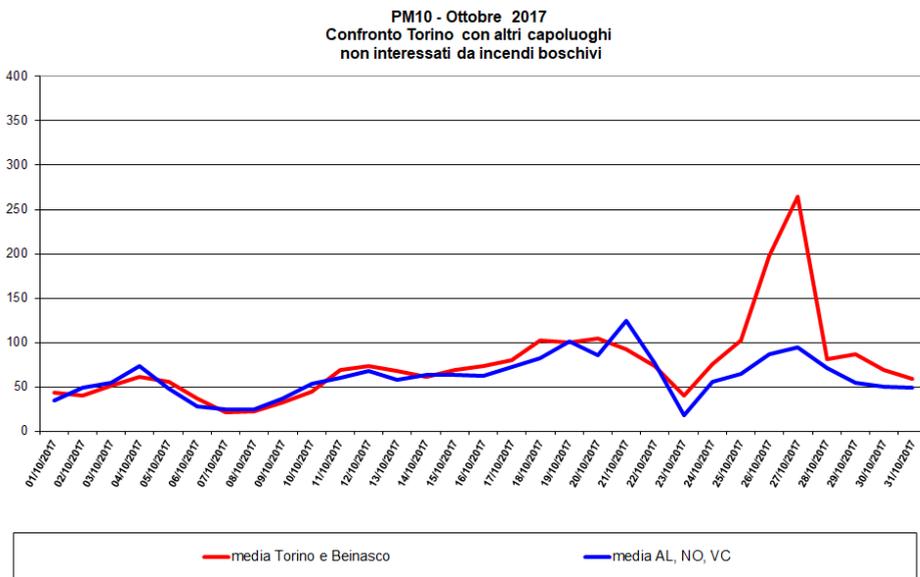


Figura 11.5.2. PM<sub>10</sub> Medie giornaliere (µg/m<sup>3</sup>) - Confronto tra l'area urbana di Torino e gli altri capoluoghi.

- come descritto nel seguito, nei giorni critici per gli incendi si assiste a un brusco aumento, sia in termini assoluti che in percentuale, dei traccianti della combustione di biomassa presenti nel PM<sub>10</sub>;

- durante la mattina del 27 ottobre (giorno in cui è stata registrata la concentrazione più elevata di PM<sub>10</sub>

dell'intero 2017) il radar meteorologico installato sulla collina torinese ha rilevato la progressiva estensione del pennacchio di fumo prodotto dagli incendi dalla Valle di Susa - una delle aree maggiormente colpite dal fenomeno - verso le zone di pianura.

### Stima del contributo aggiuntivo degli incendi boschivi alle concentrazioni di PM<sub>10</sub>

Per stimare l'entità del contributo degli incendi boschivi è stata adottata la metodologia seguente:

1. costruzione della retta di regressione tra la concentrazione media di PM<sub>10</sub> nella città di Torino e negli altri tre capoluoghi della pianura piemontese non interessati dagli incendi boschivi, utilizzando i dati del periodo immediatamente precedente (1-22 ottobre) a quello critico per gli incendi. Come già evidenziato, infatti, in tale periodo le due serie di valori sono sovrapponibili. La correlazione è ottima ( $r=0,93$ );

2. utilizzo della retta di regressione per stimare - a partire dalla concentrazione media di PM<sub>10</sub> nei tre capoluoghi

non interessati dal fenomeno- la concentrazione media che si sarebbe misurata a Torino in assenza di incendi nei giorni critici (24-27 ottobre)

3. calcolo del contributo aggiuntivo degli incendi in ognuna delle giornate critiche sottraendo la stima ottenuta al punto 2 alle concentrazioni medie giornaliere di PM<sub>10</sub> effettivamente misurate nell'area urbana torinese.

La Figura 11.5.3 mostra i risultati dell'applicazione della metodologia di stima: nei giorni critici la percentuale di PM<sub>10</sub> attribuibile al contributo aggiuntivo degli incendi è in media del 43%, con un massimo del 59% il 27 ottobre.

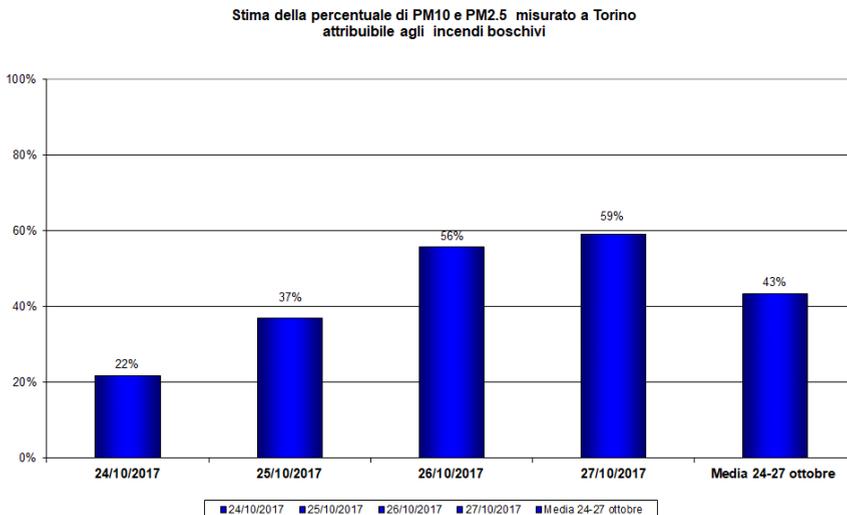


Figura 11.5.3. Stima della percentuale di PM<sub>10</sub> attribuibile agli incendi boschivi nell'area urbana torinese.

### Speciazione del PM<sub>10</sub>

Un ulteriore approfondimento è stato effettuato tramite la determinazione analitica sul PM<sub>10</sub> degli zuccheri anidri traccianti della combustione di biomassa (in particolare

levoglucosano), del carbonio organico (OC) e dei componenti secondari di natura inorganica (ammonio, nitrato, solfato).

Nei giorni di maggiore intensità degli incendi si osserva (Figura 11.5.4) che la concentrazione di levoglucosano aumenta di circa un ordine di grandezza rispetto ai giorni precedenti sia nei campioni prelevati dell'area metropolitana torinese che in quelli della stazione di

Susa, ubicata in una delle zone vallive maggiormente colpite dagli incendi

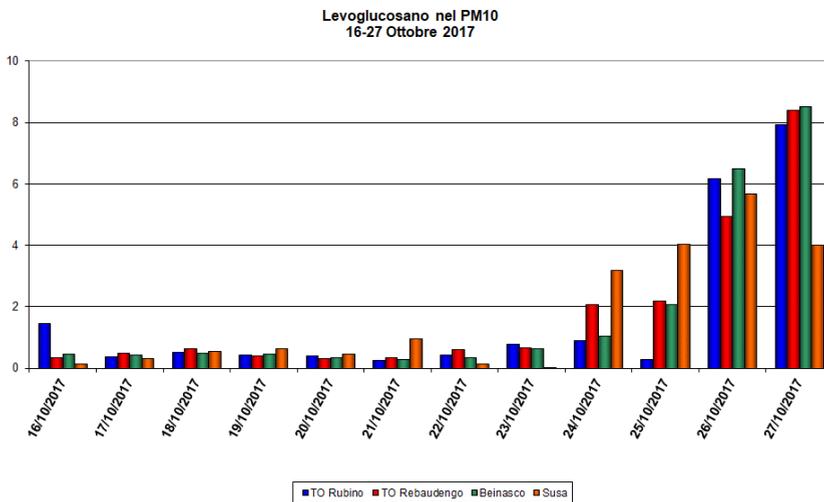


Figura 11.5.4. Levoglucosano nel PM<sub>10</sub> -Medie giornaliere (µg/m<sup>3</sup>).

L'aumento, come evidenzia la Tabella 11.5.1, si osserva non solo in termini assoluti ma anche come percentuale sul PM<sub>10</sub>. Ciò significa che nei giorni più critici per gli incendi boschivi il PM<sub>10</sub> si arricchisce di traccianti della combustione di biomassa; l'aumento percentuale, com'è prevedibile, è più elevato in un'area più prossima agli incendi come Susa. La Tabella 11.5.1 evidenzia inoltre che il rapporto medio percentuale tra le concentrazioni di levoglucosano e di PM<sub>10</sub> totale nei giorni dal 16 al 22

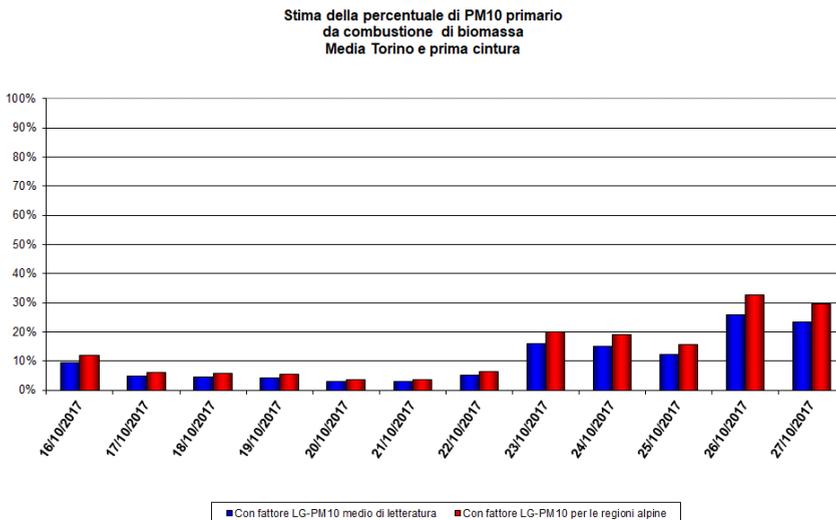
ottobre è del tutto confrontabile con il valore ricavato nella città di Torino nel mese di ottobre 2013 all'interno del progetto Alcotra- Part'Aera; ciò conferma che nei giorni precedenti a quelli più critici per gli incendi boschivi il contributo primario della combustione di biomasse al PM<sub>10</sub> era quello tipico stagionale.

Tabella 11.5.1-Percentuale di levoglucosano nel PM<sub>10</sub>

STAZIONE	Percentuale media di LG nel PM10 16-22 ottobre 2017	Percentuale media di LG nel PM10 24-27 ottobre 2017	Percentuale media di LG nel PM10 mese di ottobre TO Rubino progetto Part'Aera
TO Rubino	0,7%	1,8%	0,7%
TO Rebaudengo	0,5%	2,1%	
Beinasco	0,5%	2,4%	
Susa	0,7%	3,6%	

Il valore di levoglucosano permette di stimare la concentrazione di PM<sub>10</sub> che deriva dal contributo primario della combustione di biomassa tramite i fattori di conversione levoglucosano-PM<sub>10</sub> riportati in letteratura. In questo studio sono stati utilizzati un fattore medio basato su 62 lavori scientifici (8,85 µg PM<sub>10</sub>/µg

levoglucosano) (Piazzalunga et al. 2011) e un fattore caratteristico delle regioni alpine (11,2 µg PM<sub>10</sub>/µg levoglucosano) (Schmidl, 2008). I risultati sono riportati in Figura 11.5.5 per l'area urbana di Torino e in Figura 11.5.6 per Susa.

Figura 11.5.5. Stima della percentuale di PM<sub>10</sub> primario da combustione di biomassa- media area urbana di Torino

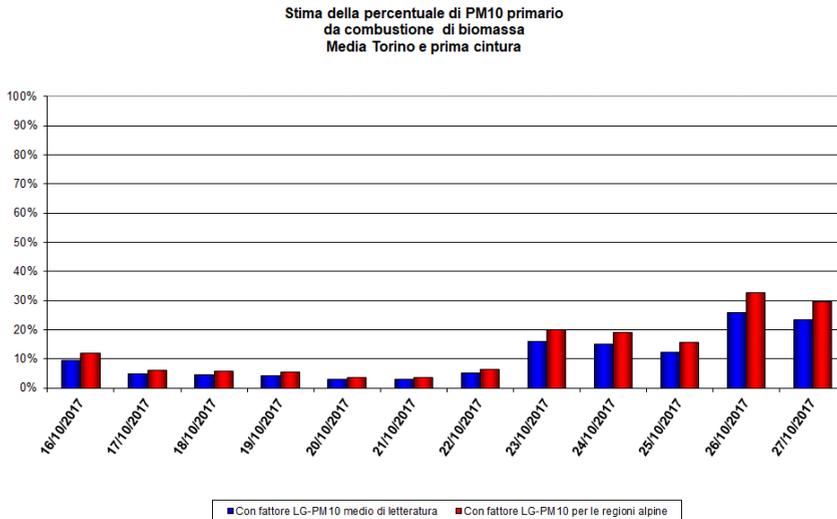


Figura 11.5.6. Stima della percentuale di PM<sub>10</sub> primario da combustione di biomassa- stazione di Susa

Si osserva che:

- prima della fase critica degli incendi, cioè sino al 22 ottobre, il contributo percentuale primario al PM<sub>10</sub> della combustione di biomasse è in media del 5% nell'area urbana torinese e dell'8% a Susa, e quindi ricade nell'intervallo tipico del 5-15% indicato in letteratura per aree analoghe del bacino padano (Piazzalunga et al. 2011);

- il contributo percentuale primario dell'area torinese, come già evidenziato per il levoglucosano, è del tutto confrontabile con quello ottenuto per il mese di ottobre nel progetto Part'Aera (6-8%). In altre parole sino al 22 ottobre il contributo primario della combustione di biomasse al PM<sub>10</sub> è interamente attribuibile alle fonti normalmente attive nei mesi autunnali e invernali, cioè sostanzialmente il riscaldamento domestico a legna o derivati del legno;

- nei quattro giorni più critici, invece, il contributo degli incendi, sottraendo il fondo attribuibile alle sorgenti standard, è in media dell'ordine del 15-20% nell'area urbana torinese e del 25-30% a Susa.

Nel capoluogo il contributo primario al PM<sub>10</sub> della combustione di biomassa dà quindi conto di circa la metà di quello complessivo stimato sulla base del confronto con le aree urbane non coinvolte negli incendi boschivi, che si ricorderà era in media del 43% (Figura 11.5.3). Si deve quindi ipotizzare che gli incendi boschivi abbiano fornito al PM<sub>10</sub> anche un contributo di natura secondaria - in relazione alla trasformazione in particolato di sostanze originariamente emesse in forma gassosa - e che tale contributo sia quantitativamente confrontabile con quello primario. Tale contributo di natura secondaria, peraltro già documentato in letteratura in altri casi di incendi boschivi (Pio et al., 2008; Popovicheva et al., 2014; Alves et al., 2010), è sostenuto nel caso specifico dai dati seguenti:

- nella stazione di Torino Lingotto è installato uno strumento (Ultrafine Particle Monitor 3031 -TSI Incorporated) che misura in continuo la concentrazione numerica di particelle con dimensioni tra 0,02 e 1 micron, suddivise in sei classi dimensionali. Nei giorni più critici per gli incendi boschivi si è osservato un significativo aumento del numero delle particelle di maggiori

dimensioni, cioè quelle tra 0,1 e 1 micron, che corrispondono all'intervallo dimensionale noto come modo di accumulazione (Figura 11.5.7). Questo

fenomeno di norma segnala l'aumento dei processi di formazione secondaria di particolato;

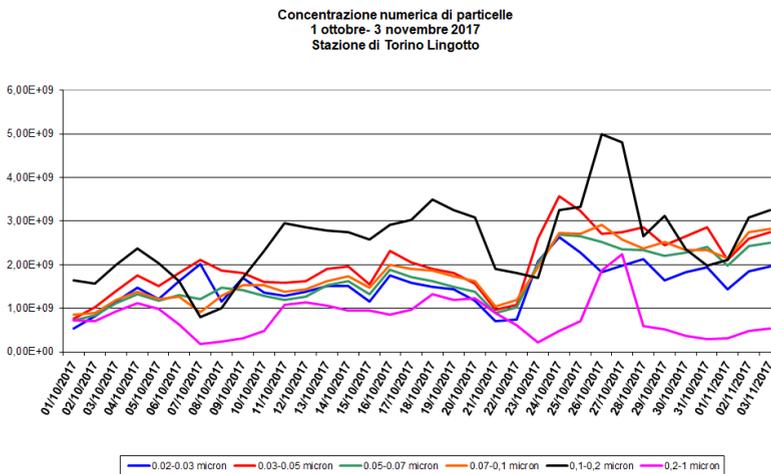


Figura 11.5.7. Concentrazione numerica di particelle (numero di particelle/m<sup>3</sup>) – Stazione di Torino Lingotto.

- sia a Torino che a Susa la concentrazione di OC nel PM<sub>10</sub> – come pure il rapporto OC/EC- mostra nei giorni critici un significativo aumento, che di norma è anch'esso indice di formazione di particolato secondario organico. Il legame con la combustione di biomasse è testimoniato dall'andamento temporale, del tutto analogo a quello del levoglucosano (Figura 11.5.8 e Figura 11.5.9). Si osserva che per entrambi i parametri la concentrazione

massima è raggiunta a Susa il 26 ottobre e a Torino il 27 ottobre, vale a dire nel giorno in cui tramite il radar meteorologico installato sulla collina torinese è stato rilevato il trasporto del pennacchio di fumo dalla Valle di Susa al capoluogo;

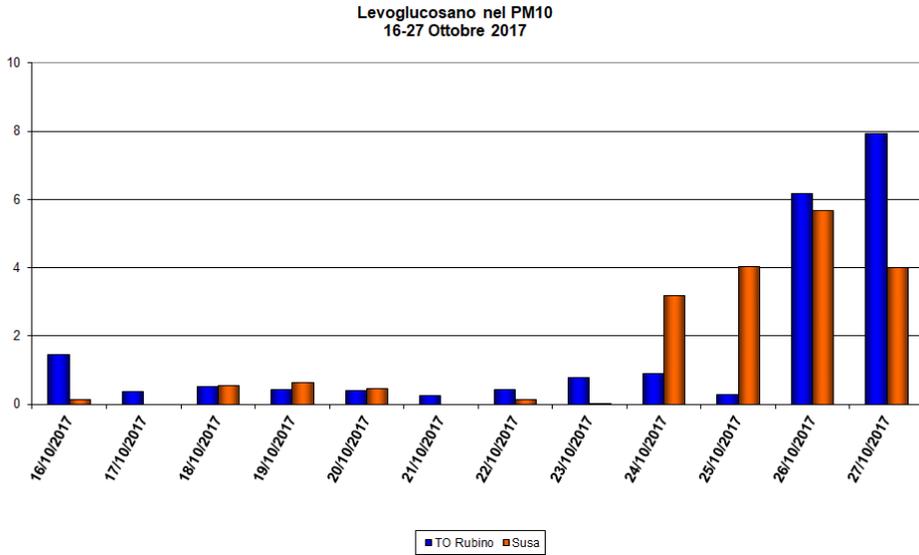


Figura 11.5.8. Levoglucosano nel PM<sub>10</sub> - Medie giornaliere (µg/m<sup>3</sup>) – Stazioni di Torino Rubino e Susa

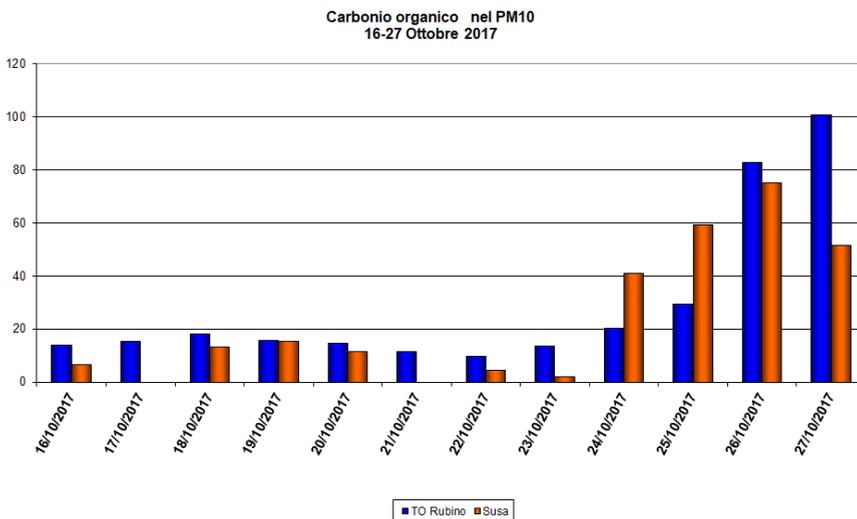


Figura 11.5.9 - Carbonio organico nel PM<sub>10</sub> - Medie giornaliere (µg/m<sup>3</sup>) – Stazioni di Torino Rubino e Susa

- come nel caso del levoglucosano la percentuale media di carbonio organico nel PM<sub>10</sub> nell'area torinese sino al 22 ottobre (16%) è del tutto confrontabile con quello ottenuto per il mese di ottobre nel progetto Part'Aera (19%), mentre nei giorni critici per gli incendi boschivi sale al 34%;

- studi specifici a livello di nel bacino padano mostrano che il contributo al particolato secondario della combustione di biomassa, nei mesi invernali e in condizioni emissive standard, è significativo e quantitativamente dello stesso ordine di grandezza di quello primario, vale a dire dell'ordine del 5-6% del PM<sub>10</sub> (Gilardoni et al., 2016). Tale percentuale riportata dalla letteratura è confrontabile con il contributo primario sia relativo al periodo precedente a quello critico per gli incendi sia calcolato per la città di Torino all'interno del progetto Part'Aera. E' quindi ragionevole ipotizzare in prima approssimazione che anche nei giorni dal 24 al 27 ottobre il contributo secondario sia dello stesso ordine di grandezza di quello primario; in base a questa ipotesi il contributo totale (primario + secondario) degli incendi

boschivi risulta del 30-40%, valore confrontabile con quello calcolato sulla base del confronto con i capoluoghi non interessati dagli incendi.

Non appare invece significativo il contributo degli incendi boschivi alla componente secondaria inorganica del PM<sub>10</sub>: si osserva che le concentrazioni medie giornaliere delle tre specie che costituiscono tale componente (nitrato, solfato e ammonio) mostrano valori più elevati prima della fase critica degli incendi, al contrario di quanto avviene per levoglucosano e carbonio organico. Nella Figura 11.5.10 è riportato a titolo di esempio l'andamento delle medie giornaliere di nitrato, il componente secondario inorganico maggiormente rilevante in termini di concentrazione. Anche in termini percentuali si osserva un decremento: sino al 22 ottobre il contributo medio complessivo delle tre specie secondarie inorganiche al PM<sub>10</sub> è pari al 43% e scende al 15% nei giorni critici, in concomitanza con l'aumento della percentuale della componente secondaria organica e del contributo primario.

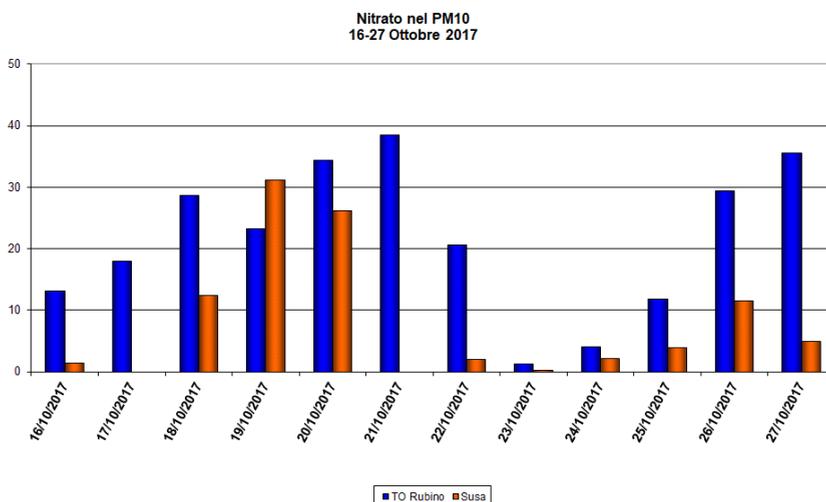


Figura 11.5.10 - Nitrato nel PM<sub>10</sub> - Medie giornaliere (µg/m<sup>3</sup>) – Stazioni di Torino Rubino e Susa

È importante sottolineare che sino al 22 ottobre, come per levoglucosano e carbonio organico, anche la percentuale complessiva (il citato 43%) delle tre specie secondarie inorganiche nell'area torinese è confrontabile con quella ottenuto per il mese di ottobre nel progetto Part'Aera (46%), a conferma del fatto nei giorni precedenti a quelli più critici per gli incendi boschivi la composizione del PM<sub>10</sub> era quella tipica stagionale.

Questa situazione potrebbe essere stata determinata da una situazione caratterizzata da venti occidentali (foehn) che hanno apportato aria relativamente più "pulita" di quella usualmente presente nell'area urbana torinese (22 e 23 ottobre) alla quale si sono aggiunti, a Torino nei giorni 26 e 27 ottobre, i prodotti primari (gas / vapori/particolato) della combustione dei boschi interessati dagli incendi. Il tenore non elevato, o anche minore di quello dei giorni precedenti gli incendi, dei costituenti inorganici secondari del particolato PM<sub>10</sub> è compatibile con questa ipotesi in quanto la conversione degli ossidi di azoto e del biossido di zolfo nei relativi anioni richiede tempi relativamente lunghi e, per Torino, appare legata in termini di flussi di massa più alle sorgenti urbane standard che agli incendi. La trasformazione per condensazione di sostanze semivolatili in particelle - che costituisce uno dei principali meccanismi che danno origine a particolato organico secondario- è invece un fenomeno relativamente veloce.

### **Valutazione dell'influenza degli incendi boschivi sugli indicatori di qualità dell'aria del PM<sub>10</sub>**

Per valutare se il contributo aggiuntivo degli incendi boschivi abbia modificato significativamente nell'anno 2017 gli indicatori di qualità dell'aria previsti per il PM<sub>10</sub> (media annuale e numero di giorni di superamento del valore limite giornaliero) dal D.Lgs 155/2010 e s.m.i. sono stati presi in considerazione separatamente:

- i punti di misura di pianura, che di norma storicamente non rispettano almeno uno degli indicatori;

- i punti di misura nelle aree vallive interessate dagli incendi (Susa, Ceresole e Oulx) che ormai da molti anni rispettano tutti gli indicatori.

Per le stazioni di pianura si è confrontata la serie temporale 2017 tal quale e quella ottenuta dalla correzione delle concentrazioni medie giornaliere per i giorni critici degli incendi. La correzione è stata effettuata nel modo seguente:

1. per ognuno dei giorni critici è stata calcolato il rapporto tra la media delle concentrazioni effettivamente misurate nell'area urbana e la media delle concentrazioni ottenute dalla retta di regressione Torino-altri capoluoghi descritta nel precedente paragrafo;

2. per ognuno dei giorni critici e per ognuno dei punti di misura di pianura tale rapporto è stato utilizzato per calcolare quale sarebbe stata la concentrazione media giornaliera in assenza di incendi. L'ipotesi conservativa alla base del calcolo è che l'effetto degli incendi in tutta l'area di pianura sia assimilabile a quello che si è verificato nell'area urbana torinese, vale a dire nella zona in cui si è avuto il contributo aggiuntivo più elevato;

3. per ogni punto di misura sono stati calcolati gli indicatori di legge a partire sia dalla serie di dati originale sia da quella corretta sottraendo l'effetto stimato degli incendi.

Nelle Figure 11 e 12 sono riportati i risultati, rispettivamente, per la media annuale di PM<sub>10</sub>, il numero di superamenti del valore limite giornaliero di PM<sub>10</sub>

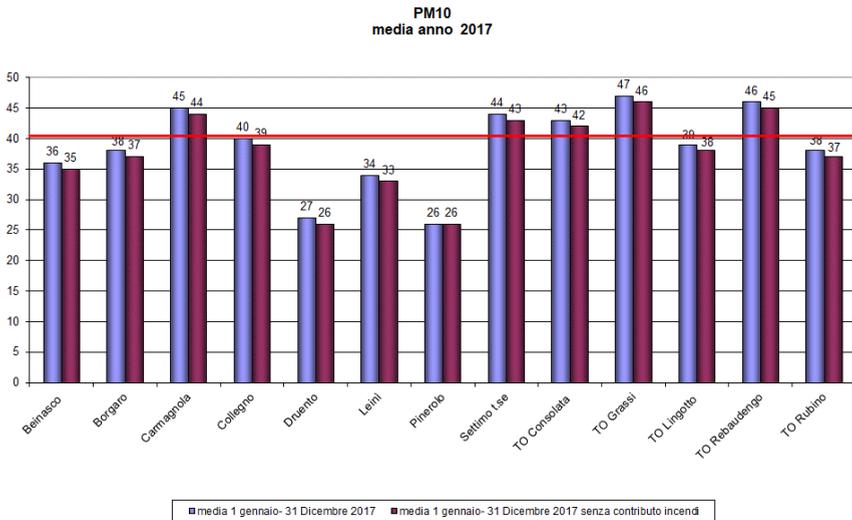


Figura 11.5.11 - Concentrazione media di PM<sub>10</sub> (µg/m<sup>3</sup>) nel 2017 con e senza il contributo degli incendi

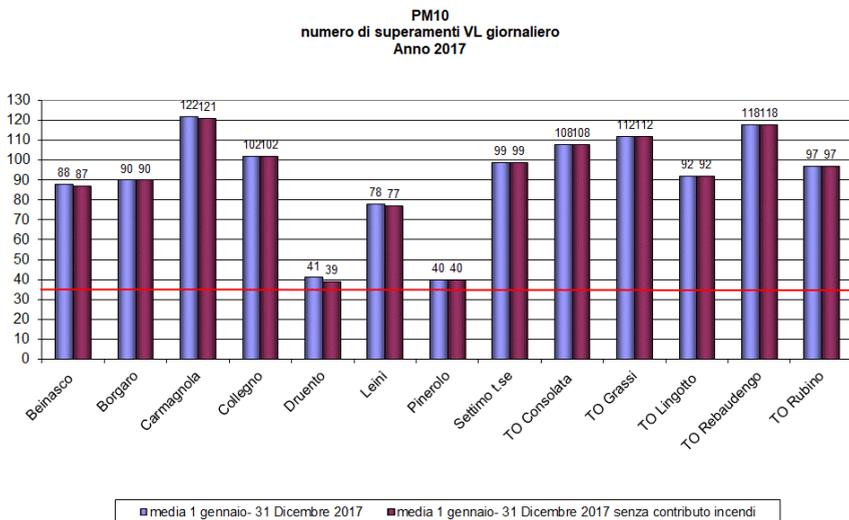


Figura 11.5.12 - Numero di superamenti del valore limite giornaliero di PM<sub>10</sub> (50 µg/m<sup>3</sup>) nel 2017 con e senza il contributo degli incendi

Nel caso delle medie annuali di PM<sub>10</sub> si osserva che nella peggiore delle ipotesi il contributo aggiuntivo degli incendi è dell'ordine di 1 µg/m<sup>3</sup>, valore ininfluente sul rispetto del limite: come evidenziato dalla Figura 11.5.11 infatti, nei punti in cui il limite non è stato rispettato anche le medie annuali corrette sono sempre maggiori del limite stesso. Nel caso del valore limite giornaliero di PM<sub>10</sub> il contributo aggiuntivo dovuto agli incendi boschivi nella peggiore delle ipotesi ha comportato nel 2017 una giornata di superamento in più; anche in questo caso il fenomeno risulta ininfluente rispetto al già elevato numero totale di superamenti annuale.

Per quanto i punti di misura delle aree vallive più prossime agli incendi (Susa, Ceresole e Oulx), anche nel 2017 i valori limite sono stati rispettati. I dati mostrano però che gli incendi boschivi hanno contribuito a un peggioramento degli indicatori. In particolare:

- nella stazione di Ceresole per la prima volta da quando il punto di misura di PM<sub>10</sub> è operativo (2009) si sono verificati superamenti del valore limite giornaliero (sei giornate in tutto), tutti nel periodo interessato dagli incendi boschivi che hanno colpito la Valle Orco;

- nella stazione di Susa si sono verificati 27 superamenti del valore limite giornaliero, di cui 8 nel periodo degli incendi boschivi; nel precedente quinquennio il valore massimo su base annuale di questo indicatore era stato pari a 15;

- nella stazione di Oulx ben 5 degli 8 superamenti del valore limite giornaliero di PM<sub>10</sub> si sono verificati nel periodo degli incendi. Nel caso di Oulx il numero totale di superamenti è comunque confrontabile con il valore massimo su base annuale di questo indicatore nel precedente quinquennio, che era stato pari a 7;

- le concentrazioni giornaliere di PM<sub>10</sub> più elevate rilevate a Ceresole, Susa e Oulx nel periodo degli incendi sono state rispettivamente di 179 µg/m<sup>3</sup>, 173 µg/m<sup>3</sup> e 82 µg/m<sup>3</sup>. Nel caso di Ceresole e Susa si tratta di valori del tutto anomali, in quanto nel quinquennio 2012-2016 i valori massimi erano stati rispettivamente pari a 50 µg/m<sup>3</sup> (marzo 2012) e 89 µg/m<sup>3</sup> (dicembre 2015); nel caso di Oulx il valore massimo nel periodo degli incendi

- analogamente al numero di superamenti - è invece confrontabile con quello del quinquennio precedente (83 µg/m<sup>3</sup>, rilevato nel marzo 2012), presumibilmente perché la stazione, a differenza di Susa e Ceresole, si trova in un'area non immediatamente adiacente a quelle in cui si sono sviluppati i focolai più intensi.

Un discorso a sé merita la stazione di Pinerolo, l'unico punto di misura di pianura per il quale l'ipotesi di cui al precedente punto 2 potrebbe non essere conservativa. Si tratta, infatti, di una stazione che, pur non essendo ubicata in una zona valliva, si trova a breve distanza da alcune delle aree in cui si sono sviluppati i focolai più intensi e duraturi; di conseguenza a Pinerolo l'effetto degli incendi potrebbe essere stato significativo anche nei giorni precedenti a quelli più critici considerati dalla metodologia precedentemente descritta. Tale ipotesi è supportata dal fatto che Pinerolo è l'unico punto di misura oltre a quello di Susa - anch'esso relativamente prossimo agli incendi - in cui il numero di superamenti del valore limite giornaliero di PM<sub>10</sub> è più che raddoppiato rispetto al 2016: nel 2017 si sono verificati a Pinerolo 40 giorni di superamento (di cui 8 nella seconda metà di ottobre) contro 15 nel 2016, a Susa 27 giorni di superamento (di cui 9 nella seconda metà di ottobre) contro 10 nel 2016. Nel caso di Pinerolo, a differenza di Susa, tale aumento ha fatto sì che il numero di giorni di superamento sia risultato nel 2017 maggiore del massimo consentito dalla norma (35 giorni per anno civile), fenomeno che si era verificato per l'ultima volta nel 2012 e che non si è più verificato nel 2018 e nel 2019.

Pinerolo è quindi l'unico punto di misura in cui l'effetto degli incendi potrebbe avere effettivamente causato nel 2017 il superamento di uno degli indicatori di legge per il particolato atmosferico.

Va infine sottolineato che nei comuni in cui si sono sviluppati i focolai - tutti situati in zone montane e pedemontane - in base alla normativa vigente non sono presenti punti di misura fissi della rete di qualità dell'aria, in quanto si tratta di aree in cui in condizioni normali tutti gli indicatori di legge sono ampiamente rispettati.

Durante l'emergenza, allo scopo di valutare quantitativamente anche in tali zone la qualità dell'aria, è stato posizionato un campionario trasportabile di PM<sub>10</sub> nel centro abitato del Comune di Sparone in Valle Orco che, per la sua vicinanza ai focolai e per l'intensità degli stessi, è da considerarsi rappresentativo delle condizioni di inquinamento atmosferico più critiche che si sono verificate nel corso degli incendi boschivi.

Sono state misurate concentrazioni medie giornaliere molto elevate, sino a 280 µg/m<sup>3</sup>, ma l'analisi complessiva dei dati evidenzia che, in relazione alla breve durata del fenomeno, è da escludere su base annuale un superamento degli indicatori di legge.

## Conclusioni

Gli incendi boschivi che nel mese di ottobre 2017 hanno interessato gran parte delle aree montane e pedemontane della Città Metropolitana di Torino hanno provocato sia nelle zone immediatamente adiacenti ai focolai che nelle aree di pianura un aumento delle concentrazioni degli inquinanti atmosferici. L'effetto è stato particolarmente marcato nel caso del PM<sub>10</sub> in termini di contributo sia primario (emissione diretta di polveri di combustione) che secondario organico (trasformazione in particolato di sostanze di natura organica emesse in origine in forma gassosa dai processi combustivi). Non si è invece rilevato un contributo significativo per quanto riguarda la componente inorganica del particolato secondario.

Nei giorni più critici dal 24 al 27 ottobre – in cui si sono raggiunti in molte aree valori di PM<sub>10</sub> superiori a 200 µg/m<sup>3</sup> - si stima che in media il 43% del PM<sub>10</sub> misurato

nell'area urbana torinese sia da attribuire agli incendi boschivi.

La composizione del PM<sub>10</sub> nell'area torinese nei giorni precedenti a quelli critici è risultata del tutto confrontabile con quella tipica stagionale, mentre nei giorni dal 24 al 27 ottobre si è osservato un brusco aumento - in termini sia assoluti che percentuali -- della concentrazione dei traccianti della combustione di biomassa e del carbonio organico.

L'analisi complessiva dei dati evidenzia in ogni caso che in tutti i punti fissi di misura della rete di monitoraggio della Città Metropolitana di Torino il peggioramento degli indicatori nel 2017 rispetto al 2016 non è da attribuirsi agli incendi ma alla maggiore criticità delle condizioni meteorologiche complessive dell'anno. Vi è un unico caso di superamento di un limite di legge in cui, in base ai dati disponibili, si può ipotizzare che nel 2017 in assenza degli incendi boschivi il limite stesso sarebbe stato rispettato. Si tratta del valore limite giornaliero di PM<sub>10</sub> nella stazione di Pinerolo, l'unica di pianura ubicata immediatamente a ridosso dei focolai, che ha presentato nel 2017 40 giornate di superamento contro le 35 ammesse come massimo dalla normativa.

Nel corso dell'emergenza sono stati misurati elevati valori di particolato anche nelle aree montane e pedemontane direttamente interessate degli incendi - le quali di norma presentano concentrazioni di PM<sub>10</sub> rappresentative dei valori minimi misurabili a livello regionale - ma è comunque da escludere, in relazione alla breve durata del fenomeno, un superamento degli indicatori di legge.

**Bibliografia**

Alves et al. Particulate organic compounds emitted from experimental wildland fires in a Mediterranean ecosystem, *Atm. Env.* 44(2010) 2750-2759.

Arpa Piemonte - Rapporto tecnico sulla qualità dell'aria e sulle attività dell'Agenzia a supporto dell'emergenza per gli incendi boschivi in Piemonte nel mese di ottobre 2017

<http://www.arpa.piemonte.it/news/la-relazione-completa-sugli-incendi-boschivi-che-hanno-colpito-il-piemonte-a-ottobre-scorso>.

Piazzalunga et al., Estimates of wood burning contribution to PM by the macro-tracer method using tailored emission factors, *Atmospheric Environment* 45 (2011)

Pio et al., Chemical composition of atmospheric aerosols during the 2003 summer intense forest fire period, *Atm. Env.* 42 (2008) 7530–7543

Popovicheva et al. Physicochemical characterization of smoke aerosol during large-scale wildfires: Extreme event of August 2010 in Moscow, *Atm. Env.* 96 (2014) 405- 414

Schmidl, Chemical characterisation of fine particle emissions from wood stove combustion of common woods growing in mid-European Alpine regions, *Atmospheric Environment* 42 (2008)

Gilardoni et al Direct observation of aqueous secondary organic aerosol from biomass-burning emissions, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 36 (2016)

## 11.6 ANALISI MODELLISTICA DI SOURCE APPORTIONMENT SULLO STATO DELLA QUALITÀ DELL'ARIA DELLA REGIONE PUGLIA A 4 KM DI RISOLUZIONE

Schipa I.<sup>1</sup>, Morabito A.<sup>1</sup>, Costa M.P.<sup>2</sup>

<sup>1</sup>ARPA PUGLIA

<sup>2</sup>Arianet Srl

### RIASSUNTO

Nel corso del triennio 2015-2017 ARPA Puglia si è dotata di un sistema modellistico in grado di ricostruire sul territorio regionale le concentrazioni di inquinanti gassosi e di particolato in modalità retrospettiva e predittiva. Tale sistema è utilizzato per valutare annualmente lo stato della qualità dell'aria ai sensi del D.Lgs. 155/2010; questa valutazione è condotta combinando i campi di concentrazione simulati mediante modello fotochimico con le misure delle reti di monitoraggio di ARPA Puglia, al fine di ottenere una migliore e più realistica rappresentazione dello stato della qualità dell'aria sul territorio sia in termini di entità dei livelli di concentrazione che di distribuzione spaziale.

Le valutazioni modellistiche condotte sulla regione Puglia a 4 km di risoluzione spaziale relative al 2016, 2017 e 2018 hanno evidenziato la presenza di alcune non conformità per gli inquinanti PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, Benzo(a)Pirene ed ozono. Mentre per l'O<sub>3</sub> i superamenti riguardano buona parte del territorio regionale, per PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub> e B(a)P i superamenti si rilevano presso le aree urbanizzate di alcuni comuni delle province di Brindisi, Lecce e Taranto.

Allo scopo di individuare le sorgenti che contribuiscono prevalentemente alle criticità previste, è stata condotta sull'intera regione un'analisi modellistica di source apportionment ad una risoluzione spaziale pari a 4 km. Come noto infatti, l'informazione quantitativa sulla distribuzione spaziale e sulle caratteristiche delle sorgenti è richiesta dal D.Lgs. 155/2010 e dalla decisione 2011/850/EU sia per spiegare l'origine dei superamenti

che quale premessa conoscitiva indispensabile per la progettazione dei piani di risanamento.

L'analisi di source apportionment è stata condotta utilizzando il "Brute Force Method", considerato dalla comunità scientifica una delle metodologie più adatte per supportare le attività di pianificazione della qualità dell'aria. Tale metodo consiste nell'effettuare una simulazione di riferimento (denominata 'caso base') ed una serie di simulazioni, in cui le emissioni di diversi sottoinsiemi di sorgenti sono ridotte, rispetto al caso base, di una percentuale fissata. Il numero delle simulazioni 'alterate' è pari a quello degli insiemi di sorgenti di cui si vuole valutare il contributo; quest'ultimo è calcolato analizzando le differenze tra i risultati del caso base e quelli delle singole simulazioni alterate.

Nello specifico, la simulazione 'base' è stata condotta a 4 km di risoluzione spaziale con il modello fotochimico FARM sull'intera regione relativamente al 2016. Sono state poi effettuate altre quattro simulazioni, riducendo del 20% le emissioni relative alle seguenti sorgenti: il traffico stradale, il riscaldamento residenziale con biomassa legnosa, l'industria e tutte le sorgenti emmissive restanti (denominate RESTO). Tale analisi ha riguardato sia le specie PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, B(a)P e O<sub>3</sub>, che gli inquinanti NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>, e CO. Inoltre, tenuto conto che le non conformità riscontrate dalle simulazioni presentavano una forte componente stagionale, l'analisi è stata condotta relativamente al mese di gennaio e al mese di luglio, al fine di caratterizzare il contributo stagionale delle sorgenti emmissive.

I risultati ottenuti hanno evidenziato i contributi delle sorgenti investigate ai livelli di concentrazione delle varie

specie, in termini sia percentuali rispetto al totale che assoluti.

**Parole chiave:** sistema modellistico, source apportionment, sorgenti, biomassa legnosa

## ABSTRACT

Over the last few years, ARPA Puglia acquired and set up a regional modelling system used for yearly assessments and daily forecasts of gaseous and particulate pollutants concentration over the Apulia region. The system is also used to assess the state of air quality according to Legislative Decree 155/2010, combining the fields simulated by a photochemical model with the data measured by ARPA Puglia monitoring networks, in order to obtain a better and more realistic representation in terms of both concentration levels and spatial distribution.

The modelling studies, carried out at 4 km spatial resolution for 2016, 2017 and 2018, resulted in some non-conformities for PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, Benzo(a)Pirene and ozone. While O<sub>3</sub> exceedances occur over a large part of the regional territory, PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> and B(a)P exceedances are found in the urban areas of some municipalities in the provinces of Brindisi, Lecce and Taranto. A source apportionment analysis at 4 km spatial resolution has been carried out on the OMSIe region, in order to identify the main emission sources contributing to the assessed concentration levels. In fact, quantitative information on the spatial distribution and characteristics of the sources is required by Legislative Decree 155/2010 and Decision 2011/850/EU both to explain the origin of the exceedances and as a fact-finding precondition for the design of remediation plans.

The analysis was carried out using the "Brute Force Method", considered by the scientific community as one of the most suitable methodologies to support air quality planning activities. This method consists of a reference simulation (called 'base case') and a series of

simulations, in which the emissions of different subsets of sources are reduced by a fixed percentage. The number of 'altered' simulations is equal to the number of source sets OMSIe contribution is to be evaluated. The contributions are calculated by analysing the differences between the results of the base case and those of the individual altered simulations.

Specifically, the 'base' simulation was carried out at 4 km spatial resolution with the FARM photochemical model over the entire Apulia region for year 2016. Four additional monthly simulations were then carried out, reducing emissions from the following sources by 20%: road traffic, residential heating with biomass burning, industrial activities and all remaining emission sources. The investigated pollutants are PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, B(a)P and O<sub>3</sub>, as well as NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>, and CO. Since non-conformities found in the simulations had a strong seasonal component, the analysis was repeated for both January and July in order to characterise seasonal contributions of the emission sources.

Contributions of the investigated sources to the concentration levels are shown both as a percentage of the total and as absolute values, and the results are highlighted and discussed.

**Keywords:** modelling system, source apportionment, emission sources, biomass burning

## Introduzione

Identificare le sorgenti dell'inquinamento è una delle finalità della modellistica per la qualità dell'aria e costituisce un'attività essenziale nella pianificazione di azioni efficaci per il risanamento. Come noto, infatti, l'informazione quantitativa sulla distribuzione spaziale e sulle caratteristiche delle sorgenti inquinanti è richiesta dal D.Lgs. 155/2010 e dalla decisione 2011/850/EU<sup>2</sup> sia per spiegare l'origine dei superamenti sia quale premessa conoscitiva indispensabile per la progettazione dei piani di risanamento (allegato XV).

<sup>2</sup>Tale decisione ha introdotto un nuovo meccanismo per lo scambio reciproco di informazioni e relazioni sulla qualità dell'aria ambiente, denominato e-reporting.

Nel corso del triennio 2015-2017 ARPA Puglia si è dotata di un sistema modellistico in grado di ricostruire sull'intero territorio regionale, con focus su eventuali sottodomini di interesse, le concentrazioni di inquinanti gassosi e di particolato in modalità sia retrospettiva che predittiva<sup>3</sup>. Tale sistema consente altresì di assimilare, cioè integrare nelle informazioni modellistiche, le misure fornite dalla rete di monitoraggio della qualità dell'aria gestita da ARPA Puglia ed è utilizzato per valutare annualmente lo stato della qualità dell'aria sull'intera regione ai sensi del D.Lgs. 155/2010. Tale valutazione è condotta combinando i campi di concentrazione modellati con i valori misurati, al fine di ottenere una migliore e più realistica rappresentazione dello stato della qualità dell'aria sul territorio sia in termini di entità dei livelli di concentrazione che di distribuzione spaziale.

Le valutazioni modellistiche condotte sulla regione Puglia a 4 km di risoluzione spaziale per gli anni 2016, 2017 e 2018 hanno evidenziato la presenza di alcune non conformità per gli inquinanti PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, B(a)P ed O<sub>3</sub>. Mentre per l'O<sub>3</sub> i superamenti riguardavano buona parte del territorio regionale, per PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, B(a)P i superamenti si rilevano in corrispondenza delle aree urbanizzate di alcuni comuni della provincia di Brindisi.

Obiettivo del presente lavoro è quindi quello di discriminare i contributi di gruppi definiti di sorgenti alle criticità previste sulla regione Puglia utilizzando i risultati dell'analisi modellistica di *source apportionment*, condotta con l'utilizzo del "*Brute Force Method*". Questo metodo è considerato dalla comunità scientifica una delle metodologie più adatte per supportare le attività di pianificazione della qualità dell'aria e consiste nell'effettuare molteplici simulazioni (da qui il nome di *brute force method*), in cui si variano le emissioni in ingresso, imponendo una variazione prefissata ad una tipologia di sorgenti e lasciando inalterate le altre.

In questa applicazione, il sistema modellistico è stato utilizzato in modalità retrospettiva ed il modello chimico utilizzato è stato il FARM. Nello specifico, avendo come riferimento i campi di concentrazione al suolo ottenuti dalla valutazione modellistica condotta con FARM a 4 km di risoluzione spaziale sull'intera regione relativamente al 2016, è stato valutato il contributo, alle concentrazioni modellate, dei settori emissivi relativi al traffico stradale, al riscaldamento residenziale con biomassa legnosa, all'industria e a tutte le sorgenti emissive restanti (di seguito denominate RESTO). L'analisi mostrata nel presente lavoro riguarda gli inquinanti NO<sub>2</sub> e PM<sub>10</sub>. Dal momento che le non conformità riscontrate dalle simulazioni presentano una forte componente stagionale, l'analisi di *source apportionment* è stata condotta relativamente al mese di gennaio e al mese di luglio, al fine di caratterizzare il contributo stagionale delle sorgenti emissive.

### **Metodi : Applicazione del *Brute Force Method* sulla regione Puglia**

Il "*Brute Force Method*" (BFM) (Bonyoung Koo et al., 2009; Burr and Zhang, 2011), noto anche come "*3D sensitivity runs*", è una metodologia che consente di valutare il contributo di una sorgente analizzando la risposta del modello ad una variazione delle emissioni. Tale metodologia è stata già utilizzata da ENEA nel progetto nazionale MINNI a supporto delle attività del MATTM nell'ambito delle Deroghe CE (Enea, 2013) e del GAINS.

Essa consiste nell'eseguire, con un modello di qualità dell'aria, simulazioni multiple, in ognuna delle quali si utilizzano gli stessi dati di ingresso, ad eccezione delle emissioni provenienti dall'insieme di fonti che devono essere indagate, che sono perturbate ciclicamente. Le concentrazioni ambientali risultanti dalle simulazioni perturbate sono poi confrontate con quelle della

<sup>3</sup>Il servizio di previsione ed analisi dello stato della qualità dell'aria sulla Puglia e sull'area di Taranto, reso operativo da Arpa Puglia nel corso del 2016, è stato attivato ai sensi degli art.14 e art.18 del D. Lgs 155/2010. Sul sito

<http://cloud.arpa.puglia.it/previsioniqualitadellaria/index.html> sono disponibili giornalmente le previsioni a +72 ore dello stato della QA (con

risoluzione spaziale rispettivamente di 4 km sulla Puglia e di 1 km sull'area di Taranto) e la ricostruzione (detta analisi) dello stato della QA relativa al giorno precedente (ieri), ottenuta mediante assimilazione dei dati misurati.

simulazione di riferimento, effettuata con emissioni non perturbate, ottenendo una stima al primo ordine dei contributi. L'insieme delle fonti da esaminare può essere specificato selezionando combinazioni arbitrarie di settori di attività (ad esempio categorie SNAP della nomenclatura EEA) e di entità geografiche presenti nelle basi dati emissive in ingresso. L'utente può scegliere sia gli inquinanti di interesse che il meccanismo chimico da utilizzare fra quelli forniti dal modello fotochimico; inoltre la simulazione con il modello può essere eseguita su un periodo di tempo arbitrario, stabilito dall'utente in base alla natura del problema e alle risorse computazionali disponibili, e può essere strutturata su più griglie nidificate.

Nello specifico sono state effettuate una serie di simulazioni con il modello fotochimico FARM su un periodo scelto: il caso base, con emissioni invariate, e i casi alterati, in cui per ogni insieme di sorgenti, le emissioni del corrispondente gruppo di attività o area geografica sono state ridotte di una percentuale fissata. Il contributo di ciascun insieme di sorgenti è stato stimato come il rapporto fra la variazione di concentrazione risultante (data dalla differenza tra caso alterato e caso base) e la somma delle variazioni di tutti i casi alterati.

In sintesi, a partire dal quadro emissivo di riferimento inteso come caso-base, si sono effettuati i seguenti passi:

1. riduzione del 20%, quantità in grado di mettere in evidenza i contributi, senza peraltro alterare significativamente il regime chimico rispetto alle condizioni del run di riferimento, delle emissioni di  $n$  gruppi di SORGENTI (intendendo con "sorgente" un insieme di categorie emissive organizzato per settore di attività) e preparazione del gruppo RESTO (costituito dai settori non di interesse e ottenuto riducendo del 20% le emissioni delle attività non incluse negli altri insiemi);

2. simulazione con il modello di dispersione considerando il caso emissivo base (di riferimento, non alterato) e gli altri  $n+1$  casi alterati ( $n$  SORGENTI+RESTO) per i periodi scelti;

3. calcolo della variazione  $\Delta_i$  delle concentrazioni medie del caso  $i$ -esimo rispetto al caso di riferimento in ciascun punto griglia;

4. produzione di una serie di mappe: concentrazione media del caso base, contributi assoluti e percentuali dei singoli casi alterati.

Il procedimento è stato ripetuto esaustivamente per tutti gli insiemi di sorgenti e il contributo percentuale di ciascuno di essi è stato stimato come il rapporto fra la variazione di concentrazione risultante (data dal caso alterato – caso base) e la somma delle variazioni di tutti i casi alterati:

$$\Delta_i / \sum_{i=0}^n \Delta_i * 100$$

Questa metodologia è stata applicata su un dominio di simulazione comprendente tutta la regione Puglia, con una risoluzione spaziale di 4x4 km<sup>2</sup>, considerando quali sorgenti da analizzare il traffico su strada, il riscaldamento residenziale con biomassa legnosa, l'industria e le sorgenti emissive restanti (di seguito denominate RESTO). Inoltre, al fine di caratterizzare il contributo delle sorgenti emissive stagionali, il *source apportionment* è stato condotto relativamente al mese di gennaio e al mese di luglio dell'anno 2016.

#### FARM

Il cuore del sistema modellistico utilizzato è il modello euleriano tridimensionale di trasporto e chimica dell'atmosfera FARM<sup>4</sup> (Flexible Air quality Regional

<sup>4</sup>Più precisamente è stata utilizzata la versione più recente del modello di trasporto e chimica dell'atmosfera FARM (versione 4.7), che implementa versioni aggiornate del meccanismo chimico SAPRC99 e del modulo di aerosol aerO<sub>3</sub>. Tali versioni trattano la chimica dei quattro

IPA: B[a]P, B[b]F, B[k]F, indeno[1,2,3-cd]pyrene (sia in fase gassosa che in fase particellare – modi di Aitken e accumulazione) e del mercurio (elementare – Hg - e ossidato – HgO - in fase gassosa e particellare – modi di Aitken e accumulazione).

Model), in grado di fornire i campi tridimensionali orari di concentrazione per diversi inquinanti, a partire dalle emissioni di inquinanti delle varie sorgenti presenti sul territorio (naturali ed antropiche) e dallo stato fisico dell'atmosfera (campi di vento, di temperatura, di umidità, di turbolenza, ecc.).

Nella Figura 11.6.1. viene riportato lo schema concettuale del sistema modellistico, implementato sulla piattaforma computazionale ReCaS.

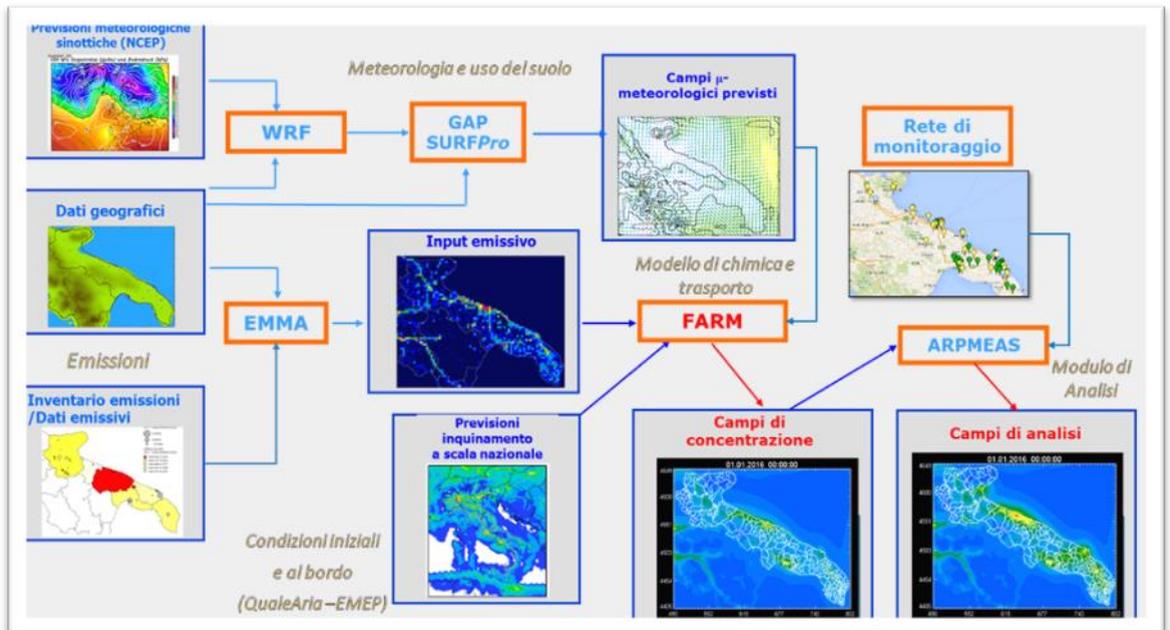


Figura 11.6.1. Sistema modellistico utilizzato per la Valutazione annuale della Qualità dell'aria.

Il sistema modellistico utilizza in ingresso molteplici *dataset*, che vengono elaborati in modo da produrre, sui domini di simulazione, tutti i dati in ingresso necessari al modello chimico di qualità dell'aria. In particolare, per lo svolgimento della simulazione relativa all'anno 2016, FARM è stato alimentato con:

- i campi meteorologici previsionali, prodotti dal SAF di ARPA Puglia relativamente al 2016 mediante l'utilizzo del modello meteorologico prognostico WRF (Weather Research and Forecasting);

- gli inventari delle emissioni, INEMAR per la regione Puglia ed ISPRA per le regioni limitrofe, opportunamente integrati ed aggiornati con le informazioni disponibili;

- le condizioni iniziali ed al contorno, relative all'anno 2016, derivate dai sistemi modellistici previsionali operativi come QualeAria (per gli inquinanti in fase omogenea, gassosa e particolare, su base temporale tri-oraria).

Il modello FARM è configurabile con diversi schemi chimici. Per tutte le simulazioni svolte da ARPA è stato utilizzato lo schema chimico SAPRC99 (Carter, 2000) il

quale descrive le reazioni fotochimiche che hanno luogo nella bassa atmosfera, relative alle trasformazioni delle specie chimiche in fase gassosa dei composti organici volatili e degli ossidi di azoto, e che portano alla formazione di ozono e di aerosol organici secondari nella bassa atmosfera. Al suddetto modulo è stato accoppiato il modulo chimico per gli aerosol, *AerO<sub>3</sub>*, messo a punto da EPA (Binkowski, 1999; Binkowski e Shankar, 1995) per la trattazione della chimica dell'aerosol (parte inorganica ed organica). Tale modulo, in particolare, tratta la dinamica delle particelle e la loro interazione con le specie in fase gas, considerando per gli aerosol tre classi dimensionali: "Aitken" (fino a 0,1  $\mu\text{m}$ ),

"accumulazione" (0,1-2,5  $\mu\text{m}$ ) e "grossolane" (2,5-10  $\mu\text{m}$ ), nelle quali sono considerate diverse specie chimiche (nitrati, solfati, ammonio, acqua, carbonio, ecc.).

Il sistema modellistico così configurato è stato applicato simultaneamente su un dominio comprendente la regione Puglia, con risoluzione spaziale pari a 4 km, e su un dominio, annidato nel precedente, comprendente le province di Brindisi, Lecce e Taranto con risoluzione pari ad 1 km (Figura 11.6.2.).

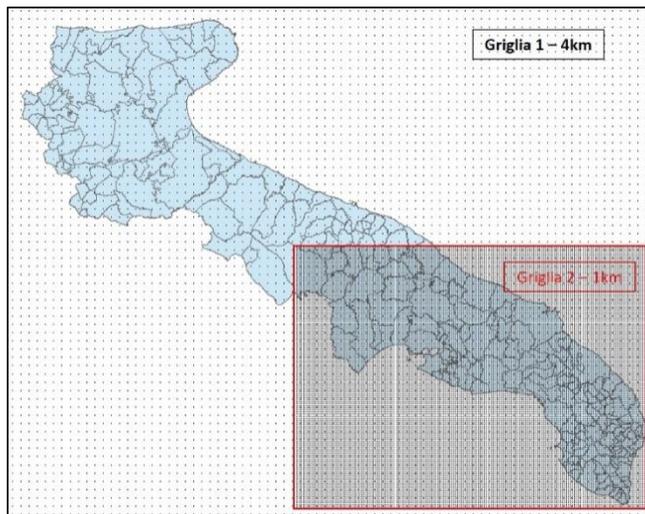


Figura 11.6.2. Domini di calcolo del sistema modellistico.

Tabella 11.6.1 – Caratteristiche spaziali dei domini di simulazione

Dominio	Denominazione	Estensione	Risoluzione spaziale
Griglia 1	regione Puglia	316 x 248 km <sup>2</sup>	4 km x 4 km
Griglia 2	Salento	172 x 128 km <sup>2</sup>	1 km x 1 km

La discesa di scala è effettuata tramite la tecnica *two way nesting*, che consente di simulare le dinamiche di dispersione, trasporto e trasformazione degli inquinanti nel dominio a maggiore risoluzione, tenendo conto sia degli effetti delle sorgenti emissive esterne e dei processi dominati dalle scale spaziali più grandi (come lo smog fotochimico), sia dei fenomeni locali di accumulo. Nella Tabella 11.6.1 si riportano le caratteristiche spaziali dei due domini.

L'estensione verticale dei due domini è pari a 9050 m, con i seguenti 16 livelli di calcolo espressi in metri sopra l'orografia:

10, 35, 70, 120, 195, 305, 465, 695, 1025, 1505, 2200, 3205, 4550, 6050, 7550, 9050.

*Inventario delle emissioni*

Affinché il sistema modellistico sia in grado di ricostruire quanto più realisticamente possibile lo stato della qualità dell'aria, è necessario che venga alimentato con una rappresentazione accurata ed esaustiva delle sorgenti emissive inquinanti, di origine naturale ed antropica, presenti sul territorio. Per le sorgenti emissive di origine antropica della regione Puglia è stato utilizzato l'Inventario delle emissioni in atmosfera regionale INEMAR, relativo al 2010 ed attualizzato, per le emissioni appartenenti ai Macrosettori SNAP 2 (riscaldamento civile e commerciale-istituzionale) e 7 (trasporto su strada), al 2013<sup>5</sup>. Nella Tabella 11.6.2 si riportano, per i comparti emissivi trattati nel *source apportionment*, i quantitativi complessivi relativi ad i macroinquinanti SO<sub>2</sub>, NMVOC, CO, PM<sub>10</sub> e NO<sub>x</sub>, espressi in tonn/anno.

Tabella 11.6.2 – Totali per anno dei comparti emissivi trattati nel source apportionment per gli inquinanti SO<sub>2</sub>, NMVOC, CO, PM<sub>10</sub> ed NO<sub>x</sub>

COMPARTI EMISSIVI TRATTATI	SO <sub>2</sub> ton/a	NMVOC ton/a	CO ton/a	PM <sub>10</sub> ton/a	NO <sub>x</sub> ton/a
<b>INDUSTRIA (Macrosettori 01; 03; 04)</b>	11830	5524	219357	2626	27442
<b>BIOMASSA (attività 020206;020207;020208;020210)</b>	86	18575	46209	6206	673
<b>TRASPORTI STRADALI (Macrosettore 07)</b>	266	9699	50616	2697	42166
<b>RESTO</b>	887	59702	93727	8549	16039
<b>TOTALI</b>	<b>13068</b>	<b>93500</b>	<b>409909</b>	<b>20078</b>	<b>86321</b>

La Tabella 11.6.2 mostra come per SO<sub>2</sub> e CO il contributo emissivo rispettivamente predominante e prevalente sia l'industria, per NMVOC e PM<sub>10</sub> il comparto emissivo più incidente sia il RESTO e per NO<sub>x</sub> il trasporto stradale. Nella Tabella 11.6.3 vengono indicati i contributi emissivi, ordinati per macrosettore, che compongono il

comparto RESTO. Dalla Tabella 11.6.3 emerge che per NMVOC i contributi prevalenti sono i macrosettori 10 - Agricoltura e 06 - Uso di solventi mentre per il PM<sub>10</sub> il macrosettore 09 - Trattamento e Smaltimento di rifiuti è il preponderante.

<sup>5</sup> Sui totali emissivi 2010 sono stati applicati alcuni fattori di variazione, dipendenti dall'attività emissiva, desunti dagli andamenti nazionali nel corso degli anni. Questi sono stati calcolati a partire dalle stime annuali ISPRA disponibili su <http://www.sinanet.isprambiente.it/it/sia->

[ispra/serie-storiche-emissioni](http://www.sinanet.isprambiente.it/it/sia-). Per ottenere una stima del dato nazionale al 2013, si sono estrapolati linearmente i dati dei tre anni precedenti (2010-2011-2012). I fattori da applicare alle emissioni Inemar2010 sono poi stati calcolati, settore per settore, come rapporto tra i valori nazionali 2013 e 2010.

Tabella 11.6.3 – Contributi del comparto emissivo RESTO

RESTO	SO2 ton/a	NMVOC ton/a	CO ton/a	PM10 ton/a	NOx ton/a
<b>02 - Combustione non industriale (tranne biomassa)</b>	215	409	4064	88	1463
<b>05 – Estrazione, distribuzione combustibili fossili/geotermico</b>	0	1829	0	210	0
<b>06 – Uso di solventi</b>	10	24726	0	39	0
<b>08 – Altre Sorgenti Mobili</b>	268	1726	5557	1207	13043
<b>09 - Trattamento e Smaltimento Rifiuti</b>	125	1506	52106	4622	37
<b>10 - Agricoltura</b>	66	26862	3429	429	491
<b>11 - Altre sorgenti di Emissione ed Assorbimenti</b>	203	2643	28572	1954	1005
<b>TOTALE</b>	<b>887</b>	<b>59702</b>	<b>93727</b>	<b>8549</b>	<b>16039</b>

È opportuno sottolineare che il peso che un determinato macrosettore ha in termini emissivi non è detto corrisponda al peso che tale macrosettore ha in termini di contributo sullo stato della qualità dell'aria, poiché il rapporto causa (emissione) ed effetto (concentrazione in aria ambiente) può dipendere fortemente dalla modalità con cui l'emissione avviene in atmosfera. Emissioni puntuali o diffuse, in quota o al suolo, calde o fredde hanno interazioni profondamente diverse con la dinamica dell'atmosfera e, conseguentemente, effetti differenti sullo stato della qualità dell'aria.

La valutazione della relazione tra emissione ed il suo impatto sullo stato della qualità dell'aria richiede quindi necessariamente l'applicazione dei modelli di dispersione.

### Risultati - Valutazione del contributo delle sorgenti

Le figure seguenti (Figure 11.6.3 - 11.6.12) mostrano il risultato delle simulazioni condotte con il *Brute Force*

*Method*, mettendo in evidenza i contributi ai livelli medi mensili delle concentrazioni di NO<sub>2</sub> e PM<sub>10</sub> dei singoli settori investigati su tutti i punti del dominio di calcolo. Si mostrano dapprima le mappe relative alla concentrazione media mensile del singolo inquinante nel caso invernale e nel caso estivo e, a seguire, sono messe a confronto le mappe relative al contributo assoluto e percentuale alla suddetta concentrazione media del singolo settore emissivo investigato. Le due informazioni sono infatti complementari e permettono di apprezzare la significatività dei risultati ottenuti nei vari punti del dominio, dal momento che, ad esempio, contributi percentuali alti potrebbero risultare poco significativi se occorrono in punti dove le concentrazioni complessive sono basse e, viceversa, contributi assoluti anche apprezzabili in aree dove i valori complessivi sono alti potrebbero corrispondere a percentuali trascurabili rispetto al totale.

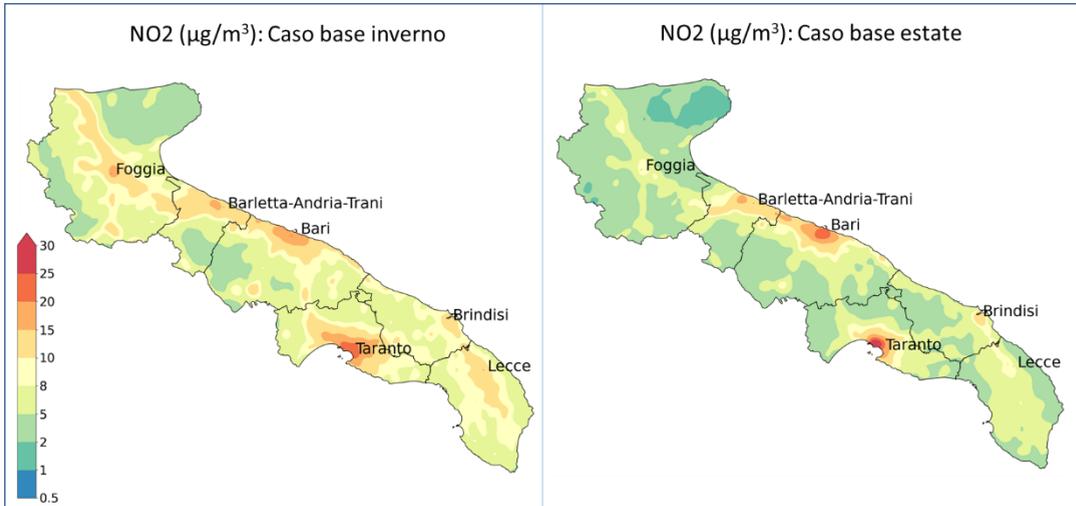


Figura 11.6.3. Mappe relative alla concentrazione media mensile di NO<sub>2</sub> nel caso invernale ed estivo

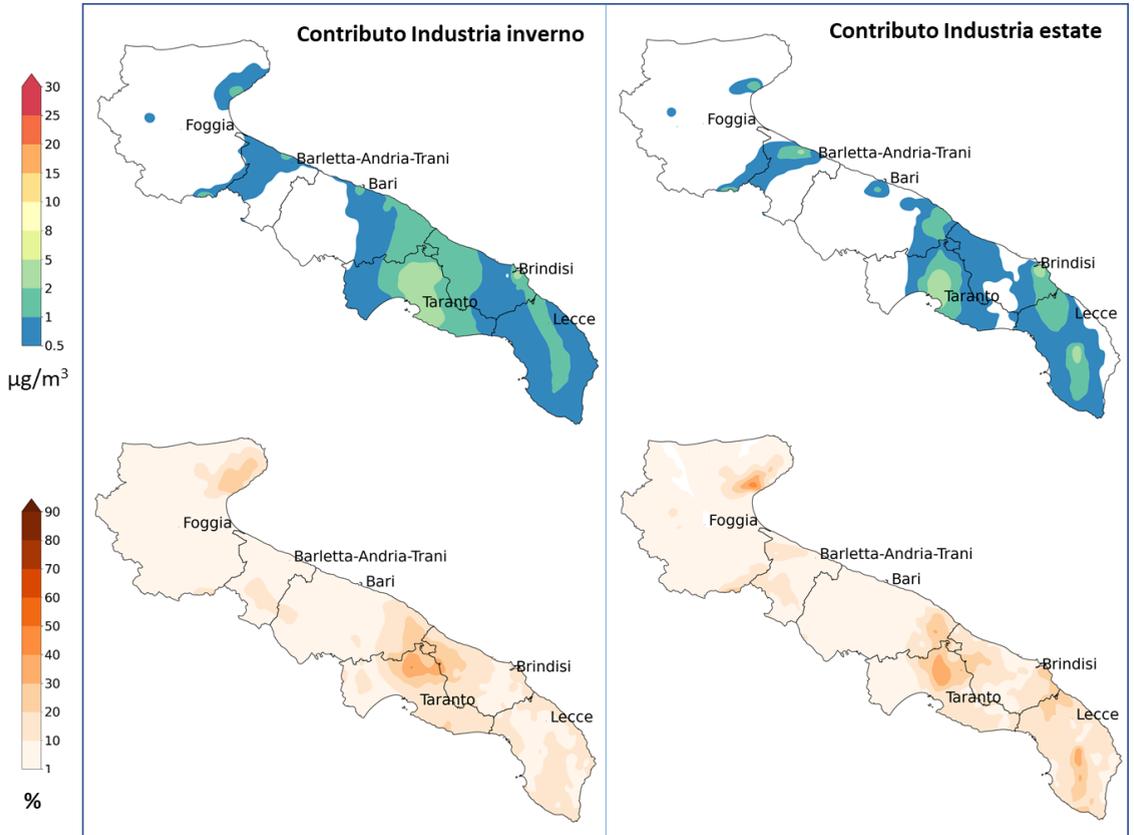


Figura 11.6.4. NO<sub>2</sub>: mappe relative al contributo assoluto e percentuale del settore industria.

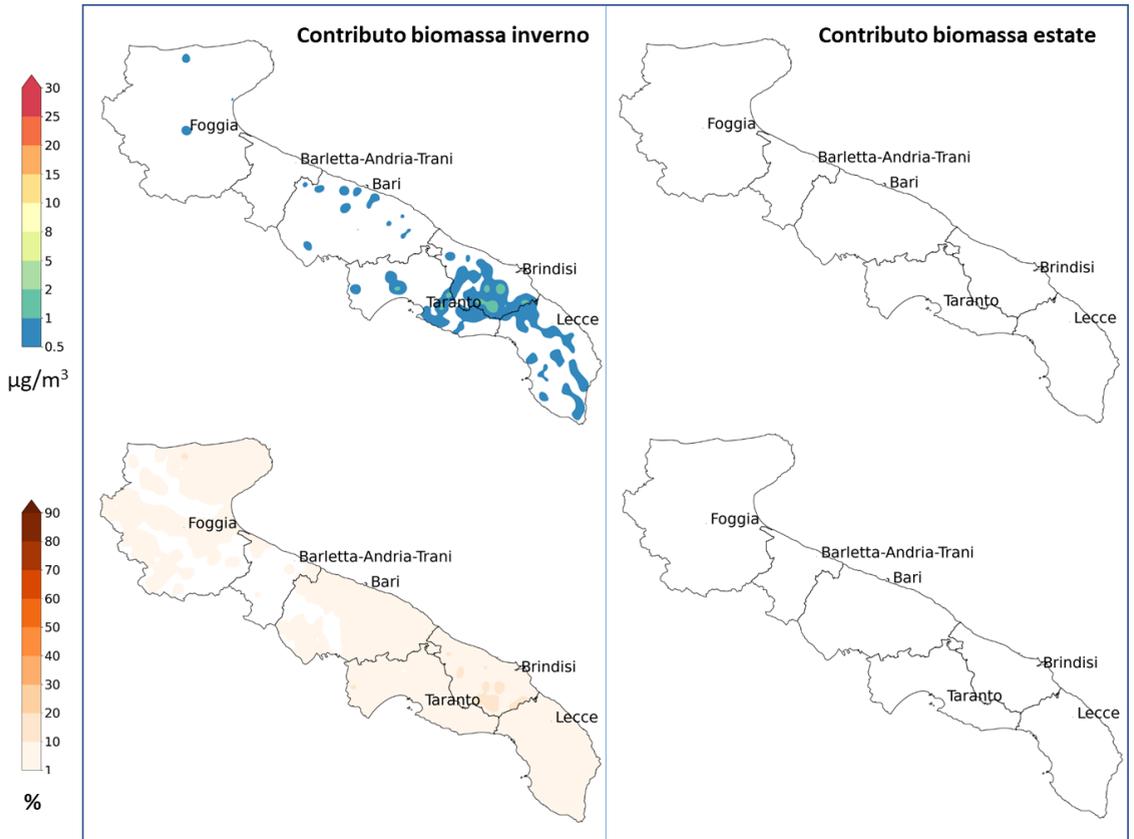


Figura 11.6.5. NO<sub>2</sub>: mappe relative al contributo assoluto e percentuale del settore biomassa.

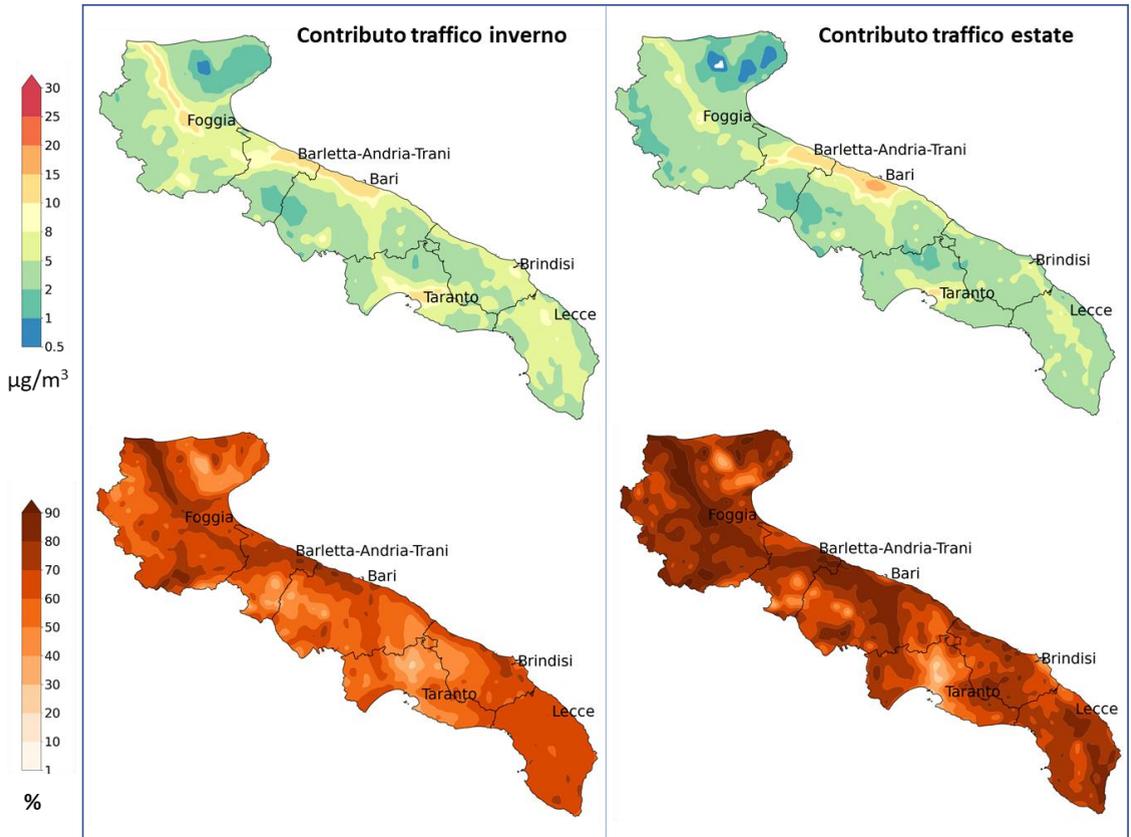


Figura 11.6.6. NO<sub>2</sub>: mappe relative al contributo assoluto e percentuale del settore traffico.

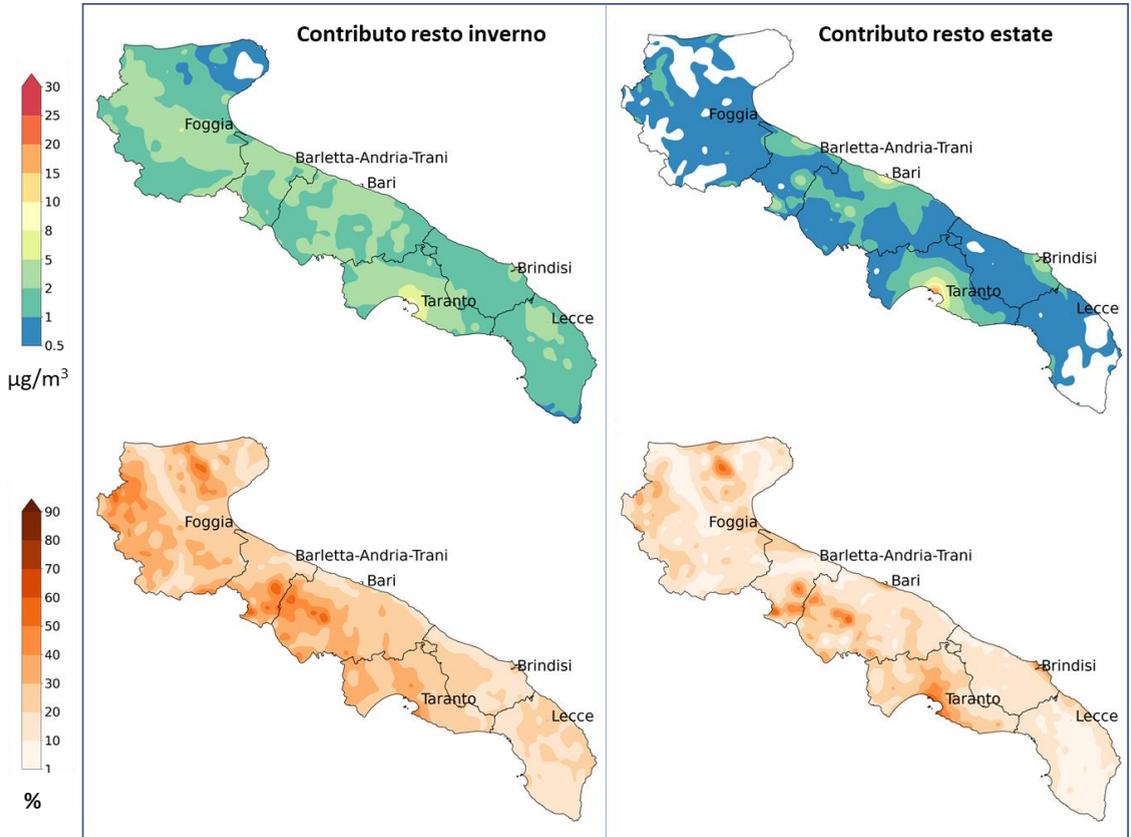


Figura 11.6.7. NO<sub>2</sub>: mappe relative al contributo assoluto e percentuale del settore RESTO.

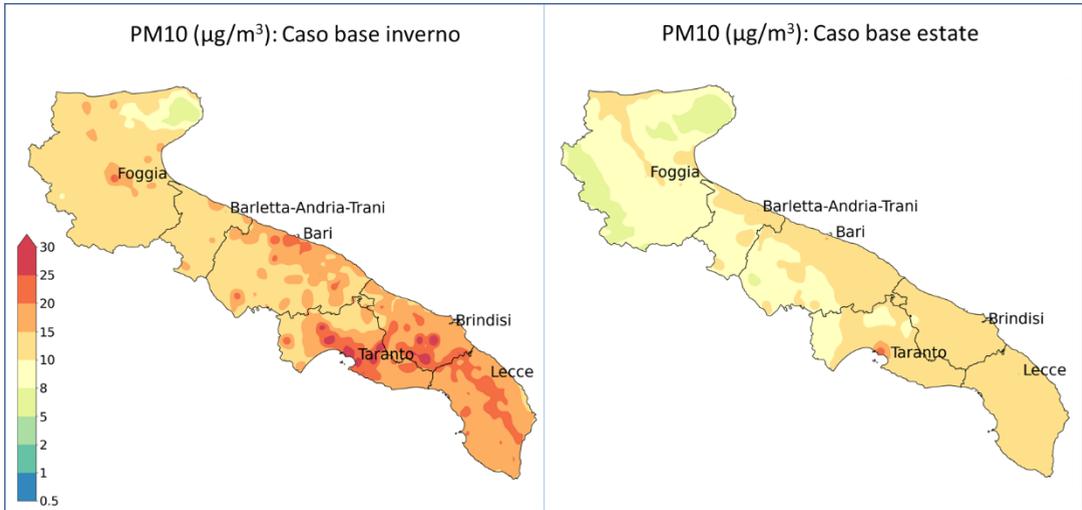


Figura 11.6.8. Mappe relative alla concentrazione media mensile di PM<sub>10</sub> nel caso invernale ed estivo.

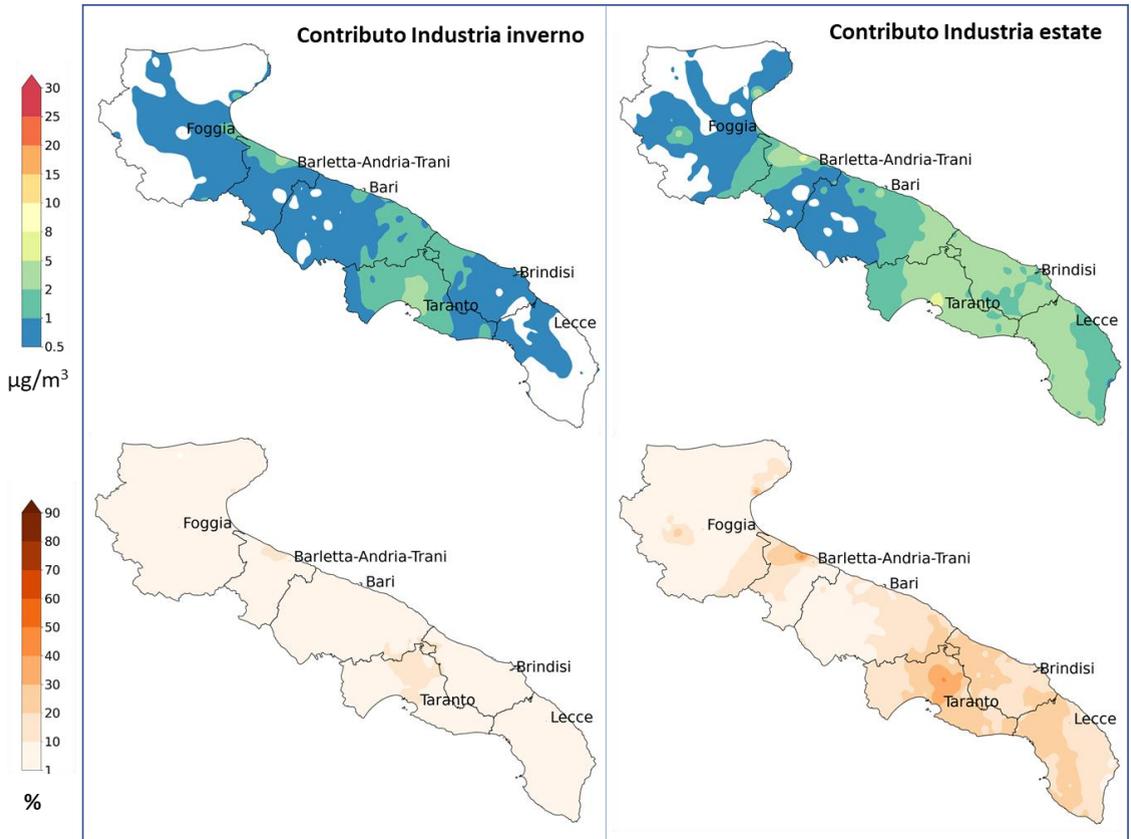


Figura 11.6.9.  $\text{PM}_{10}$ : mappe relative al contributo assoluto e percentuale del settore industria.

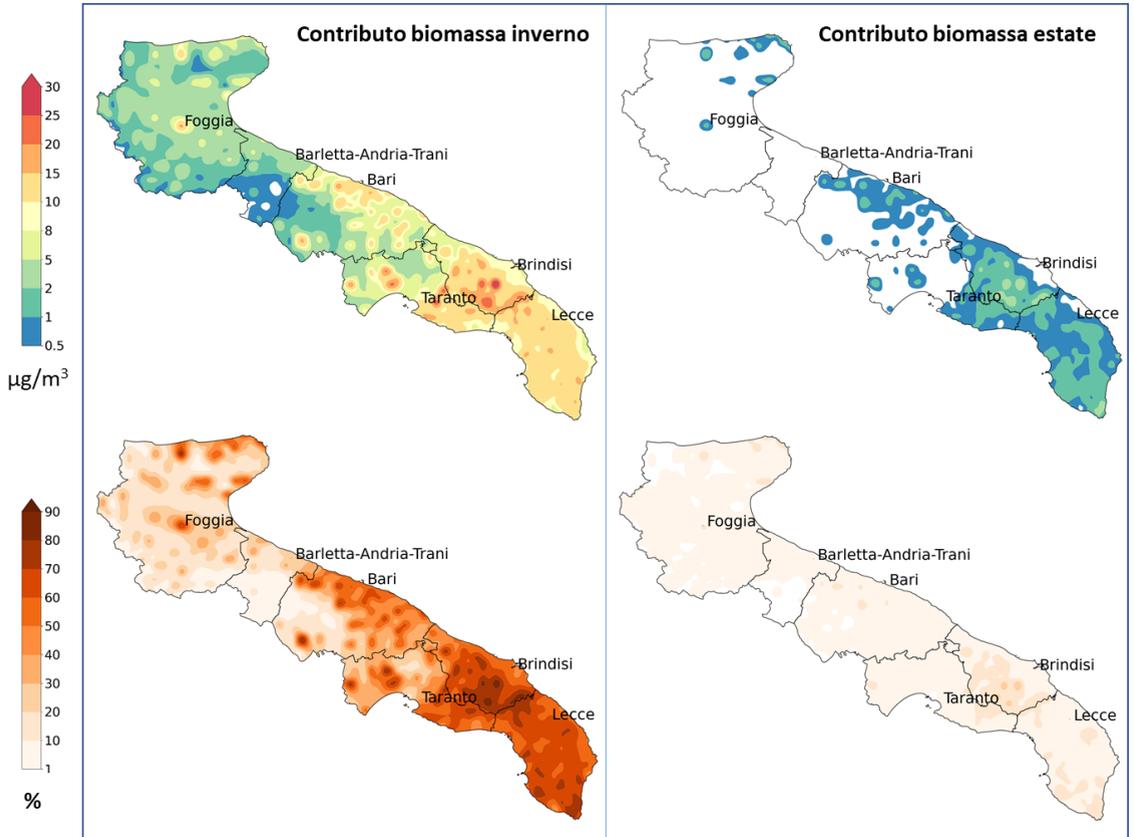


Figura 11.6.10. PM<sub>10</sub>: mappe relative al contributo assoluto e percentuale del settore biomassa.

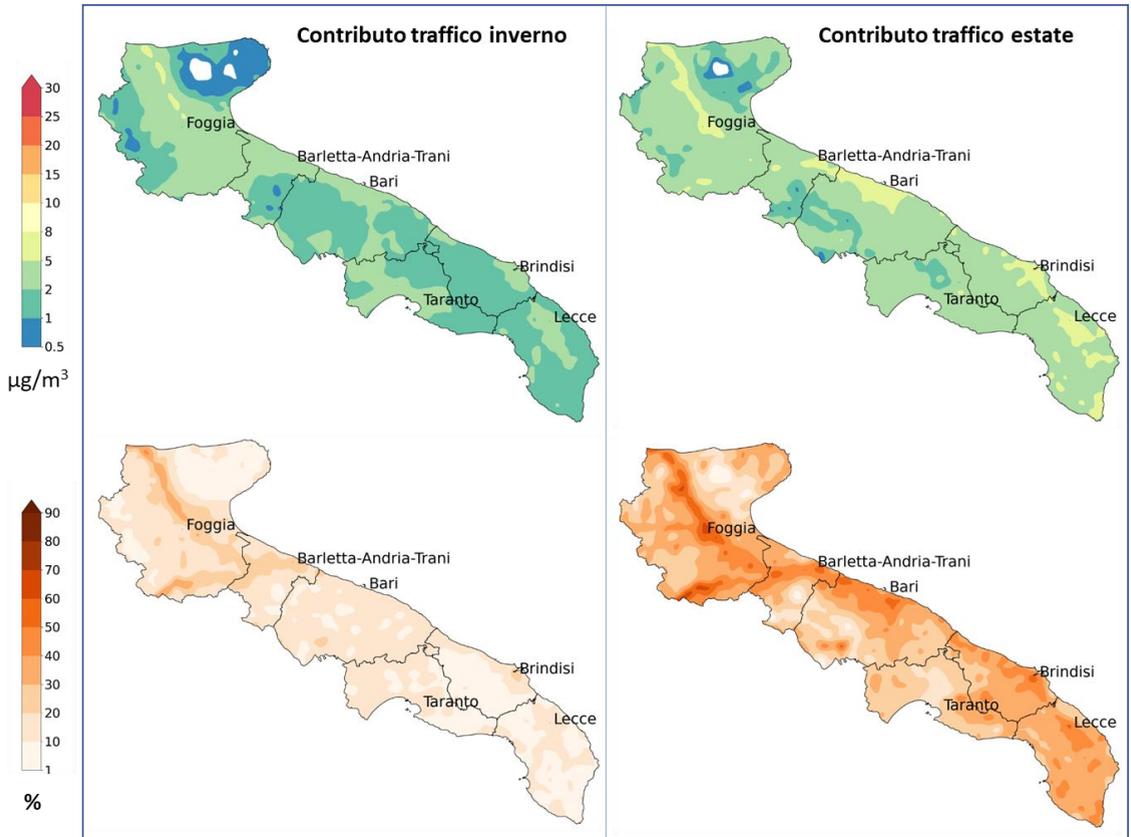


Figura 11.6.11. PM<sub>10</sub>: mappe relative al contributo assoluto e percentuale del settore traffico.

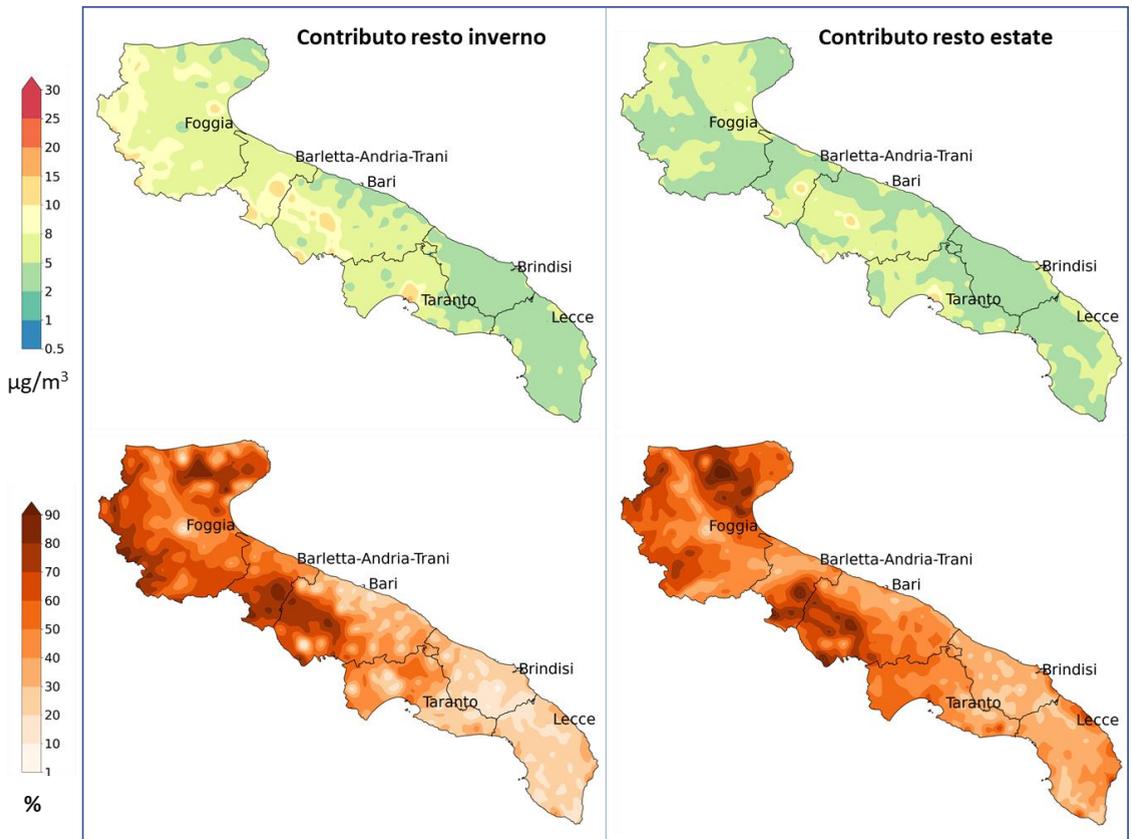


Figura 11.6.12.  $\text{PM}_{10}$ : mappe relative al contributo assoluto e percentuale del settore RESTO.

## Discussione

Per quanto riguarda l' $\text{NO}_2$ , i risultati delle simulazioni del caso base non evidenziano una stagionalità marcata per questo inquinante. Il settore predominante che contribuisce alle concentrazioni è, come atteso, il traffico, in particolare su buona parte del territorio barese e foggiano dove il contributo percentuale supera in alcuni punti il 90%. Le sorgenti emittive indicate con il termine RESTO contribuiscono in modo apprezzabile, presumibilmente a causa delle emissioni marittime e portuali, con particolare riferimento al porto di Taranto. I

contributi delle sorgenti industriali risultano apprezzabili nelle aree in cui sono presenti i principali poli industriali della regione; da ultimo il contributo della combustione residenziale della biomassa si rileva perlopiù nei piccoli comuni lontani dai capoluoghi di provincia.

I risultati delle simulazioni relative al  $\text{PM}_{10}$  mostrano una componente stagionale molto evidente nei risultati relativi al caso base, che nel mese di gennaio raggiunge nel territorio brindisino valori medi di concentrazione superiori ai  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Ciò che determina tale stagionalità è l'emissione dovuta all'utilizzo di biomassa legnosa per

il riscaldamento degli edifici, come si evince anche dal corrispondente contributo in termini percentuali, che, infatti, arriva fino all'80% nel mese di gennaio, riducendosi poi al 5-10% nel mese di luglio. A seguire vi è il contributo delle sorgenti emmissive indicate con il termine RESTO che raggiunge in alcuni comuni del foggiano e dell'entroterra barese valori di concentrazione in gennaio ed in luglio fino ad un massimo di  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , con un contributo percentuale fino all'80% sia d'estate che di inverno. Da un'analisi condotta sulle stime emmissive di  $\text{PM}_{10}$  primario in input al modello, relative alle sole attività SNAP incluse in RESTO, emergono emissioni significative, legate ad esempio alle attività 9-7-0 di "Incenerimento rifiuti agricoli", 10-3-0 di "Combustione stoppie" ed 11-3 di "Incendi di foreste e altra vegetazione". Seguono i settori Traffico e Industria, i cui contributi assoluti nel periodo estivo risultano di entità maggiore oltre che interessare aree più ampie maggiori presumibilmente perché si verificano condizioni meteorologiche più favorevoli alla formazione di particolato secondario.

## Conclusioni

È stata presentata l'analisi di *source apportionment* modellistico condotta sull'intera regione Puglia, ad una risoluzione spaziale pari a 4 km, tramite l'applicazione del *Brute Force Method* (BFM). Nello specifico, a partire dalla simulazione 'base' condotta a 4 km di risoluzione spaziale con il modello fotochimico FARM sull'intera regione relativamente al 2016, sono state effettuate singole simulazioni, nelle quali sono state ridotte del 20% le emissioni relative alle seguenti sorgenti: il traffico stradale, il riscaldamento residenziale con biomassa legnosa, l'industria e tutte le sorgenti emmissive restanti (denominate RESTO).

I risultati presentati hanno evidenziato che per quanto riguarda l' $\text{NO}_2$  la sorgente più rilevante risulta essere il traffico stradale sia nel periodo invernale che estivo. Anche industria e RESTO presentano contributi non trascurabili. Per il  $\text{PM}_{10}$  emerge nettamente che nel periodo invernale la causa principale dei fenomeni di inquinamento nelle province di Brindisi, Lecce e Taranto è rappresentata dalle emissioni da riscaldamento a legna, cui segue il settore RESTO. Durante il periodo estivo invece i contributi maggiori provengono dal traffico veicolare e dal settore RESTO.

**Bibliografia**

Binkowski F. S. (1999) The aerosol portion of Models-3 CMAQ. In Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System. Part II: Chapters 9-18. D. W. Byun and J. K. S. Ching (Eds.) EPA-600/R-99/030, National Exposure Research Laboratory, U.S. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC, 10-1-10-16.

Binkowski, F. S. and U. Shankar (1995) The regional particulate matter model, 1. Mode description and preliminary results. *J. Geophys. Res.*, 100, 26191-26209.

Bonyoung Koo, Gary M. Wilson, Ralph E. Morris, Alan M. Dunker and Greg Yarwood: "Comparison of Source Apportionment and Sensitivity Analysis in a Particulate Matter Air", *Quality Model Environ. Sci. Technol.* 2009, 43, 6669–6675.

Burr M.J., Zhang Y., 2011. Source apportionment of fine particulate matter over the Eastern U.S. Part I: source sensitivity simulations using CMAQ with the Brute Force method. *Atmospheric Pollution Research* 2, 300-317.

Carter WPL (2000) Documentation of the SAPRC-99 Chemical Mechanism for VOC Reactivity Assessment. Final Report to California Air Resources Board, Contract 92-329 and 95-308, SAPRC, University of California, Riverside, CA.

Progetto MINNI Sistema modellistico per le politiche di qualità dell'aria a supporto di governi e regioni - Rapporto finale sintetico della Convenzione 2008-2012 fra Ministero dell'Ambiente e della Tutela del Territorio e del Mare ed ENEA "Sviluppo, verifica e nuove applicazioni del sistema modellistico MINNI a supporto delle politiche di qualità dell'aria nazionali e dei piani e programmi di risanamento della qualità dell'aria regionali", 2013

## 11.7 STIMA DELLE SORGENTI DEL PARTICOLATO ATMOSFERICO PM<sub>2,5</sub>: UNA PROPOSTA DI ANALISI PARALLELA FRA INVENTARIO DELLE EMISSIONI E POSITIVE MATRIX FACTORIZATION

Bacco D., Agostini C., Maccaferri S., Scotto F., Trentini A., Poluzzi V.

ARPAE EMILIA ROMAGNA

### RIASSUNTO

L'origine del particolato atmosferico è uno fra gli argomenti di maggiore interesse per i cittadini, per l'applicazione di modelli matematici e per i decisori politici. Gli approcci che vengono utilizzati per studiare questo tema nella sua complessità sono molteplici e complementari. Nel presente articolo viene descritto un confronto qualitativo fra l'utilizzo dell'"Inventario delle emissioni" e un "modello al recettore".

L'inventario delle emissioni stima la quantità di inquinanti che vengono introdotti in atmosfera da attività antropiche e da sorgenti naturali. La compilazione dell'inventario regionale delle emissioni ([https://www.arpae.it/dettaglio\\_generale.asp?id=3884&ilivello=2075](https://www.arpae.it/dettaglio_generale.asp?id=3884&ilivello=2075)) fornisce la stima più dettagliata disponibile a livello territoriale in quanto utilizza dati emissivi e indicatori di attività disaggregati, eventualmente anche con l'uso di variabili proxy, fino ad arrivare a un dettaglio a scala comunale. L'utilizzo di un modello al recettore di ripartizione delle sorgenti (source apportionment) consente invece di stimare quali sorgenti abbiano concorso alla formazione del PM<sub>2,5</sub> e in che misura, sulla base della composizione chimica dell'aerosol campionato in un sito detto "recettore". Un modello al recettore (Positive Matrix Factorization, PMF) è stato applicato nell'ambito del progetto Supersito, gestito e finanziato da Arpae e Regione Emilia-Romagna (DGR 4258/10 e DGR 1971/13).

Nel presente lavoro è riportato un confronto tra le due metodologie utilizzate per la frazione primaria del PM<sub>2,5</sub> - che è stato il taglio dimensionale dell'aerosol su cui si è concentrato il progetto Supersito - nel periodo 2013-2015.

Una analisi esclusivamente quantitativa risulta complessa a causa delle differenze nella definizione e nell'aggregazione delle sorgenti, e delle diverse scale spaziali di riferimento. Inoltre non si dispone di strumenti completi per una valutazione dell'incertezza associata alle stime effettuate, ma è possibile comunque osservare alcune confortanti convergenze.

A livello qualitativo, e al netto della frazione secondaria dell'aerosol (che non viene considerata dall'inventario delle emissioni), entrambe le metodologie di analisi individuano nella combustione di legna, nel traffico e nelle attività produttive le principali sorgenti di particolato primario legate all'attività antropica. Considerata l'incoraggiante convergenza dei due strumenti di valutazione, si presenta una analisi parallela delle stime ottenute, che potrà essere la base per ulteriori approfondimenti metodologici e per la validazione incrociata dei risultati dei due metodi.

L'intento finale di questo studio non è quello di ottenere risultati di tipo strettamente quantitativo, ma quello di ricavare indicazioni utili e non ottenibili con nessuna delle due metodologie usata singolarmente.

**Parole chiave:** PM<sub>2,5</sub>, composizione chimica, inventario emissioni, source apportionment.

## ABSTRACT

The origin of atmospheric particulate matter is one of the topics of greatest interest to citizens, for the application of mathematical models and for the governance. The approaches that are used to study this complex theme are multiple and complementary. This article describes a qualitative comparison between the use of the "emission inventory" and a "receptor model".

The emissions inventory estimates the quantity of pollutants that are introduced into the atmosphere from anthropogenic activities and natural sources.

The regional emissions inventory ([https://www.arpae.it/dettaglio\\_generale.asp?id=3884&idlivello=2075](https://www.arpae.it/dettaglio_generale.asp?id=3884&idlivello=2075)) provides the most detailed estimate available at a territorial level as it uses emissive data and disaggregated activity indicators, possibly even with the use of proxy variables, up to a detail on a municipal scale.

The use of a source apportionment model allows instead to estimate which sources contributed to the formation of  $PM_{2.5}$ , based on the chemical composition of the aerosol sampled in a site called "receptor". A receptor model (Positive Matrix Factorization, PMF) was applied as part of the Supersito project, managed and financed by Arpae and the Emilia-Romagna Region (DGR 4258/10 and DGR 1971/13).

In this work, a comparison is made between the two methodologies used for the primary fraction of  $PM_{2.5}$ , the aerosol studied by the Supersito project in the 2013-2015 period.

An exclusively quantitative analysis is complex due to the differences in the definition and aggregation of the sources, and the different spatial reference scales. Furthermore, there are no complete tools for an assessment of the uncertainty associated with the estimates made, but it is still possible to observe some comforting convergences.

At a qualitative level, and net of the secondary fraction of the aerosol (which is not considered in the emissions inventory), both analysis methods identify the main

sources of primary particulate in the combustion of wood, traffic and production activities. anthropic activity. Considering the encouraging convergence of the two assessment tools, a parallel analysis of the obtained estimates is presented, which can be the basis for further methodological analyzes and for the cross-validation of the results of the two methods.

By combining the results of the model with the receptor with the information deriving from the emissions inventory, it is also possible to obtain interesting information for studying particulates of secondary origin: in Emilia-Romagna this fraction constitutes a large part of the particulates detected.

The final intent of this study is not to obtain strictly quantitative results, but to obtain useful and not obtainable indications with neither of the two methodologies used individually.

**Keywords:**  $PM_{2.5}$ , chemical composition, emission inventory, source apportionment.

## Introduzione

La qualità dell'aria è uno degli aspetti ambientali più delicati in Italia, visto l'elevato numero di superamenti dei limiti di legge registrati soprattutto nella zona della pianura padana.

Sono tre gli inquinanti che più spesso raggiungono valori troppo elevati: gli ossidi di azoto, l'ozono e il particolato atmosferico ("La qualità dell'aria in Emilia-Romagna", 2018;

[https://www.arpae.it/dettaglio\\_documento.asp?id=7361&idlivello=134](https://www.arpae.it/dettaglio_documento.asp?id=7361&idlivello=134) ).

Quest'ultimo è composto sia da una parte primaria direttamente emessa da diverse sorgenti sia antropiche che naturali, sia da una parte secondaria, cioè che si genera in atmosfera in seguito a reazioni tra sostanze già in essa presenti, detti precursori (Seinfeld e Pandis, 2006). La sua natura così varia rende complesso intervenire sulle concentrazioni del particolato e misurare con certezza l'effetto di ogni provvedimento. A tal fine

risulta utile individuare quali sorgenti concorrono alla formazione dell'aerosol considerato, e in che misura.

Un punto di partenza è quello di catalogare tramite l'inventario delle emissioni tutte le sorgenti presenti a livello regionale o nazionale: in questo modo è possibile stimare l'apporto al PM primario e avere informazioni riguardanti gli inquinanti precursori della frazione secondaria.

In maniera diametralmente opposta è possibile studiare la composizione chimica del particolato raccolto nei diversi punti di misura e, in base ad essa e alla sua variabilità, identificare le sorgenti che hanno concorso a produrre quel determinato aerosol in quel punto. Quindi una ricostruzione delle sorgenti in base alle concentrazioni al recettore (source apportionment).

In questo lavoro vengono mostrati i risultati ottenuti con questi due metodi per il periodo in cui era in corso il progetto Supersito (finanziato e realizzato da Arpa e dalla Regione Emilia-Romagna, DGR 4258/10 e DGR 1971/13, [www.supersito-er.it](http://www.supersito-er.it)), che tra il 2013 e il 2015 ha eseguito la caratterizzazione chimica del particolato atmosferico (PM<sub>2.5</sub>) in tre fondi urbani - Bologna, Parma, Rimini - e in un fondo rurale, S. Pietro Capofiume in provincia di Bologna (Ricciardelli et al. 2017; Bacco et al. 2020; Scotto et al. 2015).

## Metodi

### *Campionamento e analisi*

Nell'ambito del progetto Supersito sono stati studiati tre siti di fondo urbano della regione Emilia-Romagna, uno nell'area metropolitana di Bologna, al centro della regione, uno a Parma, per l'analisi della qualità dell'aria nella zona più all'interno della pianura padana, e uno a Rimini, per l'area costiera. Inoltre è stato studiato anche un sito rurale della provincia di Bologna, S. Pietro Capofiume.

In ciascuno di questi punti sono stati raccolti campioni di PM<sub>2.5</sub> di cui è stata caratterizzata la composizione chimica. In particolare, con analisi di Cromatografia Ionica (DIONEX, California, USA), sono stati analizzati i

principali ioni inorganici (sodio, potassio, magnesio, calcio, ammonio, nitrato, solfato, cloruro), in ICP-MS (7700 ICP-MS Agilent Technologies Inc. USA) sono stati misurati i metalli in tracce presenti nel particolato (Al, Sb, As, Ba, Cd, Cr, Fe, La, Pb, Mg, Mn, Ni, Sn, V, Zn), il carbonio elementare e organico (EC ed OC) sono stati quantificati con tecniche termo-ottiche di trasmittanza (Sunset Laboratory Inc. Oregon, USA) e protocollo EUSAAR2 (Cavalli et al., 2010; Costa et al., 2016).

Le descrizioni dettagliate di siti, tecniche di campionamento e analisi eseguite sono pubblicate (Ricciardelli et al., 2017; Ottone et al., 2020; Bacco et al., 2020; Scotto et al., 2020).

### *Positive Matrix Factorization*

Lo studio della ripartizione dell'inquinamento tra le sorgenti che ne sono responsabili è noto come "source apportionment" e può essere condotto sostanzialmente con due diversi tipi di approccio: quello orientato alla fonte e quello orientato "al recettore". La Positive Matrix Factorization (PMF) costituisce un modello al recettore che sta trovando largo impiego negli ultimi anni (Belis et al., 2020), sia per la disponibilità di un software gratuito e di relativamente facile utilizzo sviluppato dall'US EPA (US EPA PMF 5.0), sia perchè non richiede in input i profili delle sorgenti di inquinamento. L'idea di base dei modelli a recettore è che le particelle di particolato mantengono la composizione elementale/chimica caratteristica della loro origine, cosicchè la composizione nel sito recettore risulti una combinazione delle composizioni del particolato emesso dalle diverse sorgenti. Si tratta naturalmente di una ipotesi, che è più o meno verificata a seconda delle condizioni chimico-fisiche dell'atmosfera e soprattutto a seconda delle specie chimiche considerate. Questa ipotesi è espressa dall'equazione del bilancio di massa, su cui si basano tutti i modelli al recettore:

$$x_{ij} \simeq \sum_k g_{ik} * f_{kj} \quad \text{o, in forma matriciale, } X \simeq G * F$$

$x_{ij}$  = concentrazione della specie  $j$  nel campione  $i$

$g_{jk}$  = contributo della sorgente  $k$  nel campione  $i$

$f_{jk}$  = frazione della specie  $j$  nel particolato prodotto dalla sorgente  $k$

$X$ : matrice delle concentrazioni misurate, con elementi

$G$ : matrice dei pesi delle sorgenti, con elementi

$F$ : matrice dei profili chimici delle sorgenti, con elementi

Lo scopo dei modelli a recettore è determinare il peso delle sorgenti (matrice  $G$ ) a partire dalle concentrazioni misurate (matrice  $X$ ). In alcuni modelli, i profili chimici delle sorgenti (matrice  $F$ ) devono essere noti, in altri - tra questi la PMF - sono determinati dal modello stesso, il che consente di poter applicare il modello anche senza una conoscenza approfondita delle sorgenti che impattano sul territorio e talvolta permette di scoprire il contributo di sorgenti inaspettate o, per sorgenti note, suggerisce un profilo chimico diverso da quello atteso.

La PMF fornisce dunque in output il profilo chimico dei fattori identificati (sulla base del quale ogni fattore viene associato ad una o a più sorgenti) e le serie storiche della massa di particolato prodotta da ogni fattore.

Il modello presuppone una serie di ipotesi; le principali sono sostanzialmente due.

La prima, di cui si è già parlato, è che il profilo chimico delle sorgenti sia costante nello spazio (ovvero non si modifichi nel tragitto dalla sorgente al recettore e quindi le specie chimiche non reagiscano tra loro e non subiscano reazioni chimico-fisiche nell'atmosfera) e nel tempo (questo crea difficoltà nell'identificare ad es. processi industriali con cicli produttivi variabili). Questa ipotesi fa sì, ad esempio, che il particolato di origine secondaria sia individuato come se fosse emesso come si ritrova in atmosfera, il che non è, per definizione.

La seconda ipotesi è che i profili e gli andamenti delle sorgenti siano linearmente indipendenti fra loro, affinché

i loro contributi siano correttamente distinti dal modello. Tali ipotesi difficilmente risultano perfettamente verificate nella realtà; il modello tuttavia ammette un certo scostamento dalle ipotesi, dando luogo a stime più imprecise e con una maggiore incertezza.

Il modello è stato applicato separatamente nei 4 siti e sono stati identificati 6 fattori, con un profilo chimico molto simile in ogni sito, indicando una elevata omogeneità a livello regionale nella formazione di particolato.

Quattro di questi fattori risultano associati a sorgenti emissive di origine antropica, mentre due risultano associati a componenti secondarie del particolato:

- traffico veicolare con risollevarimento della componente crostale;
- combustione di biomassa;
- combustioni di oli pesanti;
- mix di attività antropogeniche;
- un fattore secondario caratterizzato dal nitrato d'ammonio;
- un fattore secondario caratterizzato dal solfato d'ammonio e composti organici.

Il mix di attività antropogeniche non è stato rilevato come fattore isolato nel sito rurale di San Pietro Capofiume, che quindi presenta in realtà una soluzione a 5 fattori. L'adattamento statistico è risultato soddisfacente per i 4 siti, con un  $R^2$  tra il  $PM_{2,5}$  previsto e quello osservato compreso tra 0,93 e 0,97. La descrizione dettagliata dell'analisi PMF è riportata nell'articolo "Principali sorgenti che partecipano alla formazione del  $PM_{2,5}$  in Emilia-Romagna", pubblicato su questo numero.

#### *Inventario delle emissioni*

Obiettivo dell'inventario delle emissioni è la restituzione di una stima quantitativa dei contributi alle emissioni in

atmosfera, provenienti da diverse sorgenti, e la loro distribuzione sul territorio.

Tale stima è realizzata sulla base della raccolta sistematica di informazioni su tipologia, localizzazione, entità delle emissioni regionali di inquinanti atmosferici e gas climalteranti, e fornisce supporto alla valutazione, gestione e pianificazione della qualità dell'aria, in particolare per l'individuazione dei settori su cui indirizzare prioritariamente le misure per la riduzione dell'inquinamento atmosferico e la costruzione degli scenari emissivi corrispondenti a politiche di risanamento della qualità dell'aria e mitigazione dei cambiamenti climatici.

L'inventario delle emissioni in atmosfera per la Regione Emilia-Romagna è compilato almeno ogni 3 anni in ottemperanza al decreto legislativo n. 155/2010.

La consultazione dei risultati in forma completa è disponibile sul sito di Arpae ([www.arpae.it/dettaglio\\_generale.asp?id=3056&idlivello=1691](http://www.arpae.it/dettaglio_generale.asp?id=3056&idlivello=1691)).

L'aggiornamento dell'inventario regionale delle emissioni in Emilia-Romagna è realizzato usando il software INEMAR (INventario EMissioni ARia), strumento messo a punto e progressivamente aggiornato nell'ambito di una convenzione interregionale che attualmente coinvolge, oltre all'Emilia-Romagna, Lombardia, Piemonte, Veneto, Friuli Venezia Giulia, province autonome di Trento e di Bolzano e Puglia.

La metodologia di riferimento implementata in INEMAR è quella EMEP-CORINAIR; per gli inventari 2013 e 2015 è stata utilizzata quella contenuta nel documento "EMEP/EEA Air Pollutant Emission Inventory Guidebook 2013" (<https://www.eea.europa.eu/publications/emep-eea-guidebook-2013>).

La classificazione delle emissioni secondo tale metodologia prevede l'impiego della codifica SNAP (Selected Nomenclature for sources of Air Pollution) e lo svolgimento delle stime in funzione di essa; le attività antropiche e naturali che possono dare origine ad emissioni in atmosfera sono ripartite in 11 macrosettori:

1. Produzione di energia e trasformazione di combustibili
2. Combustione non industriale
3. Combustione industriale
4. Processi produttivi
5. Estrazione e distribuzione di combustibili
6. Uso di solventi
7. Trasporto su strada
8. Altre sorgenti mobili e macchinari
9. Trattamento e smaltimento rifiuti
10. Agricoltura e allevamenti
11. Altre sorgenti e assorbimenti.

In base a questa classificazione, per l'anno 2015 risulta che il maggior contributo primario all'emissione di particolato in Emilia-Romagna è dovuto al riscaldamento domestico a biomassa (che ricade nel macrosettore 2) e al trasporto su strada (macrosettore 7), seguiti da altre attività antropiche quali attività produttive (macrosettore 4), combustione nell'industria (macrosettore 3), produzione e uso di solventi (macrosettore 6).

Il 51% del PM<sub>10</sub> deriva dalla combustione non industriale; il 99% di questa frazione è dovuto alla combustione di biomassa per riscaldamento domestico ed è costituito quasi interamente da PM<sub>2,5</sub>.

Il 26% del PM<sub>10</sub> è emesso dai veicoli su strada: il 42% di questa frazione è riconducibile alla combustione nei motori ad alimentazione diesel e il 50% all'usura di freni e pneumatici di tutti i tipi di veicoli.

L'insieme delle attività produttive e antropiche (macrosettori 4, 3 e 6) è responsabile di circa il 14% delle emissioni di PM<sub>10</sub>.

Seguono la zootecnia, con un contributo alle emissioni di PM<sub>10</sub> pari al 5% circa, e le restanti forme di trasporto col 4%.

## Risultati e discussione

Le soluzioni ottenute dalla PMF eseguita sui risultati delle analisi chimiche dei campioni di PM<sub>2,5</sub> raccolti nel biennio 2013-2015 all'interno del progetto Supersito, sono descritti dettagliatamente altrove (Scotto et al., 2015; Scotto et al., 2020; Ottone et al., 2020).

La soluzione risultata migliore mostra 6 fattori: due legati a formazione di particolato secondario, uno a fenomeni di trasporto di masse d'aria distanti e tre attribuibili a sorgenti primarie di aerosol.

In particolare le sorgenti antropiche individuate sono il traffico (compresa una parte di materiale crostale risospesa dal passaggio dei veicoli), la combustione di biomassa e una componente non meglio diversificabile formata dall'insieme delle attività produttive e di servizio.

Le sorgenti primarie sono le uniche che sono state prese in considerazione per osservare la confrontabilità dei risultati con l'inventario delle emissioni, che considera per definizione solo la parte primaria del particolato. Quindi il frazionamento del PM<sub>2,5</sub> verrà calcolato portando al 100% la sola frazione primaria.

Per quanto riguarda i dati provenienti dall'inventario delle emissioni, i macrosettori in cui sono suddivise le sorgenti sono stati arbitrariamente raggruppati per essere i più coerenti possibile con i fattori primari individuati dalla PMF: i macrosettori 7 e 8 per la componente dei trasporti; i macrosettori 1,3,4,6,9,10 per l'insieme delle attività produttive e di servizio (Tabella 11.7.1).

Tabella 11.7.1 – Raggruppamento dei macrosettori dell'inventario delle emissioni in funzione dei fattori risultanti dall'analisi di source apportionment riconducibili a sorgenti antropiche primarie

Sorgenti antropiche - PMF	Macrosettori – Inventario Emissioni
Traffico veicolare	MS 7 – Trasporto su strada MS 8 – Altre sorgenti mobili e macchinari
Combustione di biomassa	MS 2 – Combustione non industriale
Mix antropogenico	MS 1 – Produzione energia e trasformazione combustibile MS 3 – Combustione nell'industria MS 4 – Processi produttivi MS 6 – Uso di solventi MS 9 – Trattamento e smaltimento rifiuti MS 10 – Agricoltura

L'analisi di source apportionment è fatta sui dati raccolti in stazioni di fondo, urbano e rurale, esposte alla media di tutte le sorgenti presenti in un'area spaziale di riferimento che potrebbe essere collocabile a scala comunale.

L'estensione dell'area di riferimento a tutta la regione potrebbe portare ad approssimazioni inerenti, ad esempio, la misura di specifiche sorgenti che nei siti considerati potrebbero essere più o meno importanti rispetto alla media regionale: ad esempio nelle prossimità dei siti studiati non sono collocati grandi

impianti petrolchimici o porti commerciali come in altre aree della regione. Quindi i risultati della PMF sono da considerarsi più solidi per la dimensione comunale e meno per la dimensione regionale.

L'inventario regionale risulta essere la stima a maggior dettaglio disponibile in quanto restituisce le emissioni disaggregate a livello comunale; tuttavia, la disomogeneità delle fonti e dei corrispondenti livelli di dettaglio, che costringono in alcuni casi all'utilizzo di variabili surrogate e/o alla stima indiretta mediante indicatori di attività e fattori di emissione medi, si riflettono in una maggiore incertezza nelle stime a livello comunale, non quantificabile in modo assoluto.

Per questi motivi si ritiene più solido, nelle valutazioni sul PM primario, derivante dall'inventario delle emissioni, mettere in relazione le stime aggregate a livello regionale.

I calcoli sono stati fatti per entrambe le scale spaziali, comunale e regionale. Per Bologna, essendo città metropolitana, la scala comunale risulta essere troppo piccola data l'urbanizzazione senza soluzione di continuità nell'agglomerato, motivo per cui sono state prese in considerazione le sorgenti presenti nell'inventario per l'intero agglomerato metropolitano (oltre al comune di Bologna, Argelato, Calderara di Reno, Casalecchio di Reno, Castel Maggiore, Castenaso, Granarolo dell'Emilia, Ozzano dell'Emilia, Pianoro, San Lazzaro di Savena, Sasso Marconi e Zola Predosa). Anche questa opzione può comportare degli errori in quanto l'insieme di questi 12 comuni supera la sola area urbanizzata e considera anche ampie parti sub-urbane o rurali, ma dovendo compiere un'approssimazione, si è deciso arbitrariamente che questa potesse essere la più vicina alla situazione rappresentata dai campioni raccolti nel sito di fondo urbano di Bologna del progetto Supersito.

Sebbene gli approcci siano sostanzialmente diversi per dati utilizzati, logica di applicazione e tipo di approssimazioni accettate, i risultati mostrano un'ottima coerenza tra i due metodi sia su scala regionale sia considerando separatamente i singoli siti.

Il particolato primario regionale, secondo entrambi gli approcci, deriva per più dell'80% da sorgenti di combustione, soprattutto per riscaldamento domestico, con l'utilizzo di biomassa come combustibile, e trasporto veicolare, mentre l'insieme delle attività produttive e di servizio risulta nettamente minoritario nel contribuire alla massa del PM<sub>2,5</sub> direttamente emesso in atmosfera.

Una maggiore attribuzione al peso percentuale del traffico nei risultati di source apportionment è coerente con il fatto che il fattore ad esso attribuito contiene al suo interno anche il contributo della componente crostale risolta in atmosfera dal passaggio dei veicoli. Questa quantità invece non è comunemente considerata dall'inventario delle emissioni che considera solo il contributo diretto dei veicoli (exhaust e not-exhaust).

Considerando i risultati a livello comunale, si conferma l'importanza dei processi di combustione, in particolare della biomassa, rilevati a livello regionale.

Interessante osservare che la peculiarità di Parma, unico sito tra quelli in esame a presentare un contributo del traffico superiore alla combustione di biomassa alla formazione del particolato, sia stata colta sia dalla analisi di source apportionment che dai dati dell'inventario delle emissioni.

Il sito che mostra, nell'analisi puntuale, maggiori differenze tra source apportionment e inventario delle emissioni è Rimini, con delle percentuali di particolato primario ottenute dall'analisi PMF intermedie tra quelle che l'inventario attribuisce al solo comune o all'intera provincia riminese. Ad esempio la biomassa in base ai risultati PMF peserebbe per quasi il 60% della massa del PM<sub>2,5</sub>, mentre il macrosettore 2, basandosi sull'inventario, avrebbe un apporto del 40% al PM<sub>2,5</sub> a livello comunale e quasi del 75% in tutta la provincia.

Le più probabili spiegazioni di questo possono essere o una sottostima a livello comunale dell'apporto della biomassa al particolato oppure un'influenza sul sito di misura da parte di masse d'aria provenienti dalla campagna a causa, ad esempio, delle brezze di terra tipiche delle aree costiere.

## Conclusioni

Considerando le grandi differenze esistenti tra i due approcci, sia perché si sviluppano da punti di partenza diametralmente opposti, relativamente al percorso del particolato in atmosfera (emissione e recettore), sia perché non utilizzano nessun dato in comune, il risultato ottenuto così comparabile e convergente è molto positivo e rafforza la validità di entrambe le metodiche utilizzate e del modo in cui sono state applicate. Questo offre una maggiore garanzia in merito alle considerazioni che si possono fare, almeno, sulla componente primaria del  $PM_{2,5}$  e sulle sue sorgenti.

## Ringraziamenti

Gli autori desiderano ringraziare tutti coloro che hanno collaborato a raccogliere ed analizzare questi dati all'interno del progetto Supersito o nella preparazione dell'inventario delle emissioni della regione Emilia-Romagna. In modo particolare i colleghi di Arpae Emilia-Romagna delle APA e del Laboratorio Multisito.

## Bibliografia

Bacco et al 2020 (altro articolo di questa pubblicazione):

C.A. Belis, D. Pernigotti, G. Pirovano, O. Favez, J.L. Jaffrezou, J. Kuenen, H. Denier van Der Gon, M. Reizer, V. Riffault, L.Y. Alleman, M. Almeida, F. Amato, A. Angyal, G. Argyropoulos, S. Bande, I. Beslic, J.-L. Besombes, M.C. Bove, E. Yubero, "Evaluation of receptor and chemical transport models for PM<sub>10</sub> source apportionment". *Atmospheric Environment X* (5) 2020, 100053.

<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2590162119300565?via%3Dihub>

Cavalli F., Viana M., Yttri K.E., Genberg J., Putaud J.P. Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol. *Atmospheric Measurement Techniques* 3 (2010) 79-89;

Costa V., Bacco D., Castellazzi S., Ricciardelli I., Vecchietti R., Zigola C., Pietrogrande M.C. Characteristics of carbonaceous aerosol in Emilia-Romagna (Northern Italy) based on two fall/winter field campaigns. *Atmospheric Research* 167 (2016) 100-107;

Ricciardelli I., Bacco D., Rinaldi M., Bonafè G., Scotto F., Trentini A., Bertacci G., Ugolini P., Zigola C., Rovere F., Maccone C., Pironi C., Poluzzi V. A three-year investigation of daily PM<sub>2.5</sub> main chemical components in four sites: the routine measurement program of the Supersito Project (Po Valley, Italy). *Atmospheric Environment* 152 (2017) 418-430;

Ottone M., Broccoli S., Parmagnani F., Giannini S., Scotto F., Bonvicini L., Luberto F., Bacco D., Trentini A., Poluzzi V., Angelini P., Colacci A., Rossi P.G., Ranzi A. Source-related components of fine particulate matter and risk of adverse birth outcomes in Northern Italy. *Environmental Research* 186 (2020) 109564;

Seinfeld J.H., Pandis S.N. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. 2nd Edition, John Wiley & Sons, New York (2006);

Scotto F., Ricciardelli I., Bacco D., Vagheggin A., Trentini A., Ferrari S., Poluzzi V., Maccone C., Vecchi R. PM<sub>2.5</sub> source apportionment in the Po Valley: a 4 city study in Emilia-Romagna region. *Comunicazione orale, European Aerosol Conference, Milano* (2015);

[https://www.arpae.it/cms3/documenti/cerca\\_doc/supersito/presentazioni/2015/10-presentazEAC2015\\_scotto.pdf](https://www.arpae.it/cms3/documenti/cerca_doc/supersito/presentazioni/2015/10-presentazEAC2015_scotto.pdf)

Scotto 2020 (altro articolo di questa pubblicazione);

US-EPA, "EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide" (2014). [https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-02/documents/pmf\\_5.0\\_user\\_guide.pdf](https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-02/documents/pmf_5.0_user_guide.pdf).

## 11.8 PRINCIPALI SORGENTI CHE PARTECIPANO ALLA FORMAZIONE DEL PM<sub>2,5</sub> IN EMILIA-ROMAGNA

Scotto F., Bacco D., Trentini A., Maccone C., Ferrari S., Poluzzi V.

ARPAE EMILIA ROMAGNA

### RIASSUNTO

Il progetto Supersito, gestito e finanziato da Arpae e Regione Emilia-Romagna (DGR 4258/10 e DGR 1971/13), aveva come obiettivo primario un aumento della conoscenza relativa al particolato atmosferico. Le modalità con cui questo risultato è stato conseguito sono molteplici, in particolar modo ha avuto grande rilievo lo studio dell'importanza e della natura delle sorgenti emissive che sono responsabili della generazione dell'aerosol. A questo scopo è stato applicato un modello statistico "al recettore" di ripartizione delle sorgenti (SA, Source Apportionment) ai dati di composizione chimica del PM<sub>2,5</sub> (Ricciardelli et al. 2017 - i dati sono attualmente disponibili anche in report semestrali aggiornati sul sito di Arpae, [www.arpae.it](http://www.arpae.it)) relativi a quattro siti della regione: tre fondi urbani (Bologna, Parma, Rimini) e un fondo rurale (S. Pietro Capofiume). Il modello al recettore applicato è la PMF (Positive Matrix Factorization), ed è stato implementato utilizzando il software EPA PMF v5.0, sviluppato da US EPA (United States Environment Protection Agency).

I risultati ottenuti dai dati del periodo 2013-2015 hanno mostrato una sostanziale omogeneità delle sorgenti nei siti studiati, con contributi leggermente diversi. La principale fonte antropica di particolato è risultata essere la combustione di biomassa, principalmente utilizzata per il riscaldamento domestico, ma anche per le attività agricole, cucina o altro, che nella stagione fredda arriva a costituire una media del 30 % circa della massa del PM<sub>2,5</sub>. Un altro fattore chiaramente individuabile di combustione di origine antropica è il traffico veicolare, che può generare sulla media annua tra tutti i siti il 15-20 % circa del PM<sub>2,5</sub>, con una componente sia exhaust che non. Le attività produttive e di servizio generano infine il contributo più sito-specifico sia come composizione che come peso sul PM<sub>2,5</sub>; nel sito rurale ad esempio il

contributo di tale sorgente è risultato trascurabile, mentre la media nei siti urbani invece è compresa tra il 5 e il 10 % circa.

La frazione secondaria del particolato viene confermata di gran importanza nella composizione del particolato, arrivando ad essere il 50% del PM<sub>2,5</sub>. Sono state individuate due componenti con composizione chimica e stagionalità differenti: la prima caratterizzata soprattutto dal nitrato d'ammonio, con una marcata importanza quasi esclusivamente durante la stagione fredda, che contribuisce a portare il PM a livelli elevati soprattutto nei periodi di accumulo. La seconda è invece caratterizzata prevalentemente dal solfato d'ammonio e dalle specie organiche, probabilmente secondarie, e fornisce un contributo uniforme durante l'anno. Questa può essere attribuita ad un fondo a scala regionale o anche più ampia di particolato invecchiato, che è stato cioè ampiamente processato in atmosfera.

Un'ulteriore sorgente può essere individuata analizzando l'ammonio che costituisce il 10-12% della massa del PM<sub>2,5</sub>, indipendentemente dal sito o dalla stagione. Siccome questo ione deriva principalmente dall'ammoniaca, gas che viene emesso quasi integralmente, è possibile attribuire alle attività agricole e agli allevamenti almeno un 10% del particolato analizzato: ne consegue che questa componente risulta essere la principale sorgente antropica del particolato non legata a processi di combustione.

**Parole chiave:** PM<sub>2,5</sub>, Emilia-Romagna, Positive Matrix Factorization, particolato primario, particolato secondario

## ABSTRACT

The Supersite project, managed and financed by Arpae and the Emilia-Romagna Region (DGR 4258/10 and DGR 1971/13), had as its primary objective an increase in knowledge relating to atmospheric particulate matter. This result has been achieved by multiple ways; in particular, great importance had the study of the importance and nature of the emissive sources responsible for the generation of the aerosol. For this purpose, a receptor model (SA, Source Apportionment) was applied to the chemical composition data of PM<sub>2.5</sub> (Ricciardelli et al. 2017 – data are also available in updated half-yearly reports on the Arpae website, [www.arpae.it](http://www.arpae.it)) in four sites of the region: three urban background (Bologna, Parma, Rimini) and a rural background (S. Pietro Capofiume). The receptor model was PMF (Positive Matrix Factorization), and it was implemented using the EPA PMF v5.0 software developed by US EPA (United States Environment Protection Agency).

The results obtained from the data on the period 2013-2015 showed a substantial homogeneity of the sources in the sites, with slightly different contributions.

The main anthropogenic source of particulate was biomass burning, mainly used for domestic heating, but also for agricultural, cooking or other activities: it accounts on average for about 30% of PM<sub>2.5</sub> mass during the cold period.

Another clearly identifiable factor of anthropogenic combustion is vehicular traffic, which can generate about 15-20% of PM<sub>2.5</sub> on the annual average among all sites, with both an exhaust and non-exhaust component. Finally, production and service activities generate the most site-specific contribution both in terms of composition and weight on PM<sub>2.5</sub>; in the rural site, for example, the contribution from this source was negligible, while the average in urban sites it was between 5% and 10%. The secondary fraction of the particulate is confirmed to be of great importance in the composition of the particulate, reaching 50% of PM<sub>2.5</sub>. Two components with different chemical composition

and seasonality have been identified. The first one is characterized by ammonium nitrate, with a marked importance almost exclusively during the cold season: it contributes to rise PM to high levels especially in the periods of accumulation. The second one is instead characterized mainly by ammonium sulfate and organic species, probably secondary, and provides a uniform contribution during the year. This can be attributed to a regional or even larger scale background of aged particulate matter, which has been widely processed in the atmosphere.

An additional source can be identified by analyzing the ammonium which constitutes 10-12% of PM<sub>2.5</sub> mass, regardless of the site or the season. This ion mainly derives from ammonia, a gas that is emitted almost entirely by agricultural activities and zootechnics ([https://www.arpae.it/dettaglio\\_generale.asp?id=3884&idlivello=2075](https://www.arpae.it/dettaglio_generale.asp?id=3884&idlivello=2075)); for this reason at least 10% of the analyzed particulate matter can be attributed to agriculture and farms. It follows that this component is the main anthropogenic source of the particulate matter not linked to combustion processes.

**Keyword:** PM<sub>2.5</sub>, Emilia-Romagna, Positive Matrix Factorization, primary particulate matter, secondary particulate matter

## Introduzione

Il progetto Supersito (<https://www.arpae.it/index.asp?idlivello=1459>), gestito e finanziato da Arpae e Regione Emilia-Romagna (DGR 4258/10 e DGR 1971/13), con la collaborazione del CNR-ISAC e di altre istituzioni nazionali ed internazionali, aveva lo scopo di migliorare le conoscenze degli aspetti ambientali e sanitari del particolato fine (PM<sub>2.5</sub> e PM<sub>1</sub>) e ultrafine (inferiore al PM<sub>0.1</sub>) presente in atmosfera.

Tra gli obiettivi del progetto, della durata di sei anni (2010-2016), ha avuto un grande rilievo studiare l'importanza e la natura delle sorgenti emissive responsabili della generazione dell'aerosol rilevato in atmosfera. A questo scopo è stato applicato un modello

statistico “al recettore” per lo studio della ripartizione delle sorgenti (SA, Source Apportionment) ai dati di composizione chimica del  $PM_{2.5}$  (Ricciardelli et al. 2017) misurati in quattro siti della regione, tre fondi urbani (Bologna, Parma, Rimini) e un fondo rurale (S. Pietro Capofiume - BO), durante il biennio aprile 2013 – marzo 2015. Nell’ambito del source apportionment, che mira alla determinazione dei contributi delle sorgenti di emissione all’inquinamento atmosferico, i modelli al recettore costituiscono uno strumento largamente utilizzato dalla comunità scientifica (Belis C.A et al., 2019). Essi identificano le fonti primarie e secondarie del particolato atmosferico, quantificandone l’importanza nel sito recettore attraverso lo studio delle serie storiche della composizione chimica del particolato. La stima dei contributi delle sorgenti di emissione può essere di grande utilità sia per il supporto alla governance, relativamente alle misure da intraprendere per abbassare le concentrazioni di inquinamento atmosferico, sia per tentare di valutare gli effetti sulla salute delle diverse sorgenti, tenendo conto non solo della quantità del particolato emesso, ma anche della qualità. Due studi epidemiologici sono stati effettuati sui fattori identificati da questa prima analisi: uno sugli esiti riproduttivi è stato recentemente pubblicato (Ottone et al., 2020) ed uno sugli effetti a lungo termine della mortalità per cause naturali, respiratorie e cardiovascolari è in fase di sottomissione.

## Metodi

I siti oggetto di studio sono stati scelti in quanto ritenuti rappresentativi di quattro diverse tipologie di aree della regione: fondo urbano della città capoluogo (Bologna – BO/MS), fondo rurale (San Pietro Capofiume - SPC), area costiera (Rimini – RN), e fondo urbano dell’area ovest della regione, nella parte più interna della pianura (Parma - PR).

I dettagli su campionamento del  $PM_{2.5}$  e analisi chimiche sono riportati altrove (Ricciardelli et al. 2017; Bacco et al. 2020, su questo numero). Brevemente, si sono utilizzati filtri in fibra di quarzo da 47 mm di diametro con campionatori a basso volume (55  $m^3$ /giorno; UNI EN 12341). Per la determinazione della concentrazione di

massa giornaliera di  $PM_{2.5}$  sono stati utilizzati analizzatori certificati equivalenti con misure di attenuazione dei raggi  $\beta$  (Swam, FAI Instruments, Roma). Sono state effettuate analisi chimiche per la determinazione della frazione carboniosa (carbonio organico, OC e carbonio elementare, EC), di ioni (ammonio, bromo, calcio, cloruro, magnesio, nitrato, fosfato, potassio, sodio, solfato) e metalli (alluminio, antimonio, arsenico, bario, cadmio, calcio, cromo, ferro, lantanio, piombo, magnesio, manganese, nichel, stagno, potassio, vanadio, zinco).

La frazione carboniosa è stata quantificata tramite analisi termo-ottiche di trasmittanza (Sunset Laboratory Inc. Oregon, USA) eseguite seguendo il protocollo EUSAAR2 (Cavalli et al., 2010, Costa et al., 2016); la componente ionica è stata analizzata in cromatografia ionica (IC) con rilevatore di conducibilità. Le analisi dei metalli sono state eseguite in ICP-MS, estendendo a tutti gli analiti considerati la metodologia UNI EN 14902 creata per Cd, As, Ni e Pb.

Il modello al recettore applicato è la PMF (Positive Matrix Factorization), ed è stato implementato utilizzando il software EPA PMF v5.0, sviluppato da US EPA (United States Environment Protection Agency). Nel sito di Bologna, definito “Main site”, la frequenza delle analisi effettuate è pari al 90% dei giorni di campionamento e la numerosità della serie storica analizzata è pari a 650 dati. Negli altri tre siti, invece, le analisi chimiche sono state effettuate nel 30% circa dei giorni, dando luogo a serie storiche con numerosità poco superiore a 200.

## Risultati

Nonostante il modello sia stato applicato separatamente sui dati relativi ad ogni sito, i risultati ottenuti sono stati comunque molto simili tra loro: sono stati identificati infatti 6 fattori, ognuno con un profilo chimico molto simile in ogni sito, indicando una elevata omogeneità a livello regionale nella formazione di particolato.

Quattro di questi fattori risultano associati a sorgenti emissive di origine antropica, mentre due sono associati a componenti secondarie del particolato:

- traffico veicolare con risollevarimento della componente crostale;
- combustione di biomassa;
- combustioni di oli pesanti;
- mix di attività antropogeniche;
- un fattore secondario caratterizzato dal nitrato d'ammonio;
- un fattore secondario caratterizzato dal solfato d'ammonio e composti organici.

Il mix di attività antropogeniche non è stato rilevato come fattore isolato nel sito rurale di San Pietro Capofiume, che quindi presenta in realtà una soluzione a 5 fattori. L'adattamento statistico è risultato soddisfacente per i 4 siti, con un  $R^2$  tra il  $PM_{2,5}$  previsto e quello osservato compreso tra 0.93 e 0.97.

#### *Fattori individuati collegabili a specifiche sorgenti*

Il fattore legato al traffico veicolare presenta un profilo chimico caratterizzato da alcuni elementi tipici sia della componente exhaust (come EC e OC), che not-exhaust cioè elementi derivanti dall'abrasione delle parti meccaniche (come Sb, Sn, Zn) ed elementi caratteristici del suolo (Fe, Ca, La), che indicano come il traffico veicolare provochi anche un risollevarimento di materiale crostale. Questo fattore presenta contributi percentuali alla massa di  $PM_{2,5}$  variabili tra il 10 % e il 25%, con il sito di Parma che presenta i contributi sia relativi che assoluti più alti, il sito rurale di San Pietro Capofiume e quello di Rimini che presentano invece i contributi più bassi. Probabilmente la maggiore o minore concentrazione in atmosfera di  $PM_{2,5}$  imputabile al traffico nei diversi siti dipende sia dal diverso volume di traffico (come nel caso del sito rurale) sia da condizioni dispersive dell'atmosfera più o meno favorevoli. Questo fattore, in valore assoluto, non mostra una particolare stagionalità: le concentrazioni di  $PM_{2,5}$  imputabili al traffico diminuiscono durante la stagione calda per effetto della maggiore diluizione in atmosfera, ma il contributo percentuale aumenta in seguito al calo di altri fattori "invernal", legati alla combustione di legna per riscaldamento e alla

concentrazione di nitrato d'ammonio, composto tipico dei periodi freddi. In tutti i siti, perciò, il traffico rappresenta la sorgente emissiva che ha il maggiore impatto diretto sul  $PM_{2,5}$  durante la stagione calda.

Il fattore legato alla combustione di legna presenta un profilo chimico caratterizzato da potassio, cloro, carbonio elementare ed organico e, in tutti i siti tranne Parma, anche da alcuni metalli pesanti (Zn, Cd e Pb, questi ultimi normati dal vigente D.Lgs. 155/2010), i quali, pur non incidendo sulla massa di  $PM_{2,5}$ , sono da evidenziare per il loro possibile effetto sulla salute. Questo fattore rappresenta la principale sorgente emissiva in tutti i siti durante la stagione fredda (con un contributo variabile tra il 25% e il 40% circa), ed è presente anche durante la stagione calda, pur con contributi ovviamente molto più bassi (dal 10% al 20% circa). Probabilmente, oltre alla combustione della legna per il riscaldamento domestico (come le stufe a pellet o i caminetti), possono essere una fonte non trascurabile di combustione di legna o simili, in particolare nel periodo caldo, anche le cotture in forno o con grigliatura a legna o carbone (pizzerie, ristoranti e privati) e la combustione a cielo aperto di sfalci e potature agricole. I contributi più bassi da tale sorgente si osservano a Parma, mentre è interessante notare come i contributi più alti, in termini sia assoluti sia percentuali, si osservano nel sito di Rimini. Nella città romagnola infatti la combustione di biomassa legnosa contribuisce circa al 30% del  $PM_{2,5}$  nella media di tutto l'anno (quasi  $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), e spiega più del 15% della massa di  $PM_{2,5}$  anche durante la stagione calda (quasi  $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

Il fattore legato all'utilizzo di olio combustibile, è caratterizzato dalla presenza di vanadio, nichel e solfato, e da una parte di materiale crostale. L'utilizzo di oli combustibili è in generale attribuibile alle raffinerie e al traffico navale; l'elevata correlazione che si osserva tra gli andamenti temporali di questa sorgente nei quattro siti monitorati fa pensare che si tratti di una sorgente con trasporto long-range, quindi coerente con il traffico navale e tale ipotesi sembra essere confermata dall'analisi delle back trajectories (calcolate con Hysplit, NOAA Air Resources Laboratory). La serie storica di questo fattore è infatti caratterizzata da picchi molto elevati: nei giorni precedenti a tali picchi (individuati

selezionando i giorni in cui si osservano valori maggiori al 90° percentile), la massa d'aria era sempre transitata sopra al Mediterraneo, arricchendosi probabilmente del contributo delle emissioni navali.

Questo fattore spiega solo pochi punti percentuali (media annua < 5%) del  $PM_{2.5}$  e prevalentemente durante la stagione calda, per cui non contribuisce in maniera determinante al valore medio annuo del  $PM_{2.5}$ ; tuttavia gli elementi chimici caratterizzanti questo fattore, pur essendo di scarsa importanza in termini di massa, possono avere un effetto nocivo sulla salute (Basagaña et al., 2015; Bell et al., 2014), il che rende comunque questa sorgente degna di interesse. In particolare, questo fattore è responsabile tra un terzo e metà del totale del nichel rilevato sul  $PM_{2.5}$  (parametro soggetto a limiti normativi, che comunque non sono mai stati superati negli anni analizzati).

Infine, il modello identifica un mix di attività antropogeniche (industriali, artigianali, attività di servizio), il cui profilo chimico è caratterizzato soprattutto dalla presenza di alcuni metalli (Zn, Cd, Pb, As) e che, dalle analisi della direzione e velocità del vento, risulta avere principalmente origine locale. Purtroppo il modello non è in grado di disaggregare ulteriormente questa sorgente. Il contributo di questo fattore in termini di massa del  $PM_{2.5}$  è contenuto per tutti i siti urbani, compreso tra il 5% e il 10%, mentre non viene individuato a San Pietro Capofiume.

Il contributo primario delle sorgenti emissive identificate alla massa del  $PM_{2.5}$  è da considerare come un contributo minimo al quale dovrà essere sommata una quota di PM di origine secondaria, come di seguito descritto.

#### *Le componenti secondarie: fattori collegabili a processi di trasformazione in atmosfera*

Il modello identifica in particolare due componenti secondarie. Sono definite "secondarie" quelle componenti non emesse direttamente dalla sorgente, ma che si formano in atmosfera dai precursori emessi dalle fonti dirette, in particolari condizioni meteorologiche e

chimiche. Il  $PM_{2.5}$  di origine secondaria riveste una grande importanza in Emilia-Romagna - e in generale nella Pianura Padana - e da questo studio risulta costituire dal 40% circa a più del 50% del  $PM_{2.5}$  nei quattro siti analizzati.

Una delle due componenti secondarie individuate è un fattore composto principalmente da nitrato d'ammonio: costituisce tra il 25% e il 30% del  $PM_{2.5}$  in tutti i siti sulla media dell'anno ed ha un andamento fortemente stagionale, con contributi estivi nulli (o comunque inferiori al 5%) e pari a circa il 35% durante la stagione fredda, in tutti i siti. La forte stagionalità di questo fattore è sicuramente imputabile alle condizioni meteorologiche, in quanto ad alte temperature il nitrato d'ammonio, che è la specie che maggiormente lo caratterizza, non si trova sul particolato. I gas precursori della specie principale di questo fattore, il nitrato d'ammonio, sono principalmente gli ossidi di azoto e l'ammoniaca. I primi sono emessi per lo più da sorgenti di combustione (come traffico, riscaldamento, industria), la seconda deriva quasi esclusivamente dalle attività agricole e zootecniche, come si evince dall'inventario delle emissioni in atmosfera dell'Emilia-Romagna.

Un secondo fattore di origine secondaria risulta caratterizzato principalmente da solfato d'ammonio e specie organiche: presenta contributi medi annui al  $PM_{2.5}$  variabili tra il 15% e il 30% nei diversi siti, con valori assoluti lievemente superiori durante la stagione calda (probabilmente a causa delle condizioni meteorologiche estive che favoriscono la formazione di sostanze organiche ossidate in atmosfera) che, a fronte di un livello di particolato che invece diminuisce, danno luogo a contributi percentuali molto importanti di questo fattore, compresi tra il 35% a Rimini e il 60% a San Pietro Capofiume. Caratterizzato da stabilità termica e da un tempo di vita in atmosfera relativamente lungo, il solfato è comunemente considerato un fondo continentale. Per quel che riguarda la parte locale, tra i gas precursori di questa componente vi è il biossido di zolfo che, secondo l'inventario delle emissioni in atmosfera dell'Emilia-Romagna, per circa l'80% deriva da attività produttive, ma come evidenzia le analisi delle back trajectories e come noto in letteratura (Hamed et al., 2007), contributi

importanti di questo fattore possono derivare anche dal trasporto a lunga distanza (in particolare dall'Est Europa), dal momento che l'SO<sub>2</sub> tende a diffondersi omogeneamente a causa della sua stabilità termica e della sua sopravvivenza in atmosfera relativamente lunga (Seinfeld and Pandis, 1998).

## Discussione

La grande omogeneità riscontrata nei quattro siti è data dal fatto che le sorgenti dell'inquinamento sono le stesse, con un profilo chimico molto simile.

Tra le sorgenti si conferma la grande importanza del traffico, che risulta la prima fonte durante la stagione calda in tutti i siti. Interessante è la diminuzione, statisticamente significativa, osservata nei weekend: durante i giorni festivi infatti, il PM<sub>2,5</sub> imputabile al traffico diminuisce da circa un quarto a quasi la metà. In termini assoluti, si tratta di una diminuzione di circa 0.5-1.5 µg/m<sup>3</sup>.

Questa diminuzione, che è ottenuta come media su tutto l'anno e risulta al netto della variabilità delle differenti condizioni meteorologiche, dà un'idea di quello che potrebbe essere il decremento causato dalle restrizioni sul traffico, in grado cioè di produrne una riduzione paragonabile a quella che si verifica spontaneamente durante i giorni festivi. È però importante sottolineare che questo decremento non si osserva sul PM<sub>2,5</sub> complessivo (rilevato dalle centraline), ma solo sul PM<sub>2,5</sub> imputabile al fattore traffico individuato con l'analisi PMF.

La combustione di legna, la cui importanza in Pianura Padana è ormai nota da diversi anni (Pietrogrande M.C. et al. 2016) emerge molto chiaramente: risulta la prima sorgente, in tutti i siti considerati, durante la stagione fredda, perciò nel periodo durante il quale sono più frequenti i superamenti della soglia imposta per legge sul PM<sub>10</sub>. Il suo contributo tuttavia non è nullo neppure durante la stagione calda, probabilmente a causa del cooking (pizzerie, grigliate domestiche) e della combustione a cielo aperto degli sfalci agricoli. Queste attività, infatti, presentano una combustione incontrollata, che può avere un'importanza non

trascurabile in termini di emissione di particolato. Il tema delle emissioni da combustione di legna non da riscaldamento domestico rimane comunque un tema molto importante da approfondire. Per quel che riguarda invece la combustione di legna per il riscaldamento domestico, bisogna valutare attentamente costi e benefici. Se è vero che, rispetto ad altre modalità di riscaldamento domestico (basate ad esempio sull'utilizzo di metano), questa è più onerosa in termini di emissioni di particolato, essa utilizza tuttavia, allo stesso tempo, come combustibile, una risorsa rinnovabile, la cui combustione comporta un minore impatto sul riscaldamento globale, a causa del rilascio dell'anidride carbonica precedentemente sottratta all'atmosfera (e fissata nella sua biomassa vegetale) dalla pianta, durante il suo ciclo di vita. Per questo motivo in passato l'installazione di apparecchi a biomasse ha usufruito di incentivi nazionali, nell'ambito delle strategie per lo sviluppo delle fonti rinnovabili non fossili; tuttavia il riconoscimento dell'importanza dell'inquinamento dell'aria generato dai piccoli apparecchi a legna ha portato ad intraprendere un percorso per il contenimento dell'uso degli apparecchi più inquinanti per limitare la contabilizzazione delle biomasse legnose ai fini degli obiettivi di sviluppo delle fonti rinnovabili di energia.

Non è stato individuato nessun fattore attribuibile ad una singola sorgente industriale, ma solo una miscela di fonti, un più generico "mix antropogenico", che ha un'importanza minore rispetto ai due fattori precedenti, con un impatto non superiore al 10% della massa di PM<sub>2,5</sub>, nei siti in cui esso ha un impatto, cioè solo quelli urbani (almeno in termini di particolato primario). Ciò è in linea con quanto emerso in precedenti studi europei (Belis et al., 2013, progetto Sefira, Giardullo, 2016), ma contrasta con ciò che viene normalmente percepito dalla popolazione. Da quanto emerge dal progetto Sefira (Giardullo P., 2016), l'industria è percepita come il primo fattore inquinante; in un'indagine rivolta ai cittadini della Pianura Padana, nell'ambito del progetto Prepair ([http://www.lifepprepair.eu/wp-content/uploads/2019/07/E2D1\\_Valuta\\_lAria\\_Rapporto\\_completo.pdf](http://www.lifepprepair.eu/wp-content/uploads/2019/07/E2D1_Valuta_lAria_Rapporto_completo.pdf)), il 51.5% degli intervistati ha segnalato l'industria come causa dell'inquinamento atmosferico,

ponendola di poco dietro a traffico (segnalato dal 59,8%) e agli impianti di riscaldamento (54,0%), aspetto che non trova supporto nelle misure sperimentali.

Il fattore di trasporto a lungo raggio della combustione di oli pesanti, individuato inaspettatamente anche nei siti dell'entroterra, è un tracciante delle masse d'aria che hanno transitato sul Mediterraneo e porta ad individuare nel traffico navale la probabile sorgente inquinante legata alle specie chimiche che compongono questo fattore. Esso impatta di pochi punti percentuali sulla massa di  $PM_{2,5}$  ed ha valori alti soprattutto durante il periodo estivo, in cui il valore assoluto di particolato in aria non assume quasi mai livelli elevati. Il contributo principalmente estivo di questo fattore può essere particolarmente interessante. È infatti noto che gli effetti sanitari a breve termine per un incremento unitario di particolato sono notevolmente più alti in estate che in inverno; questo risultato è stato confermato da numerosi studi multicentrici condotti in Italia e nel Mediterraneo (Nawrot, 2007; Samoli, 2013; Stafoggia, 2008). La causa di questa maggiore nocività del particolato estivo, a parità di incremento in massa, è ancora da chiarire e lo studio della differente composizione e delle differenti sorgenti del particolato nella stagione estiva può fornire strumenti per una maggiore comprensione. Sebbene presenti un contributo alla massa molto basso, questo fattore spiega una parte rilevante del nichel presente nel particolato, un metallo classificato dalla IARC (Agenzia Internazionale di Ricerca sul Cancro) come cancerogeno per l'uomo (Gruppo 1, IARC Monographs 100C, 2012). Il contributo di questo fattore, benché possa sembrare trascurabile se comparato alle emissioni locali derivanti da traffico o dalla combustione di legna, è comunque presente e identificabile con chiarezza e costituisce un interessante esempio di apporto di origine certamente non-locale.

L'analisi non identifica un fattore "spray marino", neppure nel sito costiero di Rimini.  $Na^+$  e  $Cl^-$  presentano una grande percentuale di valori sotto il limite di rilevanza. Anche sostituendo tutti i valori di  $Na^+$  e  $Cl^-$  sotto al limite di rilevanza, per tutti e tre gli anni con il limite stesso, si troverebbe un valore inferiore al 2% della massa di  $PM_{2,5}$  e questo valore sarebbe sicuramente una sovrastima,

non solo perché i valori inferiori al limite verrebbero sostituiti con il massimo, ma anche perché è noto che  $Cl^-$  ha diverse fonti antropiche, come la combustione di biomassa (Hovorka et al. 2015) o l'incenerimento dei rifiuti (Lind et al. 2007), mentre  $Na^+$  è anche un componente crostale (Mason B. 1966).

Lo studio conferma la grande importanza della componente secondaria, che costituisce circa la metà del particolato durante la stagione fredda ed ha un peso variabile dal 37% al 68% durante la stagione calda. La stagione calda presenta un contributo percentuale maggiormente variabile da sito a sito, con il contributo percentuale maggiore che si rileva nel sito di San Pietro Capofiume.

La grande importanza che la componente secondaria riveste in Emilia-Romagna rende essenziale cercare di individuare le sorgenti che ne sono responsabili, perché altrimenti si spiegherebbe solo poco più della metà dell'origine del  $PM_{2,5}$ . Parte delle fonti che sono responsabili della componente primaria sono indirettamente responsabili anche della frazione secondaria: i gas precursori del nitrato e del solfato sono infatti gli ossidi di azoto e di zolfo, che sono emessi sostanzialmente dalle combustioni (i primi) e dalle attività produttive locali e non (i secondi), secondo l'inventario regionale delle emissioni ([https://www.arpae.it/dettaglio\\_generale.asp?id=3884&i\\_dlivello=2075](https://www.arpae.it/dettaglio_generale.asp?id=3884&i_dlivello=2075)). Una grande importanza riveste però anche lo ione ammonio, controione positivo di solfato e nitrato. Questo ha come precursore quasi esclusivo l'ammoniaca, un gas contenente azoto in forma ridotta. Secondo l'inventario regionale delle emissioni dell'Emilia-Romagna, l'ammoniaca deriva in forma quasi esclusiva (> 95%) dalle attività agricole e zootecniche. Sebbene non risulti direttamente come un fattore PMF, questa attività antropica appare quindi responsabile, verosimilmente, di almeno un 10% circa del  $PM_{2,5}$  medio osservato nei 4 siti, perché la concentrazione di ammonio è in media il 10-12% della massa del  $PM_{2,5}$ . Secondo la già citata indagine Prepair, solo un quarto circa dei cittadini intervistati in Pianura Padana percepisce le attività agricole e gli allevamenti come una causa dell'inquinamento atmosferico, quando invece

questa risulta verosimilmente più importante, in Emilia-Romagna, delle attività industriali.

Infine, si vuole sottolineare come l'analisi delle back trajectories abbia evidenziato un incremento del fattore secondario solfato in corrispondenza di masse d'aria provenienti dall'Est Europa, come già identificato in letteratura (Hamed et al., 2007). Il contributo proveniente da questi paesi non è stato rigorosamente quantificato, ma costituisce un interessante argomento di approfondimento.

### Conclusioni

Lo studio ha individuato le principali sorgenti di inquinamento dell'Emilia-Romagna, identificando gli stessi fattori di inquinamento, con un profilo emissivo molto simile, in tutti i quattro siti, pur rappresentativi di aree diverse della regione. Sono stati individuati 3 fattori di origine prettamente locale (traffico, riscaldamento e attività produttive) e 3 fattori di scala regionale (principalmente di origine secondaria) o con trasporti extraregionali (con tracce legate al trasporto navale).

Quella qui presentata è stata la prima analisi svolta sui dati raccolti nei quattro siti, ma il monitoraggio del PM<sub>2,5</sub> e delle sue componenti prosegue e ha dato origine ad una rete di approfondimenti tuttora esistente ([https://www.arpae.it/dettaglio\\_generale.asp?id=4169&dlivello=2148](https://www.arpae.it/dettaglio_generale.asp?id=4169&dlivello=2148)). Anche lo studio della speciazione chimica attraverso le analisi di source apportionment continua e permetterà l'aggiornamento delle serie storiche dei contributi di queste sorgenti, per valutarne l'andamento nel tempo, l'eventuale modificarsi del panorama delle fonti impattanti nella regione Emilia-Romagna e della loro relativa importanza. Serie storiche via, via più lunghe saranno utili anche per approfondire e aiutare la comprensione degli impatti che questi inquinanti possono avere in campo sanitario.

Uno studio sugli effetti sugli esiti riproduttivi dei fattori individuati da questa analisi PMF è stato pubblicato di recente (Ottone, 2020)

## Bibliografia

Bacco et al 2020 (su questo numero)

Basagaña X., Jacquemin B., Karanasiou A., Ostro B., Querol X., Agis D., Alessandrini E., Alguacil J., Artiñano B., Catrambone M., de la Rosa J.D., Díaz J., Faustini A., Ferrari S., Forastiere F., Katsouyanni K., Linares C., Perrino C., Ranzi A., Ricciardelli I., Samoli E., Zauli-Sajani S., Sunyer J., Stafoggia M.; MED-PARTICLES Study group, 2015. Short-term effects of particulate matter constituents on daily hospitalizations and mortality in five South-European cities: results from the MED-PARTICLES project. *Environ Int.*, Feb;75:151-8;

Bell M.L., Ebisu K., Leaderer B.P., Gent J.F., Lee H.J., Koutrakis P., Wang Y., Dominici F., Peng R.D., 2014. Associations of PM<sub>2.5</sub> constituents and sources with hospital admissions: analysis of four counties in Connecticut and Massachusetts (USA) for persons ≥ 65 years of age. *Environ Health Perspect.*, Feb; 122(2): 138-44

Belis C.A., Favez O., Mircea M., Diapouli E., Manousakas M-I., Vratolis S., Gilardoni S., Paglione M., Decesari S., Mocnik G., Mooibroek D., Salvador P., Takahama S., Vecchi R., Paatero P., 2019. European guide on air pollution source apportionment with receptor models. JRC Technical report

Belis C.A., Karagulian F., Larsen B.R., Hopke P.K., 2013. Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe. *Atmospheric Environment* 69, 94-108

Cavalli F., Viana M., Yttri K.E., Genberg J., Putaud J.P., 2010. Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol. *Atmospheric Measurement Techniques* 3: 79-89

Costa V., Bacco D., Castellazzi S., Ricciardelli I., Vecchiotti R., Zigola C., Pietrogrande M.C., 2016. Characteristics of carbonaceous aerosol in Emilia-Romagna (Northern Italy) based on two fall/winter field campaigns. *Atmospheric Research* 167, 100-107

Giardullo P., June 2016. SEFIRA Project, Working Package n. 6 – Deliverable 6.7. Social perception of Air Quality. [http://www.sefira-project.eu/ad/wp-content/uploads/2013/11/Deliverable-6.7\\_FINAL1.pdf](http://www.sefira-project.eu/ad/wp-content/uploads/2013/11/Deliverable-6.7_FINAL1.pdf) oppure <http://www.sefira-project.eu>

Hamed A., Joutsensaari J., Mikkonen S., Sogacheva L., Dal Maso M., Kulmala M., Cavalli F., Fuzzi S., Facchini M.C., Decesari S., Mircea M., Lehtinen K.E.J., Laaksonen A., 2007. Nucleation and growth of new particles in Po Valley, Italy. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 355-376

Hovorka J., Pokorná P., Hopke P.K., Křůmal K., Mikuška P., Pišová M., 2015. Wood combustion, a dominant source of winter aerosol in residential district in proximity to a large automobile factory in Central Europe". *Atmospheric Environment* 113 98-107

Lind T., Hokkinen J., Jokiniemi J.K., 2007. Fine particle and trace element emissions from waste combustion - Comparison of fluidized bed and grate firing". *Fuel Processing Technology*, 88, 737-746

Mason B., 1966. Composition of the Earth. *Nature*, 211, 616-618

Nawrot, T.S., Torfs, R., Fierens, F., De Henauw, S., Hoet, P.H., Van Kersschaever, G., De Backer, G., Nemery, B., 2007. Stronger associations between daily mortality and fine particulate air pollution in summer than in winter: evidence from a heavily polluted region in western Europe. *J. Epidemiol. Community Health* 61 (2), 146–149

Ottone M., Broccoli S., Parmagnani F., Giannini S., Scotto F., Bonvicini L., Luberto F., Bacco D., Trentini A., Poluzzi V., Angelini P., Colacci A., Ross P.G., Ranzi A., 2020. Source-related components of fine particulate matter and risk of adverse birth outcomes in Northern Italy. *Environmental Research*, Vol. 186, 109564

Pietrogrande M.C., Bacco D., Ferrari S., Ricciardelli I., Scotto F., Trentini A., Visentin M., 2016. "Characteristics and major sources of carbonaceous aerosols in PM<sub>2.5</sub> in Emilia Romagna Region (Northern Italy) from four-year observations". *Science of the Total Environment*, 553: 172–183.

PREPAIR LIFE project, "CITTADINI E QUALITA' DELL'ARIA, I risultati della prima indagine realizzata a livello di bacino padano", Maggio 2019, [http://www.lifeprepare.eu/wp-content/uploads/2019/07/E2D1\\_Valuta\\_IAria\\_Rapporto\\_completo.pdf](http://www.lifeprepare.eu/wp-content/uploads/2019/07/E2D1_Valuta_IAria_Rapporto_completo.pdf)

Ricciardelli I., Bacco D., Rinaldi M., Bonafè G., Scotto F., Trentini A., Bertacci G., Ugolini P., Zigola C., Rovere F., Maccone C., Pironi C., Poluzzi V., 2017. A three-year investigation of daily PM<sub>2.5</sub> main chemical components in four sites: the routine measurement program of the Supersito Project (Po Valley, Italy). *Atmospheric Environment* 152: 418-430

Samoli E, Stafoggia M, Rodopoulou S, Ostro B, Declercq C, Alessandrini E, Díaz J, Karanasiou A, Kelessis AG, Le Tertre A, Pandolfi P, Randi G, Scarinzi C, Zauli-Sajani S, Katsouyanni K, Forastiere F; MED-PARTICLES Study Group. 2013. Associations between fine and coarse particles and mortality in Mediterranean cities: results from the MED-PARTICLES project. *Environ Health Perspect*. Aug;121(8):932-8

Seinfeld and Pandis, 1998. *Atmospheric Chemistry And Physics: From Air Pollution to Climate Change*. Wiley and Sons, New York, 969-971

Stafoggia, M., Schwartz, J., Forastiere, F., Perucci, C., 2008. Does temperature modify the association between air pollution and mortality? A multicity case-crossover analysis in Italy. *Am. J. Epidemiol.* 167 (12), 1476–1485.

## 12. IL PROBLEMA DELLA VALUTAZIONE DELL'ESPOSIZIONE DELLA POPOLAZIONE

## 12.1 VARIABILITÀ DELL'ESPOSIZIONE ALL'INQUINAMENTO ATMOSFERICO IN AMBITO URBANO: APPROFONDIMENTI NELL'AMBITO DEL PROGETTO SUPERSITO

Zauli Sajani S., Marchesi S., Trentini A., Maccone C., Scotto F., Rovelli S., Cattaneo A., Colacci A., Poluzzi V.

ARPAE EMILIA ROMAGNA

### RIASSUNTO

Nell'ambito delle attività del progetto "Supersito" ([www.supersito-er.it](http://www.supersito-er.it)) Arpa Emilia-Romagna ha condotto diverse campagne di misura volte alla valutazione della variabilità dell'esposizione della popolazione all'inquinamento atmosferico in ambito urbano. Le campagne di misura di interesse prioritario sono state quattro e hanno avuto come obiettivo l'analisi delle differenze di esposizione: a) tra chi risiede in zone ad alto e a basso traffico veicolare; b) tra chi risiede nello stesso edificio sul fronte strada trafficato e chi sul retro; c) tra chi risiede ai diversi piani dello stesso edificio; d) tra l'estate e l'inverno. Coerentemente con gli obiettivi generali del progetto l'attenzione è stata rivolta principalmente alla caratterizzazione delle proprietà fisico-chimiche del particolato.

Dalle indagini effettuate è emersa una differenza molto ridotta (pari a circa il 10-15%) tra le concentrazioni di  $PM_{2,5}$  misurate nei siti ad alto e a basso traffico. Una variabilità spaziale molto più marcata è stata trovata per le concentrazioni di particelle ultrafini (diametro inferiore a 100 nm) e, per quanto riguarda le componenti chimiche del  $PM_{2,5}$ , del ferro e del carbonio elementare. Differenze significative sono state riscontrate anche rispetto alla forma della distribuzione dimensionale, con un picco nel range delle nanoparticelle (< 50 nm) ben evidente nel sito da traffico.

La comparazione dei livelli di inquinamento presenti sul fronte e sul retro di un edificio posto in prossimità di una strada trafficata ha evidenziato gradienti di concentrazione per le diverse metriche utilizzate per la misura del particolato (inclusa la distribuzione dimensionale) in buona parte sovrapponibili a quelli ottenuti confrontando il sito da traffico e quello residenziale. Questo risultato mostra come siano

possibili non trascurabili errori di classificazione dell'esposizione per gli individui residenti in prossimità di strade trafficate ed evidenzia le ridottissime scale spaziali (decine di metri) e temporali (pochi minuti) in cui possono avvenire importanti trasformazioni nelle caratteristiche fisico-chimiche del particolato e delle nano-particelle nello specifico.

La campagna sul profilo verticale, condotta con misure a diversi livelli di uno stesso edificio di 70 metri, ha voluto indagare l'esistenza e l'entità dei gradienti di esposizione della popolazione rispetto al piano di residenza. I risultati hanno evidenziato la notevole uniformità sulla verticale delle concentrazioni in massa del  $PM_{2,5}$  abbinata però ad alcune significative variazioni nella composizione chimica. Molto più marcata è risultata la variabilità con la quota dell' $NO_2$  e dei BTEX, in particolare nel periodo invernale. I risultati suggeriscono l'opportunità che l'assegnazione dell'esposizione ad alcuni inquinanti tenga in considerazione anche il piano di residenza.

**Parole chiave:** Esposizione,  $PM_{2,5}$ , composizione chimica, particelle ultrafini, distribuzione dimensionale

### ABSTRACT

In the framework of Project "Supersito" ([www.supersito-er.it](http://www.supersito-er.it)) Arpa Emilia-Romagna carried out several field campaigns in order to evaluate the different people exposure to atmospheric pollutants in an urban area. Four different field campaigns were of major interest for the Project and the goal was the analysis of different exposure between people living: a) in areas with high/low traffic fluxes; b) in the front/rear of a building standing on a road with high traffic volumes; c) at different floors in the same building; and d) between summer and winter seasons. Main focus was on the characterization of the

physical and chemical properties of particulate matters according to Project “Supersito” general objectives.

A small difference (about 10-15%) emerged between PM<sub>2.5</sub> concentrations between high and low traffic areas, while a more pronounced spatial variability was found for ultra fine particles (diameter less than 100 nm) and for iron and elemental carbon among the chemical components of PM<sub>2.5</sub>. Significant differences were also found for the shape of the size distribution, with a distinct peak in the range of nano particles (< 50 nm) in the high traffic site.

The comparison of pollutants level in the front/rear of a building near a high traffic road pointed out concentration gradients for the different particulate metrics (including size distribution) which are in close agreement with those obtained comparing the traffic and the residential sites. These results indicate that relevant misclassification errors are possible when attributing exposure to people living by roads with high traffic volumes and point out the very small spatial (tens of meters) and temporal (few minutes) scales in which important physical and chemical transformations in the characteristics of particulate, and specifically nano particles, may occur.

The field campaign related to the vertical profile was carried out at different floors of a 70 meter building and was addressed to the study of exposure gradients for people living at different levels above the ground. The results showed that mass concentration for PM<sub>2.5</sub> is very homogeneously distributed in the vertical, while some significant differences are related to the chemical composition of particulate matter. NO<sub>2</sub> and BTEX variability in the vertical distribution was more evident, especially during summer season. These results suggest to consider the opportunity for some air pollutants of attributing exposure as a function of the height of residence as well.

**Keywords:** people exposure, PM<sub>2.5</sub>, chemical properties, ultra fine particles, size distribution

## Introduzione

Numerosi studi hanno fornito solide prove sugli effetti del particolato sospeso (PM) sulla funzionalità polmonare e su innumerevoli patologie di tipo cardiovascolare, respiratorio e tumorale (Beelen et al., 2014; Raaschou-Nielsen et al., 2013). Permane tuttavia una considerevole incertezza su quali caratteristiche fisiche e quali componenti chimiche del particolato siano più importanti nel determinare gli effetti sulla salute (REVIHAAP, 2013). A questo proposito, una particolare attenzione è stata dedicata negli ultimi anni allo studio degli effetti delle particelle ultrafini (UFP, particelle con diametro <100 nm) a causa della loro riconosciuta capacità di penetrare fino nelle vie aeree profonde (Ohlwein et al., 2019)

Il traffico veicolare, in particolare all'interno delle aree urbane, è sicuramente una delle principali fonti di emissione sia di particelle fini che ultrafini e l'esposizione di tipo residenziale alle emissioni veicolari è stata associata ad un incremento di numerose patologie, compresa una maggiore prevalenza di sintomi respiratori (Delfino et al., 2014). Una questione chiave negli studi sulla vicinanza residenziale al traffico è però ancora la valutazione dell'esposizione. Sono stati compiuti notevoli sforzi sia in ambito sperimentale che modellistico per valutare la variabilità spaziale, principalmente dovuta al traffico, dei principali inquinanti all'interno delle città. Diversi studi hanno valutato le differenze di concentrazione di inquinanti atmosferici in siti da traffico e in siti di fondo urbano (Boogard et al., 2011) e all'interno dei canyon stradali (Zhou et al. 2008). Da segnalare in questo ambito sono i notevoli risultati raggiunti con i Land Use Regression Model (LUR), modelli che mettendo in relazione i dati di monitoraggio ad alta risoluzione spaziale di alcuni inquinanti atmosferici con diverse variabili predittive come densità di popolazione, uso del suolo e variabili legate ai flussi di traffico riescono a stimare con buona approssimazione le concentrazioni degli inquinanti atmosferici nell'intera area urbana (Rahman et al., 2020). L'insieme di questi studi sulla variabilità spaziale degli inquinanti atmosferici ha permesso di raggiungere notevoli risultati in campo epidemiologico ma ha anche posto in evidenza l'importanza degli studi locali che permettono di cogliere

le caratteristiche peculiari delle distribuzioni spaziali degli inquinanti in rapporto alle specifiche caratteristiche delle varie aree (tipologie di veicoli circolanti, strutture urbanistiche, caratteristiche meteorologiche etc).

Diversi aspetti specifici rimangono inoltre da indagare. Uno di questi è sicuramente quello legato alle differenze tra le concentrazioni di inquinanti atmosferici nella parte anteriore e posteriore degli edifici posti in prossimità di strade trafficate (Weber et al., 2008). La questione è di notevole interesse in quanto si tratta di valutare l'entità dell'errore che si commette negli studi epidemiologici nell'assegnare la stessa esposizione agli individui che risiedono nello stesso edificio quando questo si trovi vicino ad una strada trafficata.

Un altro aspetto poco indagato dalla letteratura scientifica è rappresentato dall'analisi della variabilità verticale delle concentrazioni degli inquinanti atmosferici, in particolare all'interno delle aree urbane. Alcuni studi si sono concentrati sulle configurazioni canyon (Kumar et al., 2008) mentre pochissimi hanno valutato la variazione verticale di inquinanti atmosferici su edifici isolati o in configurazioni non canyon (Kholer, 2005; Imhof, 2005).

In questo lavoro vengono presentati i risultati di diverse campagne di monitoraggio condotte nell'ambito del Progetto Supersito ([www.arpae.it/supersito](http://www.arpae.it/supersito)) volte ad analizzare la variabilità dell'esposizione all'inquinamento atmosferico in ambito urbano. In particolare l'attenzione è stata dedicata alla valutazione delle differenze di esposizione:

- tra chi risiede in zone ad alto e a basso traffico;
- tra chi risiede nello stesso edificio sul fronte strada e sul retro;
- tra chi risiede ai diversi piani dello stesso edificio;

Le campagne di monitoraggio hanno riguardato anche ambienti indoor ma in questo lavoro vengono presentati i risultati dei soli monitoraggi condotti in ambiente outdoor.

## Metodi

### La strumentazione

Le campagne di misura hanno avuto diversi aspetti peculiari ma anche elementi comuni. Uno degli aspetti comuni ha riguardato la raccolta contestuale dei dati di monitoraggio nei diversi siti che si intendeva mettere a confronto. La motivazione della scelta era legata all'obiettivo di garantire il più possibile l'uniformità delle condizioni meteorologiche tra i siti monitorati e permettere così di isolare più facilmente, nella comparazione delle condizioni ambientali, gli effetti legati alle caratteristiche locali (sia emissive che dispersive). In coerenza con gli obiettivi generali del progetto Supersito, le attività sperimentali hanno dedicato una attenzione prioritaria alla misura del particolato aerodisperso e in particolare alla raccolta di dati di concentrazione di  $PM_{2.5}$ , di numero di particelle e di composizione chimica. In alcune campagne di misura è stato possibile anche misurare inquinanti gassosi quali il biossido di azoto ( $NO_2$ ) e i BTEX (Benzene, Toluene, EtilBenzene e Xylene). Qui di seguito vengono forniti i dettagli dei metodi di misura.

*PM<sub>2.5</sub> – Massa.* La massa del particolato fine ( $PM_{2.5}$ ) è stata misurata con campionatori gravimetrici (Skypost, TCR TECORA Milano, Italia). Tali campionatori prevedono la deposizione del particolato su filtro con un cambio automatico dei filtri di tipo sequenziale. La rotazione dei filtri è stata importata su 24 o su 8 ore a seconda delle specifiche necessità di utilizzo (in particolare in funzione della necessità in alcune campagne e in alcuni siti di poter avere ragionevoli garanzie di raggiungere la soglia di rilevabilità e al contempo di non saturare i filtri). Il flusso di aria in ingresso è stato fissato a 2,3 m<sup>3</sup>/h. I campioni sono stati raccolti su filtri in fibra di quarzo (Whatman, 47 mm di diametro) e pesati seguendo la procedura descritta nella norma europea EN 12341: 2014. Gli strumenti sono stati collocati su stativi portando così la testa di prelievo a circa 2 m dal suolo. In alcune campagne di monitoraggio alla misura gravimetrica è stata affiancata una misura del  $PM_{2.5}$  con metodologia Optical Particle Counter (OPC) che permette di ottenere dati ad alta risoluzione temporale (dati al minuto). Gli OPC stimano la concentrazione in massa del  $PM_{2.5}$  tramite l'analisi dello scattering dovuto all'interazione della radiazione

monocromatica emessa da un laser con le particelle aerodisperse. In questo caso si parla di una metodica non considerata né di riferimento né equivalente. In particolare gli strumenti utilizzati sono stati del tipo DustTrak (TSI, Shoreview, MN, Stati Uniti d'America). Su sensibilità e accuratezza di tale tipo di strumentazione è stata condotta una analisi specifica (dati non mostrati).

*PM<sub>2,5</sub> - Composizione chimica.* La caratterizzazione chimica del particolato PM<sub>2,5</sub> è stata effettuata rispetto alle seguenti famiglie chimiche:

- Ioni: NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Cl<sup>-</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Br<sup>-</sup>
- Carbonio organico ed elementare
- Metalli: Ni, V, As, Cr, Zn, Fe, Mn, Al

Le misure, a causa della disponibilità di un solo filtro per ogni giorno in ogni sito, sono state effettuate a giorni alterni per ognuno dei 3 gruppi di componenti chimiche. Gli ioni inorganici sono stati determinati estraendo le specie in 10 mL di acqua ultrapura. Gli estratti sono stati filtrati e analizzati tramite Cromatografia Ionica (Dionex ICS-1000 per gli anioni e ICS-1100 per i cationi, Thermo Fischer Scientific Inc., USA). Il carbonio organico (OC – nel report viene adottata la notazione inglese) e il carbonio elementare (EC – anche per il carbonio elementare viene adottata la notazione inglese) sono stati analizzati tramite il metodo della trasmittanza termooptica (Lab OC-EC Aerosol Analyzer, Sunset Laboratory Inc., Tigard, Oregon, USA) e seguendo il protocollo EUSAAR\_2. I valori di OC ed EC sono stati poi sommati per ottenere il carbonio totale (TC). I metalli sono stati analizzati tramite la tecnica Inductively Coupled Plasma – Mass Spectrometry (8800 ICP-MS, Agilent Technologies Inc., USA). La digestione del campione e le analisi sono state effettuate in base alla norma europea EN 14902: 2005, con un'efficienza di recupero di oltre l'85%. Nelle analisi sono stati considerati i dati delle sole specie chimiche con più del 50% di dati superiori al limite di quantificazione e misurati in contemporanea nei diversi siti.

*PM - Distribuzione dimensionale.* La misura della distribuzione dimensionale del particolato (l'andamento cioè del numero di particelle in funzione del diametro) non presenta metodiche di riferimento ed è tuttora oggetto di una intensa attività di ricerca sperimentale che genera un frequente rinnovo della tipologia di strumenti disponibili sul mercato. Gli strumenti utilizzati nelle campagne di misura qui presentate sono due spettrometri Fast Mobility Particle Sizer (FMPS, TSI, modello 3091).

Gli spettrometri FMPS misurano la dimensione e la concentrazione in numero delle particelle da 5,6 nm a 560 nm suddivisi in 32 intervalli dimensionali equispaziali in scala logaritmica. I canali dimensionali sotto ai 13 nm sono stati esclusi dall'analisi a causa della numerosità di dati al di sotto del limite di rilevabilità e anche a causa degli artefatti spesso presenti in questo intervallo dimensionale e evidenziati in alcuni studi in letteratura. Le concentrazioni di particelle ultrafini (UFP) sono state ottenute sommando il numero di particelle rilevate nei canali tra 13 e 100 nm. Al fine di garantire la massima comparabilità dei dati raccolti sono state condotte diverse campagne di interconfronto prima e dopo le campagne di monitoraggio. Le rilevazioni degli FMPS durante i periodi di interconfronto sono state utilizzate per effettuare delle correzioni sui dati misurati. In particolare, i dati di uno dei due FMPS sono stati corretti canale per canale sulla base dei dati misurati dall'altro FMPS.

*Inquinanti gassosi.* Come già accennato, in alcune campagne di monitoraggio è stato possibile misurare alcuni inquinanti gassosi. Tali misure sono da considerarsi di corredo a quelle principali, focalizzate sul particolato. La loro natura di dati aggiuntivi deriva anche dal tipo di strumentazione utilizzata. Queste misure sono state infatti condotte con campionatori passivi del tipo Radiello. Tali strumenti di misura hanno una buona affidabilità ma forniscono solo un dato integrato nel tempo (variabile da alcuni giorni a 15 giorni a seconda dell'inquinante e del periodo). Sono stati oggetto di monitoraggio tramite questa tecnica il biossido di azoto (NO<sub>2</sub>) e i BTEX.

## Siti e periodi di monitoraggio

*Alto vs basso traffico.* Come sito da traffico è stata scelta una postazione in Viale Silvani (in prossimità del civico 4), una delle strade che circondano il centro storico di Bologna. L'arteria è una delle più trafficate di tutto il territorio comunale con flussi giornalieri di circa 31,000 veicoli (4-5% veicoli pesanti – dati forniti dal Settore Traffico del Comune di Bologna). Il campionamento è stato fatto in un ampio tratto stradale in qualche modo assimilabile ad un canyon (20 metri di larghezza circa). Il sito residenziale è stato collocato in una zona a basso traffico a circa 2 km dal centro storico di Bologna. La Figura 12.1.1 ( riquadri A e B) mostra le caratteristiche dei due siti di monitoraggio, in particolare rispetto alla prossimità alle emissioni dirette da traffico. Sono state effettuate tre campagne di misura di 15 giorni ognuna. I periodi di campionamento sono stati:

1.22 Febbraio – 7 Marzo 2012;

2.16 Aprile – 30 Aprile 2012;

3.28 Maggio – 11 Giugno 2012.

*Fronte vs retro edificio* Il sito scelto per le attività di monitoraggio è l'edificio di Viale Silvani 4/C, Bologna, ex sede dell'Ufficio Cartografico della Regione Emilia-Romagna. Il sito è uno dei due descritti nel paragrafo precedente. L'edificio si affaccia su Viale Silvani ed è esposto sul fronte strada ad un intenso traffico; sul retro si trova una piccola area verde confinante con il cortile di un asilo. Le campagne di misura hanno riguardato sia il PM (massa, composizione chimica e distribuzione dimensionale) che il biossido di azoto. La Figura 12.1.1 (riquadro C) mostra l'area circostante l'edificio con evidenziati i punti di campionamento. Le campagne di misura sono state condotte nei seguenti periodi:

1.10 Giugno 2013 – 12 Luglio 2013

2.28 Novembre 2013 – 13 Dicembre 2013



Figura 12.1.1. Visione di insieme dei siti di monitoraggio. Confronto sito residenziale e da traffico (riquadri A e B). Confronto fronte e retro edificio (riquadro C). Confronto diversi piani di un edificio (riquadro D).

*Piani alti vs piano strada.* Una delle torri ove ha sede la Regione Emilia-Romagna è stato l'edificio prescelto per le campagne di misura. In particolare la torre utilizzata

per il monitoraggio è stata quella al civico 52 di Viale Aldo Moro. Questo sito presentava caratteristiche che ben si prestavano agli scopi dell'indagine avendo una altezza

considerevole (circa 70 metri) e una geometria regolare. La Figura 12.1.1 (riquadro D) mostra la torre dove si sono svolte le campagne di misura, con l'indicazione dei piani individuati per il monitoraggio ed i parametri misurati a ciascun livello. Le altezze dei piani (rispetto al piano stradale) sono: 65 metri per il 16° piano, 43 metri per il 10° piano, 25 metri per il 5° piano, 15 metri per il 2° piano, 2 metri per il piano strada.

La dotazione strumentale è stata più ricca rispetto alle precedenti campagne di misura. Agli inquinanti monitorati nelle campagne di misura precedenti si sono infatti aggiunti il biossido di azoto (NO<sub>2</sub>) e i BTEX (benzene, toluene, etil-benzene, xilene). Sono stati inoltre utilizzati alcuni analizzatori DustTrak per una misura ottica del PM<sub>2,5</sub>. I campionatori Skypost sono stati posizionati in ciascuno dei 5 livelli individuati, mentre gli analizzatori FMPS sono stati posti al piano strada, al quinto ed al sedicesimo piano; i DustTrak, infine, sono stati posizionati a tutti i livelli nella sola campagna invernale, mentre in quella estiva sono stati posizionati soltanto al secondo, quinto e sedicesimo piano, a causa della indisponibilità di 2 strumenti nel periodo individuato per la campagna e del malfunzionamento di uno degli strumenti disponibili nella prima settimana della campagna estiva. Il biossido di azoto ed i composti BTEX sono stati misurati utilizzando a ciascuna quota una coppia di campionatori passivi per NO<sub>2</sub> ed una coppia per BTEX (una terna nella campagna estiva) per cercare di minimizzare le problematiche legate a eventuali danneggiamenti o malfunzionamenti dei campionatori. Per questi parametri si è potuto disporre di due dati bi-settimanali per ciascuna campagna e per ciascuno dei livelli considerati.

Le campagne di monitoraggio sono state condotte:

1. dal 20 Febbraio al 6 Marzo 2015;
2. dal 28 Maggio all'11 Giugno 2015.

## Risultati e discussione

Alto vs basso traffico Le concentrazioni di PM<sub>2,5</sub> misurate nel corso delle tre campagne di misura sono riportate nella Figura 12.1.1. Le concentrazioni outdoor nella prima campagna sono risultate circa tre volte più elevate rispetto a quelle della seconda e della terza campagna. I valori più elevati sono stati 72 µg/m<sup>3</sup> nel sito di traffico e 70 µg/m<sup>3</sup> nel sito residenziale. Le polveri fini hanno mostrato una ridotta variabilità spaziale con concentrazioni medie di PM<sub>2,5</sub> nel sito di traffico superiori di solo il 6% rispetto al sito a basso traffico. La variabilità spaziale del PM<sub>2,5</sub> è risultata leggermente inferiore a quella riscontrata in altri studi e in particolare nello studio ESCAPE, un grande studio epidemiologico multicentrico che comprendeva campagne di monitoraggio in diverse città europee (Eeftens et al., 2012). I monitoraggi condotti nell'ambito di questo importante progetto europeo hanno fornito un rapporto medio di concentrazione di polveri fini tra i siti da traffico e quelli di fondo urbano pari a 1,14 (range 0,96 – 1,30). Occorre tuttavia precisare che nel presente studio il confronto è avvenuto tra un sito da traffico e uno collocato in una zona a basso traffico, mentre nel progetto ESCAPE i siti a bassa concentrazione erano quasi sempre individuati all'interno di parchi pubblici. Scopo della presente indagine è stato infatti la valutazione della variabilità dell'esposizione residenziale. Un altro elemento che potrebbe spiegare la ridotta variabilità spaziale è il contributo del particolato secondario che nell'area padana è maggiore rispetto alla maggior parte delle altre aree d'Europa.

Sono stati riscontrati livelli molto alti di correlazione (correlazione di Pearson) tra le concentrazioni misurate nei due siti ( $r=0,97$  calcolato sui dati dell'insieme delle campagne di misura).

La Figura 12.1.2 riporta le concentrazioni medie delle particelle ultrafini nei due siti. Contrariamente al PM<sub>2,5</sub>, si è riscontrata una notevole differenza tra il sito da traffico e quello residenziale. Le concentrazioni medie misurate nel sito da traffico nelle tre campagne di misura hanno mostrato valori 3,4, 3,2 e 1,7 volte maggiori di quelle trovate nel sito residenziale. Il valore medio orario di concentrazione più elevato nel sito da traffico è stato di

129.000 part./cm<sup>3</sup>, mentre il valore più elevato nel sito residenziale è stato di 38.000 part./cm<sup>3</sup>. Le particelle ultrafini hanno mostrato marcati picchi di concentrazione nelle ore di maggior traffico (8-9 di mattina e 7-9 di sera, ora del giorno espressa in ora solare in inverno e ora legale in estate). Questi picchi sono risultati significativamente più alti nel sito da traffico. Le concentrazioni massime del mattino sono state raggiunte intorno alle 8 nel sito residenziale e intorno alle 9 nel sito da traffico. Nella prima campagna il massimo delle

concentrazioni durante il pomeriggio è stato raggiunto nel sito residenziale intorno alle 21 e nel sito da traffico intorno alle 19. Nella seconda campagna i picchi pomeridiani sono risultati ritardati di circa un'ora. I picchi del mattino sono risultati di norma più alti di quelli del pomeriggio.

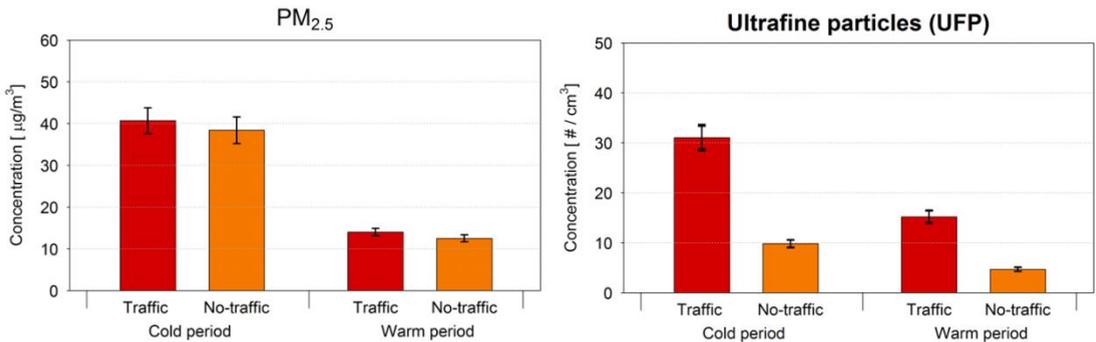


Figura 12.1.2. Livelli medi di concentrazione di PM<sub>2.5</sub> e particelle ultrafini (UFP) nelle campagne di misura invernali ed estive nel sito da traffico e in quello residenziale.

I livelli di correlazione tra le concentrazioni outdoor di particelle ultrafini sono risultati pari a 0.89 (dati giornalieri).

La distribuzione dimensionale ha evidenziato un carattere multimodale in entrambi i siti di campionamento e in tutte le stagioni (Figura 12.1.3). Molto evidente è risultato il picco intorno a 30 nm corrispondente alla moda del processo di nucleazione. Un secondo picco è risultato presente nel range di accumulazione 80-100 nm. Questi due picchi sono risultati presenti in tutte le campagne di misura ed in tutte le ore del giorno, sebbene con un peso relativo differente. Particolarmente variabile è risultato il picco a 30 nm che ha raggiunto valori molto elevati nel sito da traffico nelle ore di picco delle concentrazioni di particelle ultrafini. La differenza di concentrazione tra mattina e tardo pomeriggio del

numero di particelle intorno a 30 nm è risultata più evidente nel corso della prima campagna ed è diminuito nelle successive. Il popolamento della moda legata al processo di accumulazione si è mantenuto nei vari siti di monitoraggio pressoché costante nel corso del giorno. Rispetto all'interpretazione di questi spettri dimensionali, ed in particolare alla presenza di un picco intorno ai 30 nm, è possibile dire che le particelle emesse dai motori diesel sono collocabili nell'intervallo dimensionale 20-130 nm mentre quelle dei motori a benzina sono collocabili nella gamma 20-60 nm. I fattori di emissione per le auto a benzina sono molto più bassi rispetto a quelle a gasolio anche se i veicoli di benzina nelle fasi di accelerazione mostrano emissioni vicine a quelle osservate per i veicoli diesel. Le particelle appartenenti alla moda della nucleazione sono associate ai gas di

scarico caldi che si raffreddano e condensano dando luogo ad un numero elevato di nanoparticelle.

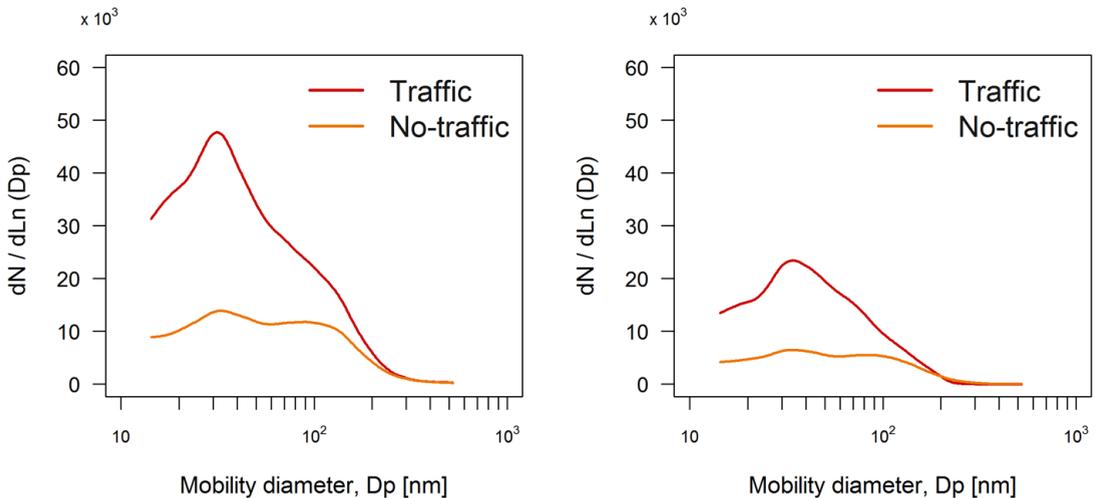


Figura 12.1.3. Distribuzione dimensionale media del particolato nel range 13-560 nm nelle campagne di misura invernali ed estive nel sito da traffico e in quello residenziale.

Rispetto alla composizione chimica, il contributo maggiore alla massa del  $PM_{2.5}$  è risultato quello del carbonio organico seguito dai nitrati, dal carbonio elementare e dai solfati. Differenze significative (paired t-test) tra i livelli outdoor nei due siti sono state trovate per il ferro, il carbonio elementare e il carbonio totale. Le altre specie chimiche hanno mostrato differenze piccole e non significative. Il ferro è associato sia alle emissioni veicolari sia di tipo “exhaust” che “non exhaust” mentre le particelle carbonio se sono associate prioritariamente alle emissioni “exhaust”. Anche i dati relativi alle componenti chimiche hanno mostrato livelli molto elevati di correlazione (coefficienti di correlazione sempre superiori a 0,9).

*Fronte vs retro edificio.* Le concentrazioni di  $PM_{2.5}$  misurate nel corso delle due campagne di monitoraggio sono mostrate in Figura 12.1.4. Sono state trovate differenze piccole ma significative nelle concentrazioni di

$PM_{2.5}$ , con livelli medi presso il sito sul fronte strada maggiori di circa il 14 % rispetto al sito di monitoraggio collocato sul retro dell’edificio. I valori outdoor di picco nelle due campagne di monitoraggio sono stati pari a  $68 \mu g/m^3$  e  $64 \mu g/m^3$  rispettivamente per il fronte strada e il retro. Come previsto, le concentrazioni misurate durante il periodo freddo sono risultate in media sensibilmente superiori (più di tre volte superiori) rispetto a quelle misurate nel periodo caldo, secondo il tipico andamento stagionale dell’area. Il rapporto delle concentrazioni di  $PM_{2.5}$  tra il sito fronte strada e quello sul retro è risultato leggermente superiore a quello trovato nel confronto tra un sito da traffico e quello residenziale. La variabilità spaziale del  $PM_{2.5}$  è risultata praticamente identica al valore medio dei gradienti di concentrazione di  $PM_{2.5}$  entro-città ottenuto nell’ambito del progetto ESCAPE. Come già accennato a commento dei risultati della prima annualità, tale indagine ha registrato un rapporto medio

tra i siti di traffico e siti di fondo urbano pari a 1,14, seppure con una marcata variabilità tra le diverse città e i diversi siti (0,96 – 1,30). Il rapporto di concentrazione tra fronte e retro è risultato più elevato nel periodo freddo rispetto a quello caldo. È stata trovata una correlazione

elevata ( $r=0,98$ ) tra le concentrazioni misurate nei due siti.

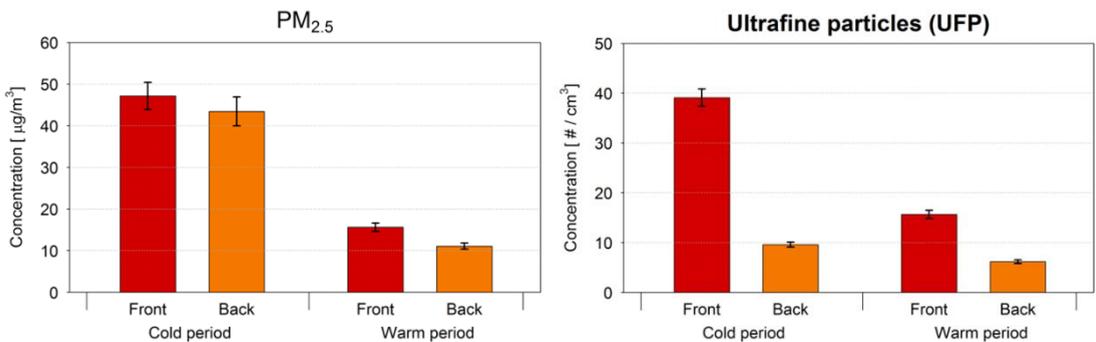


Figura 12.1.4. Livelli medi di concentrazione di PM<sub>2,5</sub> e particelle ultrafini (UFP) nelle campagne di misura invernali ed estive nel sito da traffico sul fronte strada e sul retro dello stesso edificio.

La Figura 12.1.4 riporta anche una visione sintetica delle concentrazioni di polveri ultrafini misurate durante le due campagne di monitoraggio. Le concentrazioni di UFP nel sito sul fronte strada sono risultate 3,5 volte superiori rispetto al sito sul retro. Questo risultato pare di una certa rilevanza sia rispetto alla valutazione della rappresentatività spaziale dei dati di monitoraggio in ambito urbano sia rispetto all'assegnazione dell'esposizione negli studi epidemiologici: è infatti probabile che siano possibili non trascurabili errori di classificazione dell'esposizione per gli individui residenti in prossimità di strade trafficate. Tale gradiente di concentrazione è risultato più elevato durante il periodo freddo (4,2) rispetto a quello caldo (2,5). Il valore orario outdoor più elevato sul fronte strada è stato pari a 121.000 part./cm<sup>3</sup>, mentre il valore più alto nel sito sul retro è stato pari a 27.000 part./cm<sup>3</sup>. Il coefficiente di correlazione di Pearson calcolato tra le concentrazioni giornaliere di UFP sul fronte strada e sul retro è risultato pari a 0,84.

Si è verificato se la direzione del vento potesse aver influenzato in modo sostanziale i risultati ottenuti in termini di rapporto tra le concentrazioni misurate sul fronte strada e nel retro. Si è constatata una ottima sovrapponibilità tra la rosa dei venti riferita al periodo 2012-2015 e quella riferita ai soli periodi di monitoraggio. Emerge quindi come i regimi di vento nei periodi di campionamento siano stati rappresentativi dei regimi di vento tipici dell'area. È inoltre emersa una marcata dipendenza delle concentrazioni di UFP dalla intensità e dalla direzione del vento con concentrazioni più elevate sul retro in associazione a venti più intensi provenienti dal settore est. Questo risultato è probabilmente da addebitare al fatto che i venti orientali tendono a spostare verso il retro dell'edificio le particelle emesse dal traffico veicolare. Coerentemente con quanto sopra riportato i rapporti di concentrazione tra fronte e retro dell'edificio sono risultati più elevati con venti di provenienza da nord e da ovest. Tali rapporti di concentrazione sono risultati compresi in un intervallo da 2 a 4. Le concentrazioni di UFP sono quindi risultate comunque sempre superiori

sul fronte strada rispetto al retro dell'edificio, indipendentemente dalla direzione del vento.

La Figura 12.1.5 mostra le distribuzioni dimensionali medie sul fronte strada e sul retro dell'edificio nelle due campagne di monitoraggio. Le distribuzioni dimensionali outdoor sul fronte strada sono risultate multimodali con un picco molto marcato intorno a 20-30 nm. È possibile identificare un secondo picco intorno a 60-100 nm. Questo tipo di distribuzione è tipico dei siti fortemente trafficati, con le mode derivanti rispettivamente dalla nucleazione di particelle semi-volatili e particelle solide di tipo grafittico. Sono state trovate differenze rilevanti nella

forma delle distribuzioni dimensionali tra il periodo freddo e quello caldo. Nel periodo freddo il sito outdoor fronte strada ha mostrato un contributo molto maggiore delle particelle appartenenti alla moda della nucleazione rispetto a quello caldo. Le altre distribuzioni relative al periodo freddo hanno mostrato invece un posizionamento della moda principale intorno agli 80 nm. Nel periodo caldo il picco della moda della nucleazione nel sito sul fronte strada outdoor è risultato sensibilmente ridotto.

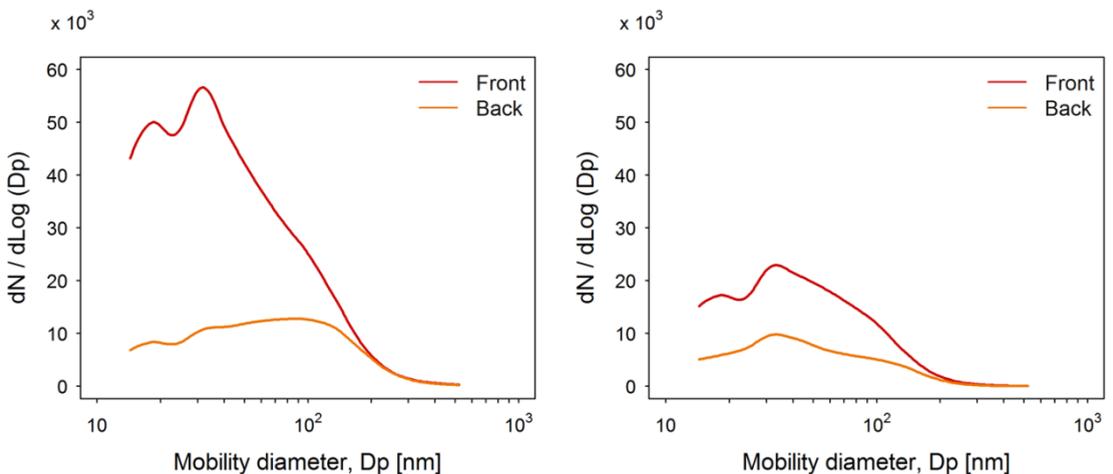


Figura 12.1.5. Distribuzione dimensionale media del particolato nel range 13-560 nm nelle campagne di misura invernali ed estive nel sito da traffico sul fronte strada e sul retro dello stesso edificio.

I contributi maggiori alla massa del  $PM_{2.5}$  nei due siti di monitoraggio outdoor sono legati al carbonio organico e ai nitrati, seguiti dal carbonio elementare, dai solfati e dallo ione Ammonio. Le differenze di concentrazione tra fronte e retro dell'edificio sono risultate altamente significative ( $p$ -value  $< 0,01$ ) per EC (3,96 e 2,25  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , rispettivamente) e Mn (7,25 e 5,54  $\text{ng}/\text{m}^3$ , rispettivamente). Gradienti fronte/retro significativi ( $p$ -

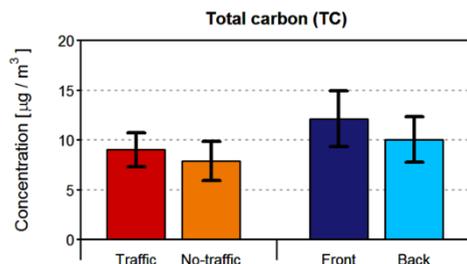
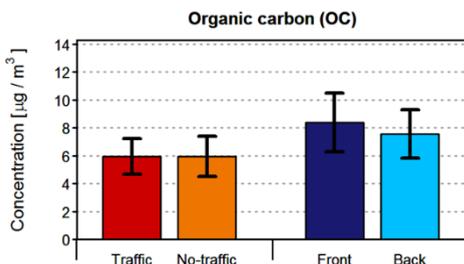
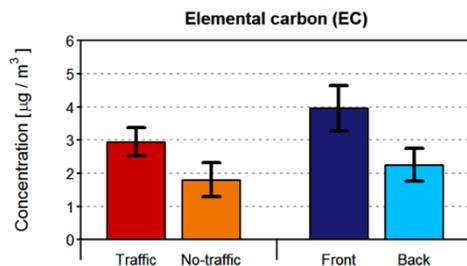
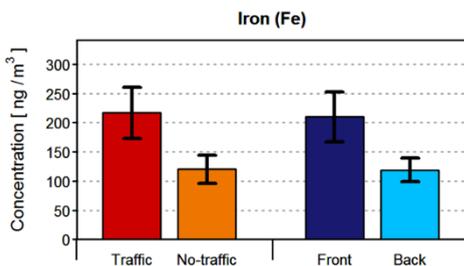
value  $< 0,05$ ) sono stati trovati per i livelli outdoor di TC (Carbonio totale, comprensivo di EC e OC) e OC. Non significative sono invece risultate le differenze, pur rilevanti, per Fe e Sn. EC, così come Mn e Sn, sono componenti importanti degli scarichi degli autoveicoli. Fe, Mn e anche Cu sono collegati con emissioni da usura dei freni. Il Fe è inoltre legato anche all'usura degli pneumatici e alle perdite di fluidi. Alcuni elementi come il

Fe e il Mn sono inoltre legati alla ri-sospensione della polvere stradale. Tale contributo è legato soprattutto alle frazioni più grossolane ma non è trascurabile nemmeno nelle frazioni più fini. La Figura 12.1.6 fornisce un quadro comparativo dei livelli medi di diverse componenti chimiche nei 4 siti monitorati nelle campagne di misura condotte nelle prime due annualità. Dalla figura emerge come le differenze ottenute dalla comparazione tra sito da traffico e sito residenziale siano sovrapponibili a quelle ottenute dal confronto tra fronte e retro dello stesso edificio.

Gli andamenti delle concentrazioni delle singole componenti chimiche sono risultati altamente correlati con coefficienti di correlazione superiori a 0,9 con l'eccezione di Sn (0.70) e Fe (0.38).

Dall'analisi dei dati di NO<sub>2</sub> è emerso un ben identificato gradiente tra il fronte e il retro dell'edificio. Tale gradiente si posiziona ad un valore intermedio tra quello evidenziato per le particelle ultrafini e quello, di entità molto limitata, ottenuto per il PM<sub>2.5</sub>.

*Piani alti vs piano strada.* La Figura 12.1.7 riporta il profilo verticale della concentrazione media di PM<sub>2.5</sub> per ciascuna campagna di misura ottenuto dai 5 Skypost. Per ciascun livello e ciascuna campagna viene riportato nella figura il valore medio e la variazione percentuale rispetto al valore misurato al piano strada. Il gradiente verticale del PM<sub>2.5</sub> è risultato abbastanza modesto con una riduzione della concentrazione media tra il piano strada e l'ultimo piano pari all'11,5% nel periodo freddo e al 4,2% nel periodo caldo. L'andamento mostra, quindi, in entrambe le stagioni, una progressiva diminuzione andando dal piano strada al sedicesimo piano, con, come atteso, concentrazioni medie decisamente più elevate nella campagna invernale rispetto a quella estiva: si passa da 26,7 µg/m<sup>3</sup> in inverno a 15 µg/m<sup>3</sup> in estate al piano strada ed il rapporto tra i valori di concentrazione in inverno rispetto a quelli in estate (a parità di piano) varia fra 1,78 al piano strada e 1,64 al sedicesimo piano.



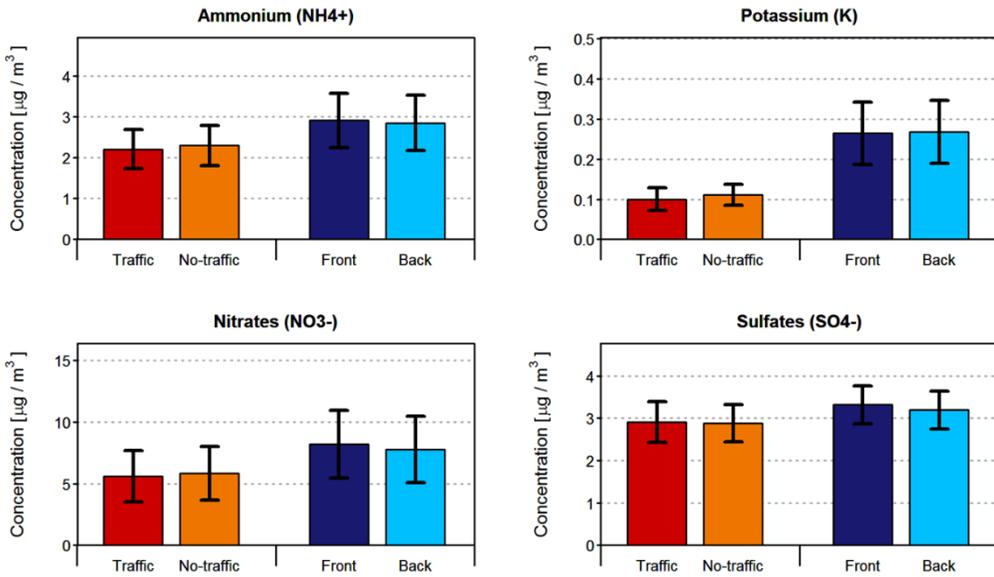


Figura 12.1.6. Livelli medi di concentrazione di alcune componenti chimiche del PM<sub>2.5</sub> nelle campagne di misura condotte nel sito da traffico e in quello residenziale e sul fronte e sul retro dello stesso edificio.

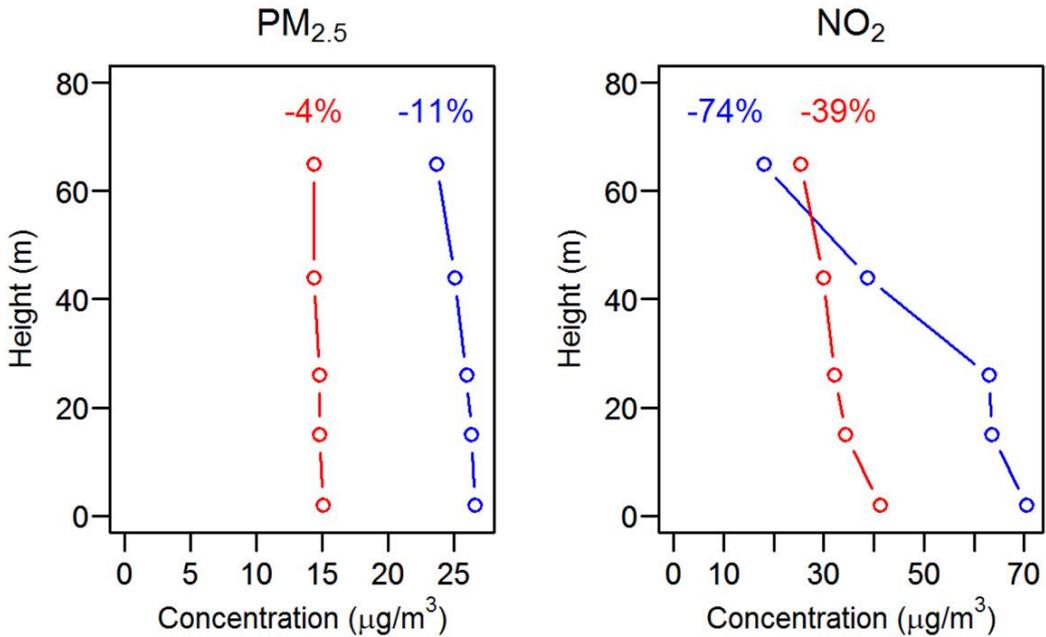


Figura 12.1.7. Variazioni verticali nelle campagne di misura estive ed invernali delle concentrazioni di PM<sub>2.5</sub>, UFP, NO<sub>2</sub> e Benzene.

La Figura 12.1.7 mostra anche il marcato decremento delle concentrazioni di NO<sub>2</sub>, in entrambe le campagne ed i valori mediamente maggiori in inverno rispetto all'estate (70,5 µg/m<sup>3</sup> vs 41,2 µg/m<sup>3</sup> prendendo a riferimento il piano strada). Il decremento delle concentrazioni con la quota è evidente in entrambe le campagne ma è risultato più marcato nel periodo invernale (la diminuzione delle concentrazioni tra il piano strada ed il sedicesimo piano è stata pari al 74,3% nel periodo freddo e al 38,6% nel periodo caldo). In inverno, si ha una riduzione percentuale molto consistente ai due piani più alti (oltre il 40% ed oltre il 70% rispettivamente al decimo ed al sedicesimo piano), rispetto a quella presente ai piani inferiori. Nella campagna estiva, invece, si ha una riduzione percentuale più graduale e uniforme.

I decrementi con la quota dei BTEX sono risultati non sempre uniformi. In particolare, nel periodo invernale, si

è evidenziato per tutti i BTEX un leggero incremento delle concentrazioni tra il piano strada e il 2° piano. Concentrazioni notevolmente più basse sono state invece misurate ai piani superiori, con un trend non ben definito (le concentrazioni al 10° piano sono risultate più elevate di quelle al 5°). Andamenti con la quota più uniformi sono stati ottenuti nel periodo estivo. Le differenze tra piano strada e 16° piano sono risultate comparabili nelle due stagioni e comprese tra il 35 e il 50%.

La speciazione chimica del PM<sub>2.5</sub> è stata effettuata sui filtri degli Skypost posti al piano strada, al quinto ed al sedicesimo piano. Per quanto riguarda il carbonio, è presente un decremento della concentrazione al crescere della quota (Tabella 12.1).

Tabella 12.1 – Concentrazioni al piano strada e variazioni percentuali con la quota di alcune componenti chimiche del PM<sub>2.5</sub>.

	EC	OC	TC	NH <sub>4</sub>	K	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Fe	Sn	Ni
<b>Piano strada</b>	1.4*	4.4*	5.9*	2.2*	0.1*	0.1*	2.8*	139**	2.1**	1.7**
<b>5° piano</b>	-15.0%	-2.1%	-6.1%	-1.7%	-0.1%	-0.1%	0.4%	-13.5%	-30.9%	11.1%
<b>16° piano</b>	-28.0%	-4.4%	-10.7%	-2,5%	-8.0%	-8.0%	-0.6%	-17.8%	-35.5%	37.0%

\* dati in µg/m<sup>3</sup>\*\* dati in ng/m<sup>3</sup>

Tale decremento riguarda sia il carbonio organico, sia quello elementare. La variazione percentuale più rilevante riguarda proprio la frazione elementare, il cui valore di concentrazione è, però, sensibilmente inferiore rispetto alla frazione organica. Nessun gradiente verticale è stato riscontrato per gli ioni. L'analisi dei dati dei metalli ha fornito invece risultati poco omogenei. Diversi hanno evidenziato una marcata diminuzione delle concentrazioni con la quota (ferro e stagno e in misura minore arsenico, manganese e piombo) mentre altri non hanno evidenziato trend definiti (lantano vanadio, zinco).

Il nichel e in misura minore il cadmio sono infine gli unici per i quali si è riscontrato un aumento delle concentrazioni con la quota.

La Figura 12.1.8 mostra le distribuzioni dimensionali relative alla campagna invernale. Le concentrazioni sono risultate più elevate al piano strada rispetto al 16° piano in tutti i canali sotto ai 100 nm.

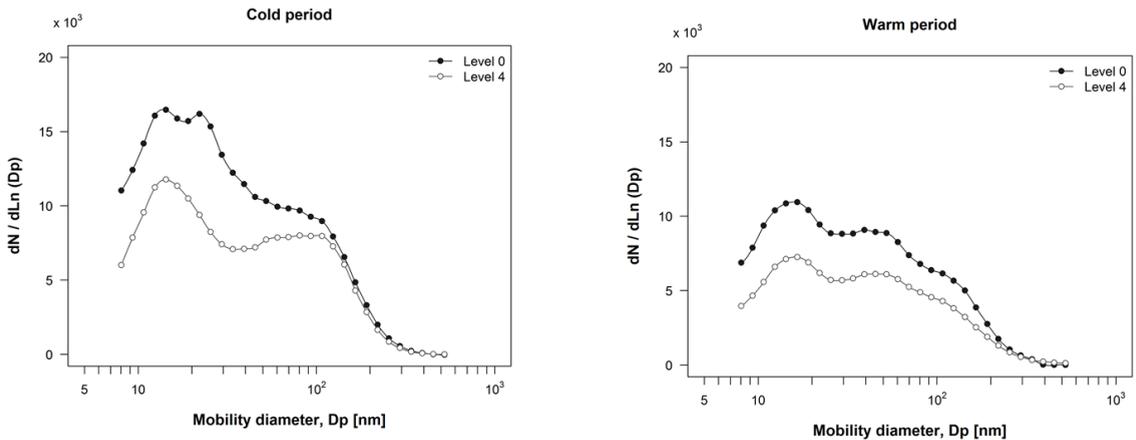


Figura 12.1.8. Distribuzione dimensionale media del particolato nel range 8-560 nm nelle campagne di misura invernali ed estive al piano strada ("Level 0") e al 16° piano ("Level 4").

## Conclusioni

Nell'ambito del Progetto Supersito sono state condotte diverse campagne di misura volte ad approfondire le conoscenze sulla variabilità dell'esposizione della popolazione all'inquinamento atmosferico in ambito urbano. Le campagne di misura hanno avuto come obiettivo l'analisi delle differenze di esposizione:

- tra chi risiede in zone ad alto e a basso traffico
- tra chi risiede nello stesso edificio sul fronte strada e chi sul retro
- tra chi risiede ai diversi piani dello stesso edificio.

Coerentemente con gli obiettivi generali del progetto l'attenzione è stata rivolta prioritariamente alla caratterizzazione delle proprietà fisico-chimiche del particolato.

È emersa una differenza molto ridotta (pari a circa il 10%) tra le concentrazioni di  $PM_{2.5}$  misurate nei siti ad alto e a basso traffico. Una variabilità spaziale molto più marcata è stata trovata per le concentrazioni di particelle ultrafini,

e, per quanto riguarda le componenti chimiche del  $PM_{2.5}$ , del ferro e del carbonio elementare. Differenze significative sono state riscontrate anche rispetto alla forma della distribuzione dimensionale, con un picco nel range delle nanoparticelle (< 50 nm) ben evidente nel sito da traffico e pressoché assente nel sito residenziale.

Le campagne di misura volte a comparare i livelli di inquinamento presenti sul fronte e sul retro di un edificio posto in prossimità di una strada trafficata hanno evidenziato gradienti di concentrazione per le diverse metriche e specie chimiche in buona parte sovrapponibili a quelli ottenuti confrontando il sito da traffico e quello residenziale. È emersa una marcata diminuzione del picco di concentrazione di nanoparticelle nella dispersione delle emissioni da traffico dal fronte strada al retro dell'edificio. Si evidenziano quindi le ridottissime scale spaziali (decine di metri) e temporali (pochi minuti) in cui avvengono importanti trasformazioni delle caratteristiche fisico-chimiche delle nano-particelle emesse dal traffico veicolare.

Forti analogie con la campagna di misure di comparazione tra le zone ad alto e a basso traffico è emersa anche rispetto ai livelli di correlazione, risultati sempre molto elevati. A fronte infatti di una marcata variabilità spaziale di alcune metriche e specie chimiche si è infatti riscontrata una ottima correlazione tra i diversi siti per quasi tutti i parametri considerati. Si può quindi concludere che il forzante meteorologico modula temporalmente in modo uniforme in ambito urbano anche i parametri di qualità dell'aria che mostrano una marcata variabilità spaziale.

La campagna di misure sul profilo verticale ha voluto indagare l'esistenza e l'entità dei gradienti di esposizione della popolazione anche rispetto al piano di residenza. I risultati hanno evidenziato la notevole uniformità delle concentrazioni di  $PM_{2.5}$  rispetto alla quota. Gradienti verticali più marcati hanno mostrato invece alcune

componenti chimiche del particolato fine più legate alle emissioni da traffico (come carbonio elementare e ferro), le particelle ultrafini e soprattutto alcuni inquinanti gassosi come il biossido di azoto e i BTEX. Tali gradienti verticali sono risultati particolarmente marcati nel periodo invernale.

### **Ringraziamenti**

Questa ricerca è stata condotta nell'ambito del Progetto Supersito, che è stato sostenuto e finanziato dalla Regione Emilia-Romagna (Deliberazione del Governo Regionale n. 1971/13) e dall'Agenzia Regionale per la Prevenzione, l'Ambiente e l'Energia dell'Emilia-Romagna (Arpae Emilia-Romagna).

## Bibliografia

- Beelen, R., Raaschou-Nielsen, O., Stafoggia, M., et al., 2014. Effects of long-term exposure to air pollution on natural-cause mortality: an analysis of 22 European cohorts within the multicentre ESCAPE project. *Lancet*. 383, 785-795.
- Boogaard, H., Kos, G.P.A., Weijers E.P., Janssen, N.A.H., Fischer P.H., Van der Zee, S.C., De Hartog, J.J., Hoek, G., 2011. Contrast in air pollution components between major streets and background locations: Particulate matter mass, black carbon, elemental composition, nitrogen oxide and ultrafine particle number. *Atmospheric Environment* 45, 650-658.
- Delfino, R.J., Wu, J., Tjoa, T., Gullesterian, S.K., Nickerson, B., Gillen, D.L., 2014. Asthma morbidity and ambient air pollution: effect modification by residential traffic-related air pollution. *Epidemiology* 25, 48-57.
- Eeftens, M., Tsai, M.-Y., Ampe, C., et al., 2012. Spatial variation of PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> absorbance and PM<sub>coarse</sub> concentrations between and within 20 European study areas and the relationship with NO<sub>2</sub> - results of the ESCAPE project. *Atmospheric Environment* 62, 303-317.
- Imhof, D.; Weingartner, E.; Vogt, U.; Dreiseidler, A.; Rosenbohm, E.; Scheer, V.; Vogt, R.; Nielsen, Ole John; Kurtenbach, R.; Corsmeier, U.; Kohler, M.; Baltensperger, U., 2005. Vertical distribution of aerosol particles and NO<sub>x</sub> close to a motorway. *Atmos. Environ.* 39, 5710-5721.
- Kohler, M., Corsmeier, U., Vogt, U., Vogel, B., 2005. Estimation of gaseous real world traffic emissions downstream a motorway. *Atmos. Environ.* 39, 5665-5684.
- Kumar, P., Fennell, P., Britter, R.E., 2008. Pseudo-simultaneous measurements for the vertical variation of coarse, fine and ultra-fine particles in an urban street canyon. *Atmos. Environ.* 42, 4304-4319.
- Rahman MM, Karunasinghe J, Clifford S, Knibbs LD, Morawska L., 2020. New insights into the spatial distribution of particle number concentrations by applying non-parametric land use regression modelling. *Sci Total Environ.* 702:134708.
- Ohlwein S, Kappeler R, Kutlar Joss M, Künzli N, Hoffmann B., 2019. Health effects of ultrafine particles: a systematic literature review update of epidemiological evidence. *Int J Public Health.* 64(4): 547-559.
- Raaschou-Nielsen, O., Andersen, Z.J., Beelen, R., et al., 2013. Air pollution and lung cancer incidence in 17 European cohorts: prospective analyses from the European Study of Cohorts for Air Pollution Effects (ESCAPE). *Lancet Oncol.* 14, 813-822.
- REVIHAAP, 2013. Review of evidence on health aspects of air pollution - REVIHAAP Project. Technical Report, World Health Organization, Regional Office for Europe, Copenhagen.
- Weber, S., Weber, K., 2008. Coupling of urban street canyon and backyard particle concentrations. *Meteorologische Zeitschrift* 17, 251-261.
- Zauli Sajani S, Marchesi S, Trentini A, Bacco D, Zigola C, Rovelli S, Ricciardelli I, Maccone C, Lauriola P, Cavallo DM, Poluzzi V, Cattaneo A, Harrison RM (2018), Vertical variation of PM<sub>2.5</sub> mass and chemical composition, particle size distribution, NO<sub>2</sub>, and BTEX at a high rise building, *Environmental Pollution*, 235, 339-349.

Zauli Sajani, S., Trentini, A., Rovelli, S., Ricciardelli, I., Marchesi, S., Maccone, C., Bacco, D., Ferrari, S., Scotto, F., Zigola, C., Cattaneo, A., Cavallo, D.M., Lauriola, P., Poluzzi, V., Harrison, R.M., 2016. Is particulate air pollution at the front door a good proxy of residential exposure? *Environmental Pollution* 213, 347-358.

Zauli Sajani, S., Ricciardelli, I., Trentini, A., Bacco, D., Maccone, C., Castellazzi, S., Lauriola, P., Poluzzi, V., Harrison, R.M., 2015. Spatial and indoor/outdoor gradients in urban concentrations of ultrafine particles and PM<sub>2.5</sub> mass and chemical components. *Atmospheric Environment* 103, 307-320.

Zhou, Y., Levy, J.I., 2008. The impact of urban street canyons on population exposure to traffic-related primary pollutants. *Atmospheric Environment* 42, 3087-3098.

## 12.2 UTILIZZO DEI DATI SATELLITARI PER LA VALUTAZIONE DEGLI EFFETTI SANITARI DELLE TEMPERATURE ESTREME E DELL'INQUINAMENTO ATMOSFERICO A ROMA

Barberini S.<sup>1</sup>, Stafoggia M.<sup>2</sup>, de'Donato F.<sup>2</sup>, Occhiuto D.<sup>1</sup>

<sup>1</sup> ARPA LAZIO – <sup>2</sup> Dipartimento di Epidemiologia SSR LAZIO

### RIASSUNTO

L'inquinamento atmosferico e le temperature estreme sono fattori di rischio riconosciuti per la salute umana, tuttavia la mancanza di dati di esposizione ad elevata risoluzione spazio-temporale in aree extraurbane ha storicamente limitato gli studi alle aree urbane ad elevata densità di popolazione. Il progetto ha l'intento di colmare questa lacuna grazie alla recente disponibilità di dati satellitari ad elevata risoluzione spaziale e temporale che possono complementare le reti di misura nel caratterizzare l'esposizione sul territorio.

Il progetto finanziato dal Ministero della Salute attraverso il bando Ricerca finalizzata, si propone di studiare gli effetti avversi delle temperature estreme e del PM nel Lazio, indagare l'eventuale eterogeneità spaziale degli effetti sanitari nella Regione (confronto tra aree urbane e extra-urbane) e individuare i sottogruppi di popolazione, ed infine quali siano le aree a maggior rischio sanitario sia all'interno di Roma che a livello regionale. A tal fine sono stati implementati e raccolti:

- Modelli avanzati per la stima delle esposizioni giornaliere al PM e alle temperature per ogni km<sup>2</sup> del territorio laziale, a partire dai dati satellitari, osservati e di uso del suolo, per i periodi 2001-2010 (temperatura), 2006-2015 (PM<sub>10</sub>) e 2013-2015 (PM<sub>2,5</sub>).

- Serie storica di dati sanitari: conte giornaliere comunali di decessi per cause naturali, cardiovascolari, cardiache, cerebrovascolari, respiratorie, metaboliche, nervose e mentali e di ricoveri ospedalieri urgenti per patologie cardiovascolari e respiratorie.

- Stime dei rischi relativi di mortalità/morbosità causa-specifica per incrementi di temperature estive, decrementi di temperature invernali e incrementi di PM,

approfondendo le analisi per specifiche patologie, latenze temporali, sottogruppi di popolazione, tipologie di comuni e singole provincie del Lazio.

- Una campagna di monitoraggio di temperatura dell'aria su Roma per identificare l'isola di calore urbano e confermare le stime ottenute dal modello di esposizione.

- Un sistema di allerta, integrato su Roma, relativo ad ondate di calore-qualità dell'aria a partire dai sistemi esistenti di allerta per gli effetti del caldo sulla salute sviluppato in ambito nazionale dal DEPLAZIO e previsionale di qualità dell'aria sviluppato da ARPA Lazio che, in via sperimentale per l'estate 2018, ha generato bollettini di allerta integrata caldo-inquinamento, unici in Italia, e graduati per area di rischio, per allertare gli operatori sanitari anche in funzione dell'area di residenza.

Dallo studio è emerso che: l'esposizione acuta a PM ed alle temperature estreme aumenta il rischio di mortalità e morbosità nel Lazio; le patologie cardiovascolari mostrano una latenza immediata, con picchi di decessi/ricoveri che si manifestano nel giorno stesso del picco di PM o calore, mentre le patologie respiratorie evidenziano latenze più prolungate, fino a 5-6 giorni; gli anziani sono particolarmente suscettibili agli effetti avversi di PM e temperature estreme; esistono effetti avversi ovunque nel Lazio, anche nei comuni sub-urbani e rurali, senza chiare differenze tra le diverse provincie; anche all'interno della città di Roma esiste una eterogeneità degli effetti sanitari, con zone (quali il centro ed il settore est della città) caratterizzate da una maggiore esposizione congiunta.

**Parole chiave:** esposizione; PM; temperatura; satellite; allerta integrato

## ABSTRACT

Air pollution and extreme temperatures are recognized risk factors for human health, however the lack of exposure data with high spatio-temporal resolution in suburban areas has historically limited studies to urban areas with high population density. The project has the intent to fill this gap thanks to the recent availability of satellite data with high spatial and temporal resolution that can complement the measurement networks in characterizing the exposure on the territory.

The project, financed by the Ministry of Health, aims to study the adverse effects of extreme temperatures and PM in Lazio, to investigate the possible spatial heterogeneity of health effects in the Region (comparison between urban and extra-urban areas), to identify the population subgroups, and finally which are the areas at greatest health risk both within Rome and at regional level. For this purpose we developed:

- Advanced models for estimating daily exposures to PM and temperatures for each km<sup>2</sup> of the Lazio region, starting from satellite, observed and land use data, for the periods 2001-2010 (temperature), 2006-2015 (PM<sub>10</sub>) and 2013-2015 (PM<sub>2.5</sub>).
- Historical series of health data: Daily municipal count of deaths due to natural, cardiovascular, cardiac, cerebrovascular, respiratory, metabolic, nervous and mental causes and urgent hospitalizations for cardiovascular and respiratory diseases.
- Estimates of the relative risks of mortality / cause-specific morbidity due to increases in summer temperatures, decreases in winter temperatures and increases in PM, deepening the analyses for specific pathologies, temporal latencies, population subgroups, types of municipalities and individual provinces of Lazio.
- An air temperature monitoring campaign in Rome to identify the urban heat island and confirm the estimates obtained from the exposure model.
- Integrated heat waves - air quality alert system on Rome, realized from existing alert systems: HHWWS developed by the DEPLAZIO and air quality forecasting

system developed by ARPA Lazio. This integrated alert system generated integrated hot-pollution alert bulletins for summer 2019, unique in Italy, and graded by risk area, to alert health workers according to the area of residence, too.

The study found that:

- acute exposure to PM and extreme temperatures increases the risk of mortality and morbidity in Lazio;
- cardiovascular pathologies show immediate latency, with peaks of deaths / hospitalizations that occur on the day of the PM or heat peak, while respiratory pathologies show more prolonged latencies, up to 5-6 days;
- the elderly are particularly susceptible to the adverse effects of PM and extreme temperatures;
- adverse effects exist everywhere in Lazio, even in suburban and rural municipalities, without clear differences between the different provinces;

Even within the city of Rome there is a heterogeneity of health effects, with areas (such as the center and the eastern sector of the city) characterized by greater joint exposure.

**Keywords:** exposure; PM; temperature; satellite; integrated alert

## Introduzione

L'inquinamento atmosferico e le temperature estreme sono importanti fattori di rischio per la salute umana. Recentemente, il 5° Rapporto del Panel Intergovernativo sui Cambiamenti Climatici (IPCC) ha identificato il Mediterraneo come uno degli "hot spots" più vulnerabili ai cambiamenti climatici per il 21° secolo (IPCC, 2013). Analogamente, l'Agenzia Internazionale per la Ricerca sul Cancro (IARC) ha classificato il particolato aerodisperso (PM) come carcinogeno per l'uomo (IARC, 2013). Il particolato sottile è responsabile di oltre 4 milioni di decessi al mondo ogni anno (OMS e Global Burden of Diseases).

Gli effetti sanitari del caldo e dell'inquinamento dell'aria sono documentati (de' Donato et al., 2018; Alessandrini

et al., 2013), ma la maggior parte degli studi epidemiologici si è focalizzata sulle principali aree urbane, dove erano disponibili lunghe serie storiche di dati, dando scarsa evidenza agli effetti sulle popolazioni residenti in aree sub-urbane e rurali. Non è chiarito come l'effetto vari all'interno delle aree metropolitane senza misurazioni dell'esposizione su una scala spaziale fine. Infine, le evidenze sono ancora scarse rispetto ai sottogruppi di popolazione maggiormente vulnerabili a causa di condizioni croniche preesistenti, posizioni socio-economiche disagiate ed aree di residenza ad elevate esposizioni ambientali.

La maggiore disponibilità di dati satellitari ad aumentata risoluzione spaziale e temporale, costituisce uno strumento alternativo per la stima delle esposizioni ambientali per gli studi epidemiologici (Kloog I. et al., 2012). Questa disponibilità è stata lo stimolo per la realizzazione del progetto di ricerca finalizzata del Ministero della Salute "Uso innovativo dei dati satellitari per la stima di esposizioni ambientali finalizzate a valutare gli effetti sanitari delle temperature estreme e dell'inquinamento atmosferico a Roma", svoltosi tra il 2016 e il 2019, coordinato dal Dipartimento di Epidemiologia del Lazio con la partecipazione di ARPA Lazio. Nel progetto sono stati accuratamente studiati gli effetti di breve e lungo periodo delle esposizioni ambientali, sviluppando dei modelli innovativi di stima spazio-temporale delle esposizioni su tutto il territorio regionale e raccogliendo dati sanitari (di mortalità e ricoveri) a base comunale, messi poi in relazione con le esposizioni ambientali. E', infine, stato sviluppato un sistema di allarme che tenesse conto dell'effetto sinergico di temperatura ed inquinamento atmosferico sulla salute delle popolazioni vulnerabili nel contesto urbano di Roma.

## Metodi

### Area di studio

Il Lazio è una regione dell'Italia centrale estesa su 17.242 km<sup>2</sup> ed è suddiviso in 375 comuni con una popolazione totale di circa cinque milioni di abitanti. Roma è il più grande agglomerato della regione con circa 2,8 milioni di residenti e un'area di 1.287km<sup>2</sup>.

### *Raccolta dati di parametri spaziali e spazio temporali*

I dati necessari per la stima dell'esposizione a temperatura e polveri sottili vengono richiamati di seguito e dettagliati nelle pubblicazioni (Badaloni et al. 2018; Stafoggia et al., 2017; Stafoggia et al. 2019).

### Parametri spazio-temporali:

- Dal sensore MODIS a bordo dei satelliti NASA Aqua e Terra a risoluzione spaziale 1-km<sup>2</sup>: LST (Land Surface Temperature) e AOD (Aerosol Optical Depth) a risoluzione temporale giornaliera; NDVI (Normalized Difference Vegetation Index) con risoluzione temporale mensile;
- Dati di monitoraggio della qualità dell'aria: dati giornalieri osservati di PM<sub>10</sub> (2006-2015) e PM<sub>2,5</sub> (2013-2015) dalle centraline di monitoraggio della qualità dell'aria.
- Dati osservati di temperatura dell'aria, raccolti dalla rete di monitoraggio dell'Aeronautica Militare o dalle reti ARPA regionali;
- Dati modellati di parametri meteorologici: temperatura dell'aria, velocità e direzione del vento, precipitazioni, umidità, pressione barometrica e altezza dello strato di rimescolamento. Dati modellati e resi disponibili da ECMWF (European Centre for Medium-range Weather Forecast), a risoluzione spaziale 10x10 km e temporale giornaliera;
- Presenza giornaliera (sì/no) di un evento sahariano nel centro Italia, stimati dalla combinazione di diversi strumenti modellistici.

### Parametri spaziali:

Popolazione: popolazione residente all'ultimo censimento (2011); corpi idrici; zone climatiche (ISPRA); informazioni topologiche da Corine Land Cover 2012;

densità di superficie impervia (“Impervious surfaces” – ISA fonte: NOAA); orografia: stime di altitudine da Modello Digitale di Elevazione; viabilità: shapefile di linee fornito da ESRI con aggiornamento al 2012 (TeleAtlas TomTom network); emissioni puntuali e areali: Fonte ISPRA.

#### *Modelli di stima esposizione temperatura e PM<sub>10</sub>*

I modelli statistici applicati e di seguito descritti si basano su una metodologia consolidata, già pubblicata in forma di articolo scientifico (Kloog I. et al., 2012; Stafoggia et al., 2019). Tutti i parametri spaziali e spazio-temporali elencati nel precedente paragrafo sono stati riportati su un grigliato comune di 306735 celle di 1-km<sup>2</sup>, corrispondenti al dominio nazionale (Badaloni et al., 2018; Stafoggia et al., 2019). In secondo luogo, separatamente per temperatura, PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub>, sono stati sviluppati modelli statistici multivariati in 3 stadi:

- Stage 1: il parametro di interesse (temperatura o PM) è stato messo in relazione ad un opportuno set di predittori spaziali e spazio-temporali, tra cui il corrispettivo parametro satellitare (LST per la temperatura, AOD per il PM) è stato il principale driver. Si è implementato un modello lineare misto con intercette e pendenze casuali per giorno, innestato nelle diverse aree geografiche (es. regioni o zone climatiche) del territorio italiano.

- Stage 2: il modello precedentemente selezionato è stato usato per predire i livelli giornalieri del parametro in studio (es. temperatura o PM) per ogni cella/giorno ove siano disponibili i dati per tutti i predittori, in primis LST e/o AOD.

- Stage 3: in tutto il resto del dominio, i dati giornalieri del parametro di interesse sono stati imputati sviluppando modelli bimestrali con tensor smoothers di latitudine e

longitudine, e random slopes delle concentrazioni di PM medie entro un buffer predefinito. Al termine della procedura, che è stata applicata separatamente per ciascun anno e per ogni parametro (PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub> e temperatura), sono state ottenute in output mappe nazionali giornaliere del parametro stimato, a risoluzione spaziale 1-km<sup>2</sup>, e per il periodo temporale di interesse.

Per Roma è stata valutata l'isola di calore urbano, per ogni giorno tra il 2010 e il 2015, come differenza tra un punto rurale di riferimento (Tref) e ogni singolo pixel (i) incluso nel comune di Roma (Tu):

$$\text{intensità UHI } i = T_{ui} - T_{ref}$$

Infine è stata calcolata la media annuale e riportato su una mappa il risultato finale in modo da avere un UHI medio a Roma.

#### *Campagna di misura termometrica*

Al fine di confrontare le stime per la temperatura dell'aria ottenute su Roma col modello di esposizione sopra descritto è stata progettata una campagna termometrica con un'elevata risoluzione spaziale sul territorio della città di Roma ad integrare l'informazione sulla temperatura dell'aria già fornita da alcune stazioni di misura già esistenti. Sono stati impiegati nella campagna 30 campionatori costituiti da termometri protetti da schermi solari passivi (Figura 12.2.1). I sensori termometrici scelti sono dei logtagtrix16, datalogger di grande capacità con un'accuratezza globale di misura di 0,5°C nell'intervallo -20-40°C.



Figura 12.2.1. Sensore di temperatura su via del Corso.

Per avere un buon dettaglio dell'informazione si è scelto di limitare la campagna all'interno del raccordo anulare. Le 30 postazioni (Figura 12.2.2) sono state individuate tenendo conto della presenza dei sensori di altre reti e

preferendo le zone che, in base a studi passati, si erano rivelate maggiormente sensibili alle ondate di calore.

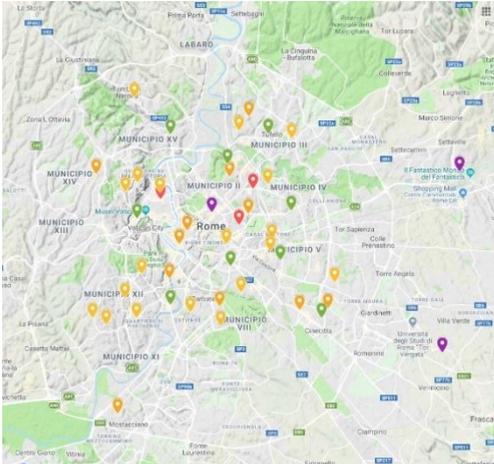


Figura 12.2.2. Postazioni di misura della temperatura su Roma

La campagna di misura è iniziata il primo luglio 2018 e si è conclusa il 30 settembre con la finalità di registrare i dati estivi. Durante il periodo di misura, i sensori sono impostati per accendersi automaticamente e rilevare la temperatura ogni 15 minuti.

#### *Effetti sulla salute del PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub>*

Per studiare gli effetti di breve e lungo periodo sulla salute, nel Lazio e a Roma, dell'esposizione al particolato sono stati utilizzati diversi metodi statistici utilizzando come unità spaziali i 375 comuni del Lazio mentre Roma, in virtù della sua popolosità ed estensione geografica è stata considerata separatamente suddividendola in 155 zone urbanistiche.

L'associazione tra mortalità/ricoveri causa specifici e PM<sub>10</sub>/PM<sub>2,5</sub> giornalieri è stata valutata considerando un'analisi aggregata delle serie temporali a livello regionale (intera regione Lazio), combinando le serie temporali comunali.

**Dataset:** I dati considerati per costruire le serie temporali per le diverse zone/municipalità sono dettagliati qui di seguito.

- Dati di ricovero ospedaliero nel Lazio: relativi ai ricoveri ospedalieri urgenti (non programmati) verificatisi nella Regione Lazio nel periodo 2006-2015. A partire da questi dati abbiamo costruito, per ogni comune, la serie temporale con il numero giornaliero di ricoveri per patologia, ulteriormente disaggregando per classi di età e sesso.

- Dati di mortalità nel Lazio: relativi a tutti i decessi avvenuti nel Lazio nel periodo 2006-2015, aggregati per costruire le serie giornaliere comunali di decessi per causa, età e sesso.

- Dati dello Studio Longitudinale Romano (SLR): uno studio di coorte, su circa 1.2 milioni di residenti a Roma, basato su dati anagrafici dal Censimento della Popolazione del 2001 in poi. Ogni indirizzo della coorte è stato collegato agli archivi di mortalità dal 2001 al 2015, ottenendo le informazioni su date di decesso e causa di morte.

- Dati di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub>: per ogni comune del Lazio e per ciascun giorno del 2006-2015 abbiamo utilizzato le concentrazioni medie di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> (quest'ultimo solo per 2013-2015) ottenute dai sopradescritti modelli spazio-temporali di esposizione. Inoltre, per ogni indirizzo dello Studio Longitudinale Romano e per ogni

anno 2006-2015, abbiamo attribuito la concentrazione del PM medio annuo della cella 1 km x 1 km di Roma ove ricadeva l'indirizzo, come stima di esposizione cronica individuale ad inquinamento atmosferico.

Metodi statistici: Per la valutazione degli effetti sulla salute sono stati utilizzati diversi approcci statistici:

- È stato sviluppato un modello di regressione multivariato di Poisson con sovra-dispersione per stimare gli effetti di breve periodo del PM sulla mortalità causa-specifica e sulle ospedalizzazioni nella Regione Lazio. In tale modello sono state messe in relazione le conte giornaliere di decessi/ricoveri per ogni comune, con le concentrazioni giornaliere predette di PM, al fine di stimare la relazione tra picchi giornalieri di inquinamento atmosferico e incrementi di mortalità/ospedalizzazioni a livello regionale.

- È stato sviluppato un modello di regressione multivariato a rischi proporzionali, di Cox per stimare gli effetti di lungo periodo del PM sulla mortalità causa-specifica a Roma, nell'ambito dello Studio Longitudinale Romano.

#### *Effetti sulla salute dell'esposizione a temperature estreme*

I risultati del modello di esposizione alla temperatura dell'aria sono stati associati ai conteggi giornalieri di mortalità in tutti i comuni del Lazio al fine di stimare gli effetti acuti delle temperature separatamente per aree rurali, sub-urbane ed urbane. Analoghe stime sono state condotte in relazione ai conteggi giornalieri di ricoveri ospedalieri. Le unità di studio considerate nel Lazio sono coincidenti con quelle dello studio per l'esposizione al PM. Per Roma l'esposizione giornaliera è stata spazialmente associata agli indirizzi dello SLR, ed è stato sviluppato un disegno di studio "case-crossover" per stimare l'effetto differenziale delle elevate temperature dovute all'UHI. Gli effetti sanitari sono stati anche distinti per sottogruppi di popolazione suscettibili per area di residenza, caratteristiche socio-demografiche e condizioni cliniche pregresse.

Dataset: I dati considerati nello studio sono simili a quelli dello studio di esposizione alle PM, ma prendono in considerazione differenti periodi temporali. In particolare i dati di mortalità e ricoveri non urgenti, per lo studio sulla temperatura, sono riferiti al periodo 2001-2010 e suddivisi per cause naturali, cardiovascolari e respiratori.

Costruzione dei Dataset per unità spaziali: per eseguire l'analisi delle serie storiche, i comuni sono stati aggregati in base alla dimensione della popolazione utilizzando i dati sulla popolazione dell'Istituto nazionale di statistica (ISTAT) per l'anno 2006. In secondo luogo, per tenere conto dell'entità dello sviluppo urbano all'interno di ciascun comune e del conseguente effetto nel modificare le caratteristiche termiche delle unità spaziali, sono state prese in considerazione le classi di tessuto urbano di Corine. Per Roma si è adottato il medesimo criterio di definizione della percentuale di urbanizzazione delle 155 zone, ma la suddivisione è stata effettuata su percentuali più elevate in considerazione della differente distribuzione dell'urbanizzazione che caratterizza la città di Roma.

STUDIO DI EFFETTO A BREVE TERMINE: Lo studio di effetto a breve termine della temperatura ha un disegno analogo a quanto già descritto per l'effetto a breve termine del particolato fine. Poiché il focus di questo studio è sugli effetti delle temperature estive, nell'analisi sono stati inclusi solo gli eventi che si verificano tra maggio e settembre. Tutte le analisi sono state ripetute per l'intera Regione Lazio, in funzione della dimensione della popolazione comunale e per grado di urbanizzazione raggruppate in classi in base alla distribuzione del livello di urbanizzazione nella Regione Lazio e nelle zone di Roma.

#### *Definizione di un Sistema di Allerta Integrato Aq-Temperature Elevate*

Per realizzare un sistema di allerta integrato ondate di calore- qualità dell'aria siamo partiti dai due sistemi distinti già esistenti: il sistema di allarme caldo (Michelozzi et al., 2010)(HHWWS) e il sistema modellistico per la valutazione della qualità dell'aria di ARPA Lazio. L'HHWWS è stato sviluppato per Roma dal

Dipartimento di Epidemiologia del S.S.R. Lazio, fornisce dal 15 maggio al 15 settembre un'allerta graduata in 4 livelli di rischio, da nessun rischio a rischio elevato, a 72 ore su Roma. La catena modellistica di ARPA Lazio ogni giorno fornisce le previsioni a 5 giorni per le concentrazioni degli inquinanti dei principali inquinanti atmosferici, per l'area di Roma, con una risoluzione spaziale di 1km x 1km.

Per la prima progettazione del sistema di allerta integrato si è deciso di lasciare inalterata l'informazione fornita dal sistema HHWS su Roma e di dare invece un'allerta sulla qualità dell'aria per ognuna delle aree individuate per Roma come aree di rischio omogeneo per l'effetto congiunto di esposizione a inquinanti e temperature elevate. Il sistema di allerta integrato nel periodo estivo prende in input la previsione del sistema di allarme caldo, unica su tutta Roma, e le previsioni per le concentrazioni di inquinanti in aria, ricava l'allerta di qualità dell'aria per ogni zona su Roma e restituisce un livello di allerta integrato per le 72 ore successive per ogni zona.

Per ciò che attiene all'allerta per la qualità dell'aria si è stabilito di considerare, tra tutti gli inquinanti normati per la protezione della salute umana, l'ozono, che in estate raggiunge le concentrazioni più elevate, e il PM<sub>10</sub>, che mostra un maggiore effetto sinergico con le temperature elevate, sebbene raggiunga concentrazioni consistenti

solo in inverno a Roma. In particolare per la qualità dell'aria il sistema integrato prende in considerazione le previsioni per la concentrazione media giornaliera di PM<sub>10</sub> e per la media mobile massima sulle otto ore di ozono. Il livello di allerta giornaliero per la qualità dell'aria per ogni zona è il peggiore tra quelli raggiunti da O<sub>3</sub> e PM<sub>10</sub>.

Definizione livelli allerta qualità dell'aria e allerta integrato: Per entrambi i parametri scelti è stata stabilita una gradazione in quattro livelli considerando la statistica delle osservazioni degli anni passati e le evidenze in termini di effetti sulla salute. In Figura 12.2.3 sono riportate le distribuzioni in classi di concentrazione di medie giornaliere di PM<sub>10</sub> e media mobile massima di O<sub>3</sub> ottenute considerando i dati registrati dalle stazioni della rete di qualità dell'aria del Lazio tra maggio e settembre per il periodo 2008-2018. Nei grafici gli andamenti: di tutte le stazioni dell'agglomerato di Roma, quelle del solo Comune di Roma e quelle interne al raccordo anulare. Una differenza tra le tre serie sussiste solo per l'ozono: i valori dentro il raccordo sono inferiori a quelli su tutto il Comune e sull'agglomerato per via del carattere secondario di questo inquinante.

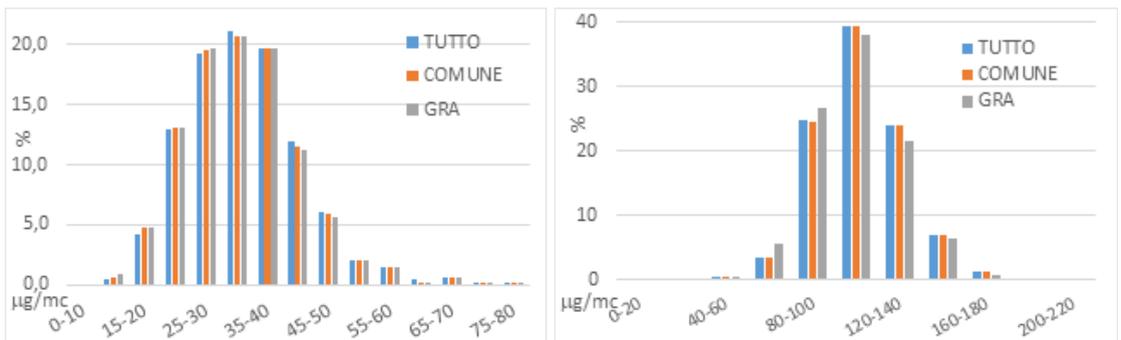


Figura 12.2.3. Occorrenze periodo estivo 2008-2018: sn-medie giornaliere PM<sub>10</sub>; dx medie mobile massime su otto ore O<sub>3</sub>. Per le medie giornaliere di PM<sub>10</sub> i valori più frequenti sono quelli tra 25 e 40 µg/m<sup>3</sup>.

Si è scelto di delimitare i diversi livelli di allerta per le medie giornaliere di  $PM_{10}$  con valori di concentrazione che già hanno mostrato una significatività in termini di effetti sulla salute e, come tali, già utilizzati in normativa: le soglie di valutazione superiore e inferiore e il valore limite giornaliero. La suddivisione in livelli di allerta è riportata in Tabella 12.2.1. Il livello di rischio massimo per il  $PM_{10}$  è associato a valori di concentrazione superiori al valore limite o al persistere per tre giorni della concentrazione giornaliera sopra la soglia di valutazione

superiore. Per la media mobile massima dell' $O_3$  le classi più rappresentate sono quelle tra 80 e 140  $\mu g/m^3$ , anche per questo parametro i livelli sono stati definiti riferendosi a valori già presenti in normativa o indicati dall'OMS, secondo quanto riportato in Tabella 12.2.1.

Tabella 12.2.1 – Livelli di allerta per la concentrazione media giornaliera di PM<sub>10</sub> e massima media mobile di O<sub>3</sub>.

Allerta	µg/m <sup>3</sup>	Allerta	µg/m <sup>3</sup>
LIVELLO 0	<=25	LIVELLO 0	<=100
LIVELLO 1	>25 < =35	LIVELLO 1	>100 <=120
LIVELLO 2	35.1-50	LIVELLO 2	120.1-140
LIVELLO 3	>50 o 3gg > 35	LIVELLO 3	> 140 o >120 3gg

Il livello di allerta giornaliero per la qualità dell'aria per ogni zona sarà il peggiore raggiunto da O<sub>3</sub> e PM<sub>10</sub>.

Per comprendere come associare ad ogni combinazione possibile di livelli dell'HHWWS e di qualità dell'aria un livello per l'allerta congiunto sono stati incrociati i dati tra

il 15 maggio e il 15 settembre 2011-2018 dell'HHWWS con i dati monitorati dalle stazioni su Roma, ottenendo le occorrenze riportate in Tabella 12.2.2.

Tabella 12.2.2 – Frequenze combinazioni differenti livelli di allerta HHWWS-Qualità dell'aria estate 2011-2018 e matrice assegnazione livello allerta integrato.

Frequenze osservate estate 2011-2018					Assegnazione dei livelli di allerta integrato				
HHWW livello	0	1	2	3	HHWW livello	0	1	2	3
					QA livello				
0	8.8	0.0	0.0	0.0	0	0	0	1	2
1	36.9	2.9	1.3	0.8	1	0	1	1	2
2	17.4	3.8	1.3	1.5	2	1	1	2	3
3	10.7	5.2	2.3	7.1	3	2	2	3	3

Il livello da assegnare per l'allerta congiunto per le differenti combinazioni dei livelli di allerta caldo e di qualità dell'aria è stato fissato secondo la matrice in Tabella 12.2.2.

Per definire una suddivisione di Roma in aree di rischio omogenee per gli effetti congiunti di inquinamento e

temperature elevate, sono stati utilizzati i risultati di analisi multi anno sulle concentrazioni di PM<sub>10</sub> fornite dal sistema modellistico di Arpa Lazio (Figura 12.2.4) e i risultati della ricostruzione dell'UHI su Roma eseguita nell'ambito del modello di esposizione, Figura 12.2.10.

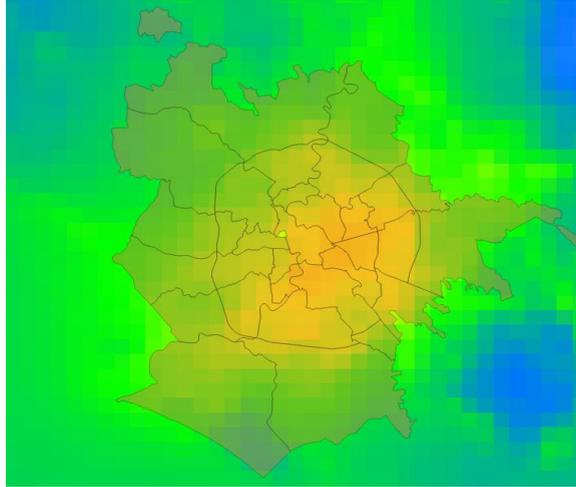


Figura 12.2.4. Concentrazione multi anno del PM<sub>10</sub> ottenuta da elaborazione con modello di dispersione (Arianet).

Sono quindi state individuate 34 zone in cui suddividere il territorio comunale, riportate nella Figura 12.2.5, ottenute a partire dalle aree municipali, ulteriormente suddivise dall'intersezione con il grande raccordo anulare e la fascia verde. Questa suddivisione è stata fatta utilizzando delle linee topografiche note e

riconoscibili della città, riguardando alle analisi multi anno e alla funzionalità per i decisori sul territorio, le ASL, di cui i municipi sono le unità elementari, e il Comune di Roma.

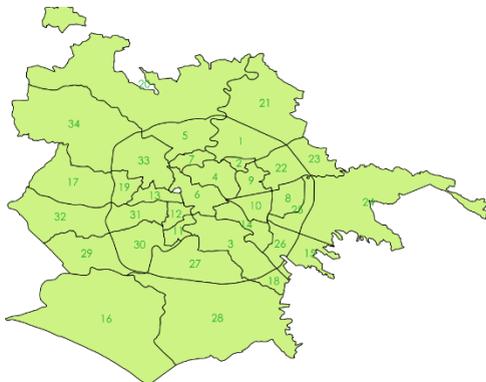


Figura 12.2.5. Zone per allerta integrato su Roma.

Sono state implementate delle routine di calcolo che a partire dalle previsioni di qualità dell'aria sul dominio di Roma, alla definizione del km<sup>2</sup>, ricavano per ogni zona un livello di allerta per il PM<sub>10</sub>\_media giornaliera e uno per l'O<sub>3</sub>\_media mobile massima e assegnano poi il peggiore tra i due livelli ottenuti. Altre routine prendono in input le previsioni dell'HHWWS su Roma e di allerta qualità dell'aria su ogni zona e restituiscono il livello di allerta integrato previsto per ogni zona per le 72 ore successive.

## Risultati

### Modelli di esposizione a polveri sottili e temperatura dell'aria

Dalle mappe delle medie giornaliere stimate dal modello di esposizione alle polveri sottili sono state ottenute le mappe delle concentrazioni medie annue sul Lazio e su Roma, ottenute come medie dei valori giornalieri: per il PM<sub>10</sub> per il periodo 2006-2015, mentre per il PM<sub>2,5</sub> per il periodo 2013-2015. Nelle figure 6 e 8 vengono riportate come esempio le mappe relative alle concentrazioni medie annue per km<sup>2</sup> di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> per il Lazio e per Roma per il 2015.

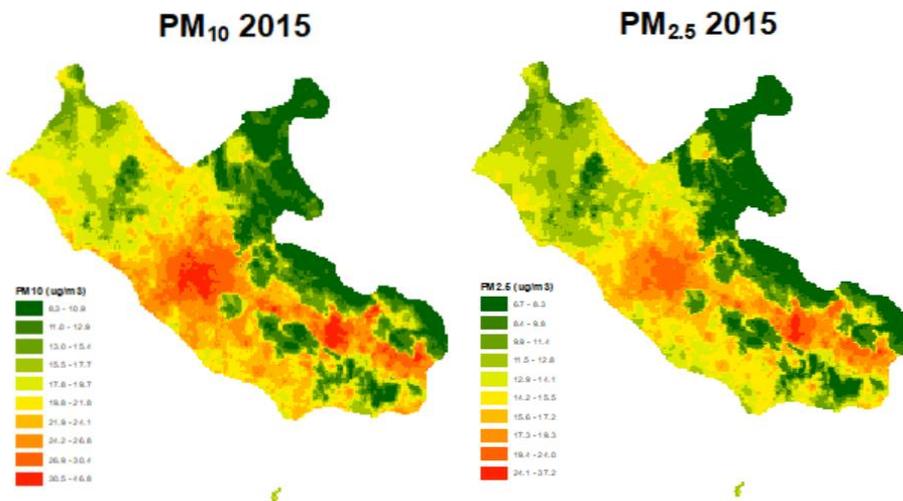


Figura 12.2.6. Mappe concentrazioni annue 2015 sul Lazio PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> da modello statistico multivariato.

Dall'analisi effettuata è emerso che:

- Il PM<sub>10</sub> ed il PM<sub>2,5</sub> tendono ad essere decisamente più elevati a Roma e nella zona della Valle del Sacco;
- Il PM<sub>10</sub> negli anni 2006-2010 ha un gradiente decrescente, con livelli che poi si rialzano e stabilizzano negli anni successivi;

- Per quanto riguarda la città di Roma, si evidenzia una elevata eterogeneità spaziale delle concentrazioni di PM, con livelli più elevati nel settore est e nel centro città;
- Le distribuzioni spaziali di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> sono piuttosto simili all'interno di Roma.

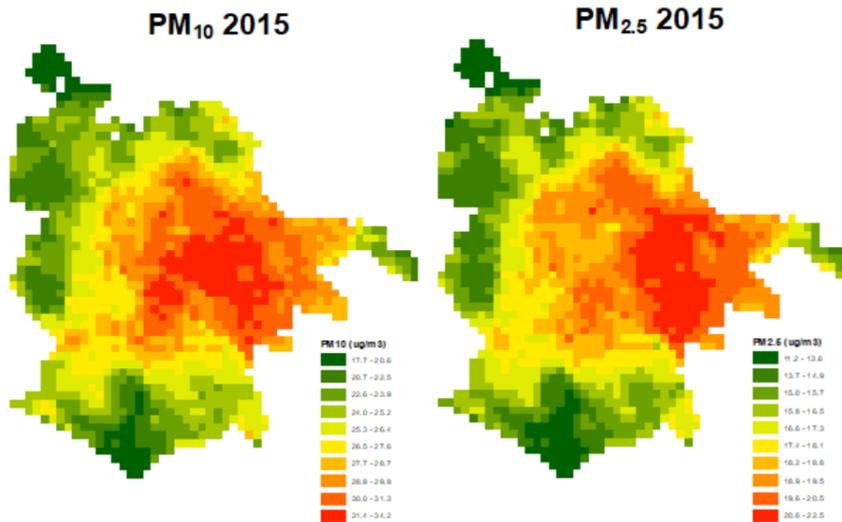


Figura 12.2.7. Mappe concentrazioni annuali 2015 su Roma PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> da modello statistico multivariato

Analogamente dalla stima dell'esposizione alla temperatura dell'aria giornaliera a scala 1 km x 1 km abbiamo ottenuto le mappe di temperatura media annua per la regione Lazio e la città di Roma per gli anni tra il 2001 e il 2010. Si riportano a titolo esemplificativo le mappe ottenute del 2010 per il Lazio e Roma in Figura 12.2.8. È inoltre stata calcolata l'intensità di isola di calore urbano (UHI) media per Roma mediata negli anni 2001-2010, Figura 12.2.9.

Si notano alcuni aspetti, riassunti nei punti successivi:

- C'è una notevole eterogeneità nella distribuzione spaziale delle temperature nel Lazio, con differenziali di oltre 5 °C tra le celle più fresche e quelle più calde per i valori annui e più elevate per i giornalieri;

- Le temperature sono considerevolmente più elevate a Roma e nelle zone costiere, più basse sugli Appennini;

- Non si evidenziano differenze sostanziali tra gli anni, né per i valori medi né per la distribuzione;

- Per quanto riguarda la città di Roma, si evidenziano differenziali importanti di temperatura, anche dell'ordine di 4-5 °C sulle medie annue: c'è un chiaro fenomeno di isola di calore nel centro storico e nel settore est della città con valori medi annui superiori di 2,5-2,9°C;

- Anche l'area urbana di Ostia risulta mediamente più calda delle zone circostanti.

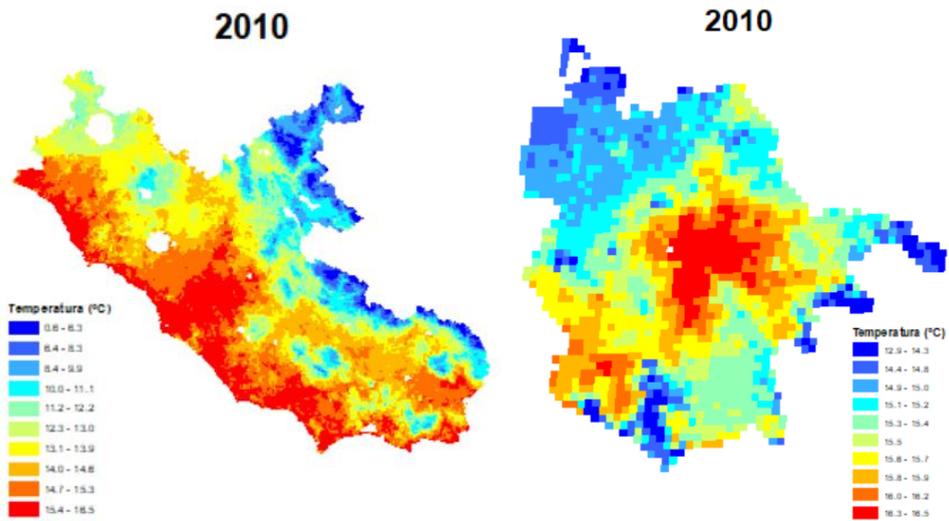


Figura 12.2.8. Mappe di temperatura dell'aria 2010 per Lazio e Roma da modello statistico multivariato.

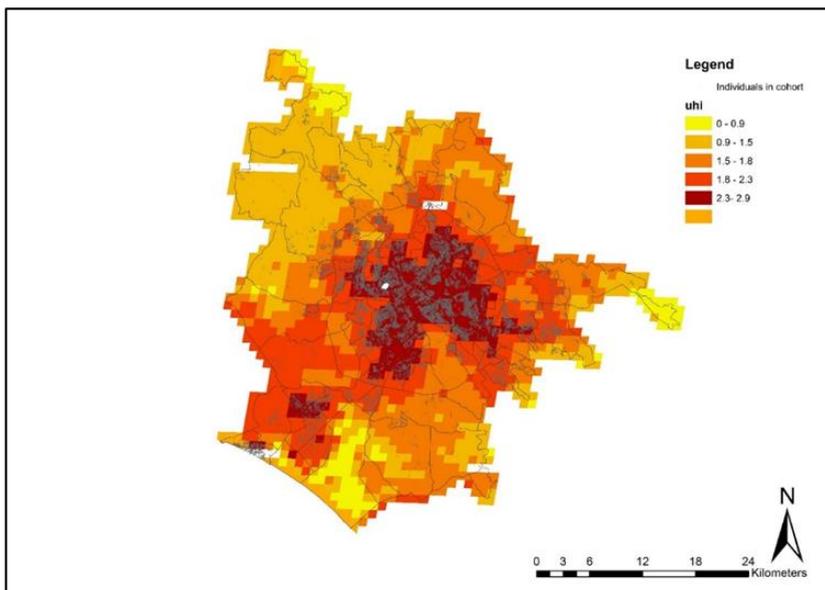


Figura 12.2.9. Mappa dell'intensità dell'isola di calore urbano di Roma, media anni 2001-2010 (°C).

### Campagna di misura della temperatura su Roma

I dati raccolti durante la campagna di misura della temperatura a Roma, all'interno del grande raccordo anulare nel periodo luglio-settembre 2018, sono stati utilizzati per un confronto con le temperature stimate dal modello statistico a partire dai dati satellitari. A partire dai dati registrati dalle 30 postazioni di misura logtag e dalle stazioni di qualità dell'aria dotate di sensore di

temperatura è stata effettuata l'interpolazione delle temperature medie di periodo utilizzando il metodo dell'inverso del quadrato della distanza. La mappa risultante è stata confrontata con la mappa dell'intensità dell'UHI su Roma ottenuta con modello di stima dell'esposizione alla temperatura (Figura 12.2.10).

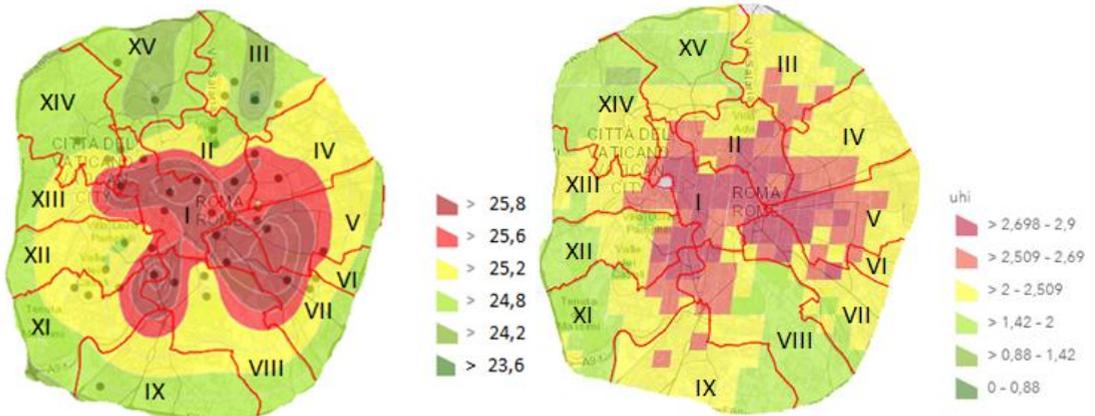


Figura 12.2.10. Confronto interpolazione dati campagna di misura 2018-intensità dell'UHI su Roma 2001-2010.

La distribuzione dei valori ottenuti dall'interpolazione delle temperature medie di periodo registrate nella campagna rispecchia la forma dell'intensità dell'UHI con l'eccezione di un'area a nord-est che nell'estate 2018 risulta più fresca. Le aree più calde sono a centro città e in due lobi che si estendono a sud-est e sud-ovest.

*Risultati degli studi di effetto all'esposizione a polveri sottili*

Effetti legati al PM sui ricoveri cardiovascolari: Disaggregando, per età, sesso e grado di urbanizzazione del comune di residenza, gli effetti del PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> sui ricoveri cardiovascolari si nota un effetto marcato, con intervalli di confidenza minori, del PM<sub>10</sub> nelle classi più anziane e nelle aree metropolitane del Lazio, più debole per il PM<sub>2,5</sub> (Figura 12.2.11).

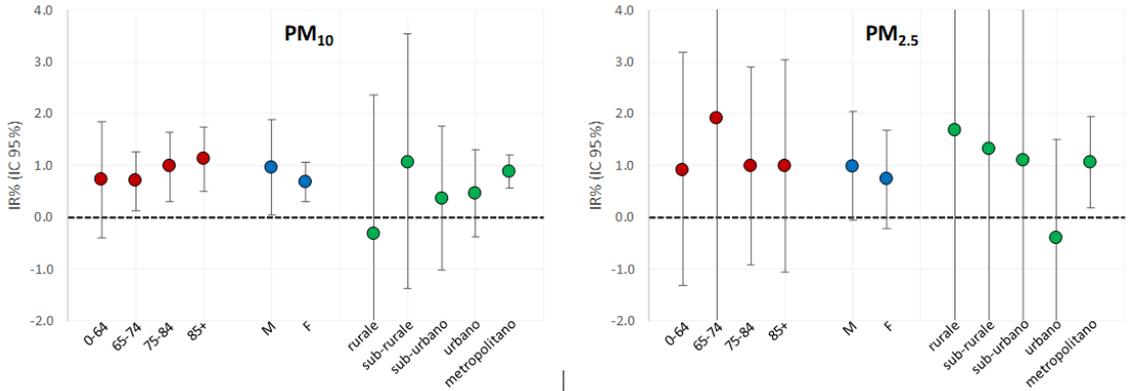


Figura 12.2.11. Effetto del PM<sub>10</sub> (2006-2015, lag0-1) e del PM<sub>2.5</sub> (2013-2015, lag0-1) sui ricoveri cardiovascolari: risultati per età, sesso e grado di urbanizzazione: incrementi percentuali di rischio (IR%) e intervalli di confidenza al 95% (IC 95%) per variazioni di 10 µg/m<sup>3</sup> dell'inquinante.

Dallo studio dell'associazione tra PM<sub>10</sub> e ricoveri cardiovascolari nel Lazio, per diversi lag, nel periodo 2006-2015 si evidenziano effetti significativi ed immediati

del PM<sub>10</sub> sulle cause cardiovascolari, cardiache, ischemiche e sullo scompenso cardiaco (Figura 12.2.12).

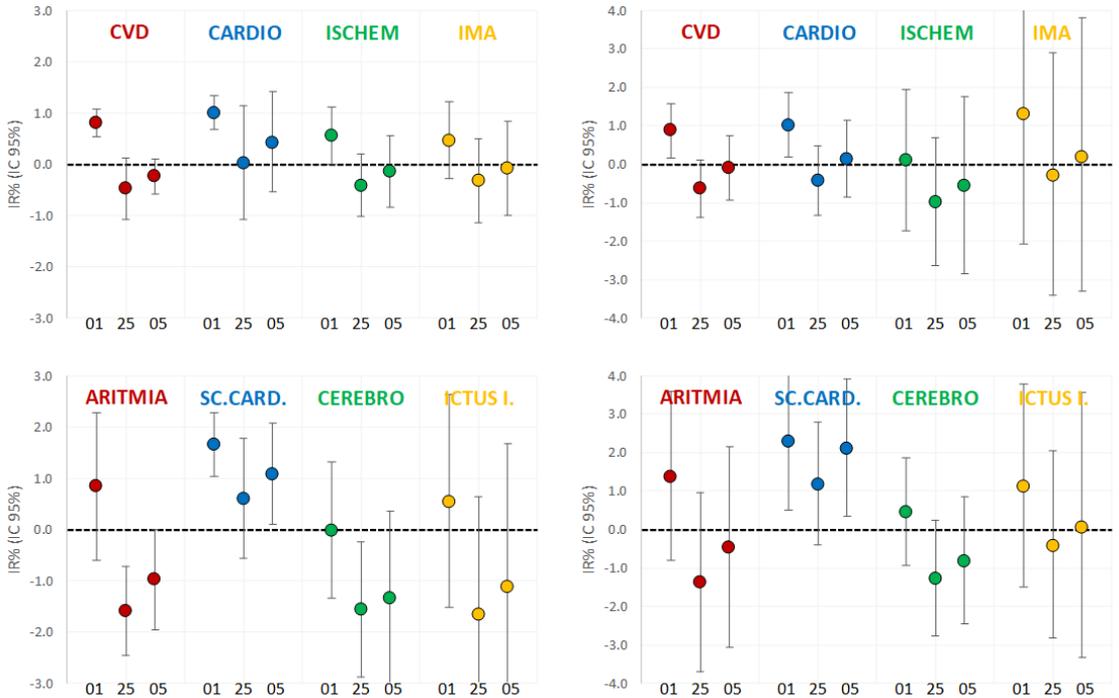


Figura 12.2.12. Effetto sui ricoveri cardiovascolari- risultati per diagnosi e lag – Lazio: colonna a dx PM<sub>10</sub> 2006-2015, colonna a sn PM<sub>2.5</sub> 2013-2015: incrementi percentuali di rischio (IR%) e intervalli di confidenza al 95% (IC 95%) per variazioni di 10 µg/m<sup>3</sup> dell'inquinante, ai diversi lag.

L'analisi per il PM<sub>2.5</sub>, limitata al periodo 2013-2015, seppur di potenza statistica inferiore, evidenzia effetti significativi sui ricoveri cardiovascolari e su quelli per scompenso cardiaco.

Effetti legati al PM sui ricoveri respiratori: gli effetti del PM sui ricoveri respiratori sono inferiori rispetto ai cardiovascolari, particolarmente accentuati in età pediatrica e nei comuni rurali. Sia per i ricoveri respiratori che per i cardiovascolari, si evidenziano effetti simili tra tutte le province del Lazio.

Effetti legati al PM sui decessi per cause specifiche: sono emersi effetti significativi del PM<sub>10</sub> sulle cause naturali, cardiovascolari, cardiache e cerebrovascolari, mentre più deboli sono le evidenze relativamente a cause meno indagate in letteratura, come le metaboliche e le mentali (Figura 12.2.13). Di rilievo, invece, è risultata l'associazione tra PM<sub>10</sub> e malattie nervose. Simili risultati sono stati ottenuti anche per il PM<sub>2.5</sub>, con la conferma di una fortissima associazione dell'esposizione con i decessi per cause nervose.

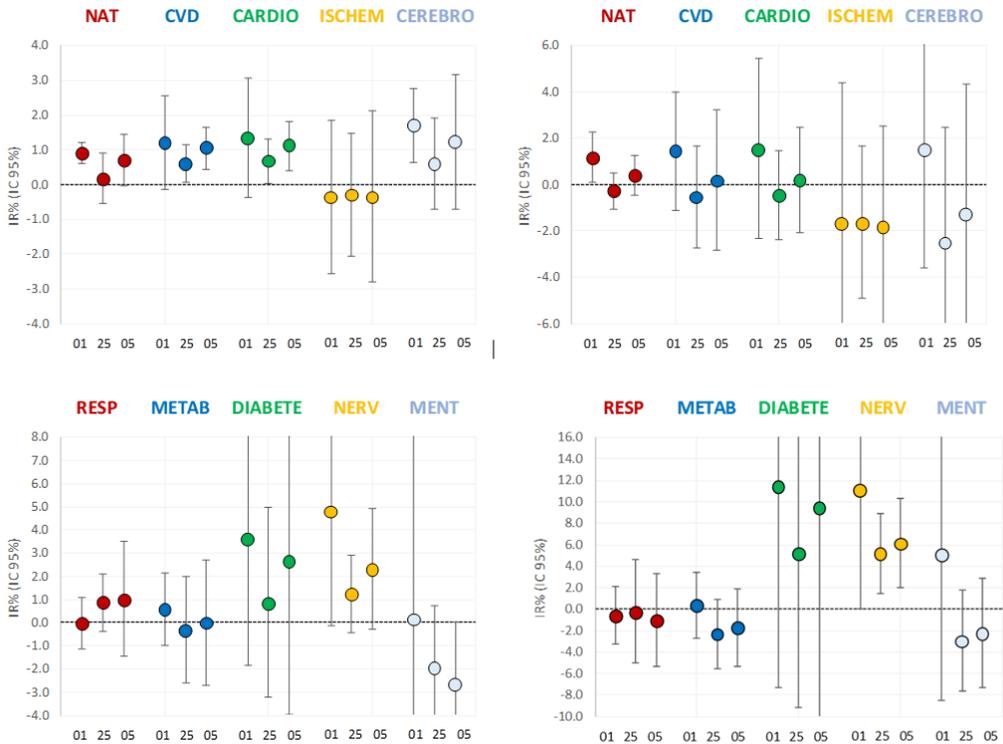


Figura 12.2.13. Effetto del PM<sub>10</sub> 2006-2015, sn, e PM<sub>2,5</sub> 2013-2015, dx, sulla mortalità causa-specifica: risultati per diagnosi e lag – Lazio: incrementi percentuali di rischio (IR%) e intervalli di confidenza al 95% (IC 95%) per variazioni di 10 µg/m<sup>3</sup> dell'inquinante.

Anche nel caso della mortalità, gli effetti del PM sono più elevati negli anziani, mentre non ci sono chiare differenze di effetto tra comuni urbani, sub-urbani e rurali, né per le diverse province.

Infine nella città di Roma indagando gli effetti del PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> sulla mortalità, sul lungo periodo, per le diverse cause all'interno dello Studio Longitudinale Romano si evidenzia una forte associazione con i decessi naturali e cardiovascolari, ed una assenza di associazione con i decessi respiratori.

*Risultati degli studi di effetto all'esposizione alla temperatura dell'aria*

**Effetti del caldo sulla mortalità nel Lazio:** Il numero medio totale di decessi giornalieri in estate sui 375 comuni del Lazio è stato di 56,3, di questi, poco meno della metà erano attribuibili a cause cardiovascolari (24,8 decessi) e solo 8 a cause respiratorie. I tassi di mortalità più alti sono stati osservati nei grandi comuni e ancora più elevati a Roma per tutte le cause di morte incluse nello studio (naturale, cardiovascolare e respiratorio). Un'associazione non lineare tra temperatura media e mortalità è stata identificata in tutti i comuni della regione Lazio con un aumento della mortalità all'aumentare delle temperature durante l'estate. La relazione dose-risposta

tra la temperatura media e la mortalità naturale, cardiovascolare e respiratoria, raggruppate per dimensione del comune, è riportata in Figura 12.2.14.

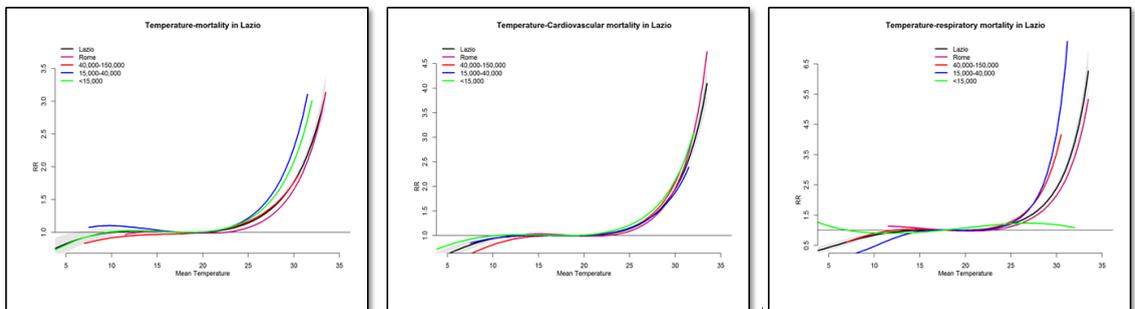


Figura 12.2.14. Relazioni dose-risposta per temperatura media e, rispettivamente, mortalità naturale, cardiovascolare e respiratoria

L'effetto del caldo sulla mortalità naturale totale nei comuni di piccole e medie dimensioni inizia ad aumentare a temperature più basse rispetto a Roma e ai grandi comuni. La curva di effetto della temperatura a Roma è spostata a destra, raggiunge valori più alti con una pendenza meno ripida, suggerendo un effetto minore. Durante l'estate, per aumenti delle temperature medie al di sopra del valore mediano è stato osservato un effetto statisticamente significativo sulla mortalità in tutti i gruppi di comuni della regione Lazio. La relazione dose-risposta di decessi cardiovascolari è simile nella forma alle curve dei decessi naturali complessivi, con un aumento del rischio di mortalità all'aumentare delle temperature ma è più ripida, raggiungendo stime di rischio relativo più elevate per esposizioni estreme. Al contrario della mortalità totale complessiva, le curve cardiovascolari per classi di comuni di diverse dimensioni sembrano omogenee in termini di forma, quindi molto più vicine tra loro. Sebbene il numero giornaliero di decessi respiratori si è dimostrato inferiore, è ancora possibile

osservare un effetto significativo del caldo per le cause respiratorie di morte.

Effetti legati al caldo sui ricoveri ospedalieri: Contrariamente a quanto osservato per la mortalità, non si osserva una relazione tra caldo e ricoveri ospedalieri. Un effetto del caldo si riscontra solo per i ricoveri respiratori, specialmente nei comuni di piccole e medie dimensioni.

*Implementazione sistema allerta integrato caldo. Qualità dell'aria estate 2019*

Una volta definiti tutti i dettagli il sistema di allerta integrato è stato implementato in via sperimentale per la stagione estiva 2019 e sta girando anche per il 2020. Per ogni giorno nel 2019 sono stati restituiti i risultati della previsione di allerta congiunta sia su mappe che in forma tabellare (Figura 12.2.15).

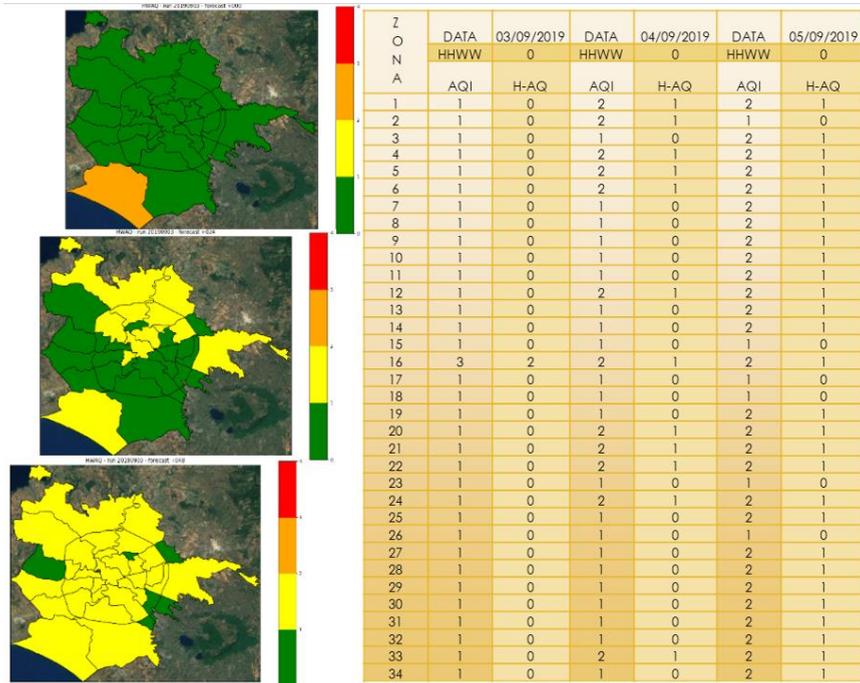


Figura 12.2.15. Esempio risultato allerta integrato 3 Settembre 2019 su Roma.

Analizzando le allerte date dal sistema integrato nell'estate 2019 il più frequente è il livello zero, come deve essere, e via via le frequenze diminuiscono salendo nei successivi livelli di allerta. Rispetto ai livelli dati dal solo sistema allerta caldo nella stessa estate le percentuali dell'allerta integrato sono minori di un 20% nel livello di allerta zero, aumentando di circa un 10% nei livelli 1 e 2 e di un 2% nel livello 3. Le allerte per la qualità dell'aria sono comandate dai livelli raggiunti per la media mobile massima dell'O<sub>3</sub> visto che durante l'estate 2019 i valori previsti per il PM<sub>10</sub> hanno difficilmente superato i valori del livello 0.

Gli effetti congiunti di caldo e qualità dell'aria individuano delle differenziazioni su Roma, come si può vedere dalla distribuzione dei livelli di allerta integrato per le diverse zone (Figura 12.2.16). In particolare si vede come le percentuali di rischio massimo per l'allerta crescano, non solo nelle zone più a rischio per le temperature elevate, già riconosciute dalle precedenti analisi, ma anche in quelle più verdi e soprattutto in quelle periferiche in cui più facilmente salgono i livelli di ozono (zona 16 e 24).

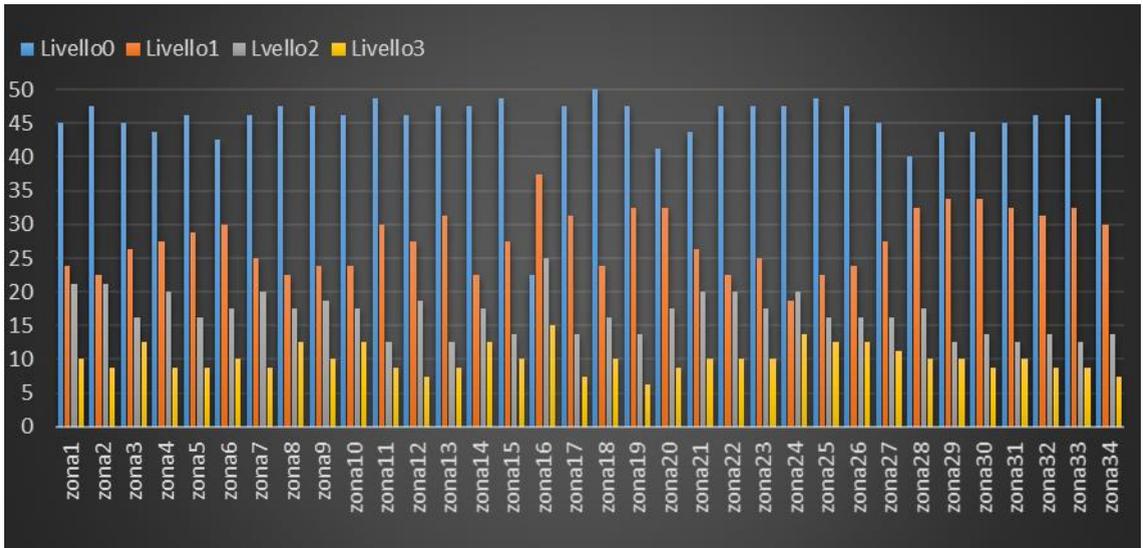


Figura 12.2.16. Percentuali livelli allerta congiunto per le diverse zone su Roma.

Confrontando i valori osservati di inquinanti (rete ARPA Lazio) e di temperatura (rete Aeronautica Militare) con quelli previsti dai sistemi, l'efficienza è migliore per l'HHWWS con qualche sovrastima e per il PM giornaliero (sottostima dei soli casi di aumento delle concentrazioni per avvezioni sahariane), mentre è peggiore per l'O<sub>3</sub>, che viene spesso sovrastimato.

### Discussione e conclusioni

Sono stati realizzati, a partire da dati satellitari, dei modelli spatio-temporali di esposizione, che hanno evidenziato una notevole eterogeneità nella distribuzione spaziale del PM e della temperatura. I modelli sviluppati si sono mostrati in grado di stimare PM e temperature nelle diverse zone del Lazio tenendo conto della complessa orografia e delle caratteristiche locali, e di distinguere tra aree urbane, suburbane e rurali. Nella regione, si sono evidenziate concentrazioni più elevate di PM nelle città, nell'area costiera e soprattutto nella zona della Valle del Sacco. Analogamente, la

temperatura era massima nelle città e minima nelle aree appenniniche. All'interno della città di Roma, le mappe di PM e temperatura erano molto simili, con le aree centrali e quelle del settore est della città caratterizzate dalla compresenza di elevato inquinamento e isole di calore urbane. La campagna di misurazione della temperatura effettuata nell'estate 2018 ha avvalorato quanto trovato per la distribuzione dell'UHI a Roma, sottolineando l'eterogeneità dell'esposizione nelle diverse aree della città.

I dati satellitari e di uso del territorio sono stati utilizzati per stimare la temperatura media giornaliera (anni 2001-2010) e le concentrazioni medie giornaliere di PM<sub>10</sub> (2006-2015) e PM<sub>2,5</sub> (2013-2015) per ogni km<sup>2</sup> del territorio regionale. È stata utilizzata una metodologia random forest per attribuire un valore di AOD e LST nelle celle in cui il dato satellitare era mancante e prevedere le concentrazioni giornaliere di PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub> e di temperatura dell'aria a una risoluzione spaziale fine sulla regione. La metodologia sviluppata fornisce stime della

temperatura dell'aria e del PM giornalieri per periodi prolungati con eccellenti prestazioni dei modelli.

La metodologia è tutt'altro che semplice e richiede una grande quantità di dati di input con una buona risoluzione spaziale e temporale. Tuttavia, i potenziali benefici rispetto ai dati di temperatura dell'aria e di concentrazioni di PM attualmente disponibili provenienti dai siti di monitoraggio sono notevoli e la metodologia può essere implementata ovunque tenendo conto delle caratteristiche locali.

Le stime ottenute, su considerevoli estensioni temporali, in questo studio hanno consentito per la prima volta la valutazione di effetti sanitari delle concentrazioni di particelle fini e grossolane e del calore nel Lazio, sia nelle città principali che nelle città minori, nelle aree suburbane e rurali, precedentemente escluse da molte indagini epidemiologiche perché prive di dati di esposizione. Le analisi epidemiologiche hanno confermato le evidenze di letteratura, mostrando eccessi di mortalità per cause naturali e cardiorespiratorie legati a picchi di inquinamento e temperature estive, ed eccessi di ospedalizzazioni, soprattutto per alcune patologie quali le malattie cardiache, lo scompenso cardiaco e le malattie respiratorie. Le patologie cardiovascolari mostrano una latenza immediata, con picchi di decessi/ricoveri che si manifestano nel giorno stesso del picco di PM o di calore, mentre le patologie respiratorie evidenziano latenze più prolungate, fino a 5-6 giorni.

Non si sono evidenziate differenze di associazione nelle diverse provincie e, abbiamo documentato importanti effetti avversi, tanto delle temperature estreme che del particolato, anche in comuni rurali piccoli o in comuni sub-urbani del Lazio medio-piccoli.

Infine, abbiamo riscontrato un rischio di mortalità ed ospedalizzazione crescente per età, a dimostrazione della necessità di pianificare politiche di adattamento e mitigazione per contrastare gli effetti avversi delle ondate di calore e del PM soprattutto nelle fasce maggiormente a rischio.

E' stato progettato e implementato un primo sistema integrato di allarme dell'inquinamento atmosferico e delle

ondate di calore a Roma, graduato per aree di rischio, che ha un'importanza anche da un punto di vista di sanità pubblica. E' il primo esempio in Italia, di definizione di un sistema di allerta che combini tre elementi essenziali: le temperature estive, i picchi di inquinamento e la spazializzazione di entrambi sul territorio. Ciò ha permesso di evidenziare un'eterogeneità dell'esposizione su Roma, mettendo in evidenza come, oltre alle zone centrali più soggette alle ondate di calore, ci siano anche zone periferiche, ad est della città e verso il mare in cui l'esposizione congiunta è maggiore. Su tali aree, e sulle popolazioni ivi residenti, dovrebbero concentrarsi in futuro le politiche comunali di sanità pubblica.

Questo sistema di allerta integrato è "portabile" ovvero realizzabile in qualunque città sia dotata sia di un sistema di allerta caldo (HHWWS) sia di un sistema previsionale della qualità dell'aria. Come primo esperimento è sicuramente perfezionabile, il prossimo passo dovrebbe essere modulare l'allerta caldo, che in questa versione è unico su Roma e coincidente con quello istituzionale del HHWWS, nelle diverse zone, considerando quanto ottenuto nelle analisi di esposizione, scegliendo un modello meteorologico da cui ricavare le previsioni per i parametri meteorologici che entrano nella modulazione di rischio dell'allerta caldo.

Il sistema di allerta integrato, qualora fosse utilizzato a regime negli anni a venire, potrebbe entrare nella progettazione, da parte delle autorità comunali, delle misure di mitigazione del rischio, basate sull'interazione tra le due esposizioni ambientali e modulate per area geografica, oltre che sui consueti fattori individuali di vulnerabilità.

In conclusione, lo studio ha evidenziato che l'esposizione acuta a PM ed alle temperature estreme aumenta il rischio di mortalità e morbosità nel Lazio.

## Ringraziamenti

Il nostro ringraziamento ad Alessio d'Allura di ARIANET srl. per la proattiva partecipazione al progetto.



**Bibliografia**

- Alessandrini E.R. et al., 2013. [Air pollution and mortality in twenty-five Italian cities: results of the EpiAir2 Project]. *Epidemiol Prev*; 37: 220-229. Italian.
- Badaloni et al. 2018: Big data in environmental epidemiology. Satellite and land use data for the estimation of environmental exposures at national level.
- de' Donato F., Scortichini M., De Sario M., de Martino A., Michelozzi P., 2018: Temporal variation in the effect of heat and the role of the Italian heat prevention plan. *Public Health*. 2018;161:154-162. doi:10.1016/j.puhe.2018.03.030
- IARC, 2013: Scientific Publication No. 161: Air Pollution and Cancer.
- IPCC, 2013: Contribution of Working Group I "The Physical Science Basis". Cambridge, UK and New York, NY, USA.
- Kloog I. et al., 2012: Temporal and spatial assessments of minimum air temperature using satellite surface temperature measurements in Massachusetts, USA. *Sci. Total Environ.*; 432: 85-92.
- Kloog I. et al., 2012: Incorporating local land use regression and satellite aerosol optical depth in a hybrid model of spatiotemporal PM(2.5) exposures in the Mid-Atlantic states. *Environ. Sci. Technol.*; 46: 11913-11921.
- Michelozzi P., de' Donato F., Bargagli A.M., et al., 2010: Surveillance of summer mortality and preparedness to reduce the health impact of heat waves in Italy. *Int J Environ Res Public Health*. 2010;7(5):2256-2273. doi:10.3390/ijerph7052256; <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/20623023/>; [www.salute.gov.it/caldo](http://www.salute.gov.it/caldo)
- Stafoggia et al. 2017: Estimation of daily PM<sub>10</sub> concentrations in Italy (2006-2012) using finely resolved satellite data, land use variables and meteorology. *Environ Int*. 2017 Feb; 99: 234-244.
- Stafoggia et al., 2019: Estimation of daily PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> concentrations in Italy, 2013–2015, using a spatiotemporal land-use random-forest model. *Environ Int*. 2019, 124, pp. 170-179.

### 12.3 MAPPE DI SUITABILITY PER IL PROGETTO DI ADEGUAMENTO DELLA RETE DI QUALITÀ DELL'ARIA – INDICE DI RAPPRESENTATIVITÀ DELL'ESPOSIZIONE DELLA POPOLAZIONE

Acampora A.<sup>1</sup>, Crisci A.<sup>1</sup>, Mangiamele L.<sup>1</sup>, Di Pierro M.<sup>1</sup>, Zasa D.<sup>1</sup>, D'Aniello M.<sup>1</sup>

<sup>1</sup>ARPA BASILICATA

#### RIASSUNTO

Una delle principali finalità del D.Lgs 13 agosto 2010, n 155, è "... prevenire o ridurre effetti nocivi per la salute umana ..." (cfr. art. 1, comma 1, lettere a) e c)), focalizzando in tal modo l'attenzione sulla esposizione della popolazione.

Lo stesso decreto, all'allegato III, punto 3, definisce una serie di condizioni per la corretta ubicazione su macroscala dei siti fissi di campionamento; tra queste, la rappresentatività del sito di una zona (o agglomerato) nella quale la popolazione può essere esposta alle concentrazioni di fondo o più elevate. Obiettivo del presente lavoro è quello di individuare un metodo per la determinazione di un indice, rappresentabile spazialmente, che informa sul grado di rappresentatività dell'esposizione della popolazione alle concentrazioni massime e di fondo dell'inquinamento atmosferico (Indice di Rappresentatività di Esposizione della Popolazione - IREP). Per raggiungere questo obiettivo, la valutazione della rappresentatività spaziale (SR) di un sito si configura come un aspetto fondamentale, che, unitamente alla distribuzione della popolazione, fornisce gli elementi necessari per definire il metodo cercato. L'indice è stato poi utilizzato sul territorio della Regione Basilicata, in occasione del progetto di adeguamento della rete di qualità dell'aria. La metodologia, opportunamente elaborata con analisi spaziali in ambiente GIS, ha consentito di produrre, per gli inquinanti con maggiore criticità (PM<sub>10</sub>, NO<sub>2</sub> ed O<sub>3</sub>), alcune mappe di sintesi rappresentative dell'indice, consentendo di effettuare in modo oggettivo due operazioni: i. una valutazione delle stazioni della rete in termini di esposizione della popolazione sia ai valori di fondo sia alle massime esposizioni; ii. un orientamento sulla individuazione di eventuali nuove stazioni.

La valutazione delle stazioni della rete di monitoraggio di qualità dell'aria è stata agevolmente eseguita sovrapponendo il layer delle stazioni con la mappa dell'IREP.

L'individuazione di eventuali nuove stazioni è risultata facilitata da una semplice visione della stessa mappa che si è presentata come un insieme di areali definiti dalla variabilità dell'indice, informando sulla maggiore o minore rappresentatività dell'esposizione della popolazione.

**Parole chiave:** rappresentatività, esposizione della popolazione, qualità dell'aria, analisi spaziali, mappe di suitability

#### ABSTRACT

One of the main aims of Decree no. 155 of 13 August 2010 is to prevent or reduce harmful effects on health, thus focusing the attention on population exposure. The same Decree in annex III, point 3, defines the criteria for the correct location of the fixed sampling sites on a large scale. Among these, there is the representativeness of an area site (or agglomeration) in which the population can be exposed to background or higher concentration of pollutants.

The goal of this paper is to identify a method for the determination of an index which can be represented spatially and which informs about the degree of representativeness of population exposure to high and background concentrations of air pollution (Population Exposure Representativeness Index - IREP). It is determined through the evaluation of Spatial Representativeness (SR) and population density. The index was used in the Basilicata region when the air quality network was adjusted.

The method was worked out with spatial analyses in GIS environment, which allowed to have IREP's maps for the most critical pollutants (PM<sub>10</sub>, NO<sub>2</sub> and O<sub>3</sub>) in Basilicata. These suitability maps allow to carry out two operations: **i.** an assessment of the network stations in terms of population exposure to both background values and maximum exposures; **ii.** an orientation on the identification of potential new stations.

The evaluation of the stations of the air quality monitoring network was easily performed by watching the layer of the stations with the IREP map. New station were located observing the variability of the index which informs about the greater or lesser representativeness of population exposure.

**Keywords:** representativeness, population exposure, air quality, spatial analyses, suitability map

## Introduzione

La valutazione della qualità dell'aria ambiente è effettuata, in Europa (EC, 2008) e conseguentemente in Italia (D.Lgs 155/2010), applicando specifici criteri, sia di ubicazione su macroscala dei siti fissi di campionamento, sia di utilizzo di tecniche di modellazione. Tra le condizioni di ubicazione su macroscala dei siti fissi di campionamento, il decreto 155/2010 indica la rappresentatività del sito di una zona (o agglomerato) nella quale la popolazione può essere esposta alle concentrazioni di fondo o a quelle più elevate. Il concetto elementare di rappresentatività spaziale (SR) si basa sulla determinazione dell'area alla quale si possono estendere le informazioni osservate in un sito di monitoraggio, e nel caso specifico di una stazione di monitoraggio della qualità dell'aria, la SR esprime per quale estensione una misurazione in questa stazione può essere considerata rappresentativa delle concentrazioni di inquinanti dell'aria ambiente intorno alla stazione stessa (Kracht et al., 2017). Oltre alla variabile spaziale, è stato associato al concetto di rappresentatività, anche quello temporale; un punto di misura, infatti, è rappresentativo di un'area più vasta se risulta maggiore del 90% la probabilità che nel tempo la

differenza tra il valore misurato nel sito e quello misurato nell'area sia minore di una fissata soglia (Nappo et al., 1982). I soli dati delle stazioni di monitoraggio, possono essere influenzati fortemente da fattori locali, e rappresentano spesso un numero abbastanza esiguo di misure puntuali, difficilmente idonee a essere spazializzate a scala regionale. L'informazione del dato nello spazio è, invece, particolarmente necessario quando si deve installare una nuova rete di misura, o quando si deve adeguare, modificare o integrare una rete esistente. Per questo motivo, ai fini della valutazione della SR, occorre determinare la concentrazione degli inquinanti in tutti i punti dello spazio, e per arrivare a questo risultato ci sono due possibilità: la modellazione della qualità dell'aria, o la cosiddetta parametrizzazione, ovvero la determinazione della concentrazione di inquinanti a partire da dati sostitutivi a loro volta disponibili nello spazio (Spangl et al., 2007). Ciò ha portato allo sviluppo in letteratura di diversi approcci metodologici con diverse fonti di informazione, per la individuazione della SR, quali: metodi basati sull'analisi dei campi di concentrazione stimati da simulazioni modellistiche (Vitali et al., 2013; Busillo et al., 2014), metodi basati su simulazioni modellistiche e/o misure in sito (Martin et al., 2014; Piersanti et al., 2015), metodi basati su variabili proxy (come copertura del suolo, sorgenti emissive, Janssen et al., 2008; Janssen et al., 2010; Piersanti et al., 2013; Cremona et al., 2013; Righini et al., 2014).

Obiettivo del presente lavoro è quello di individuare un metodo per la determinazione di un indice, rappresentabile spazialmente, che informa sul grado di rappresentatività dell'esposizione della popolazione alle concentrazioni massime e di fondo dell'inquinamento atmosferico (Indice di Rappresentatività di Esposizione della Popolazione - IREP). Per raggiungere questo obiettivo, la valutazione della SR rappresenta un aspetto fondamentale, che, unitamente alla distribuzione della popolazione (ISTAT), fornisce gli elementi necessari per definire il metodo cercato. Quest'ultimo, opportunamente elaborato con analisi spaziali in ambiente GIS, genera, per gli inquinanti presi in considerazione, le mappe dell'IREP, e consente di effettuare in modo semplice ed

oggettivo due operazioni: i. la valutazione delle stazioni della rete in termini di esposizione della popolazione sia ai valori di fondo sia alle massime esposizioni; ii. l'orientamento sulla individuazione di nuove stazioni. L'indice è stato utilizzato sul territorio della Regione Basilicata, in occasione del progetto di adeguamento della rete di qualità dell'aria, in conformità al D.Lgs 155/2010. La valutazione delle stazioni della rete di monitoraggio di qualità dell'aria esistente è stata agevolmente eseguita sovrapponendo il layer delle stazioni con la mappa dell'IREP. L'individuazione delle nuove stazioni è risultata facilitata da una semplice visione della stessa mappa che si presenta come un insieme di areali definiti dalla variabilità dell'indice.

## Metodi

Presupposto fondamentale del metodo per la determinazione dell'IREP è la disponibilità di misure di concentrazione degli inquinanti in tutti i punti dello spazio. A tale scopo, in questo studio, si è utilizzato il

pacchetto modellistico tridimensionale ARIA Regional. Il sistema si basa sul modello euleriano fotochimico FARM (Flexible Air quality Regional Model) per la simulazione della dispersione e della chimica degli inquinanti atmosferici alle diverse scale spaziali, che consente la valutazione delle concentrazioni degli inquinanti primari e secondari e delle deposizioni al suolo. Il sistema modellistico è stato applicato per la ricostruzione delle concentrazioni di inquinanti, a scala oraria, nella regione Basilicata. La simulazione è stata condotta per l'intero anno 2018, sulla base dell'inventario delle emissioni comunali, aggiornate al 2015 (ISPRA) e integrate con le informazioni fornite da Arpab sulle sorgenti puntuali. L'area di studio è costituita da un dominio di 148 x 140 km<sup>2</sup> centrato sull'intera regione Basilicata. Il dominio ha una risoluzione di 74 x 70 celle, con risoluzione spaziale di 2 km (*cfr.* Figura 12.3.1).

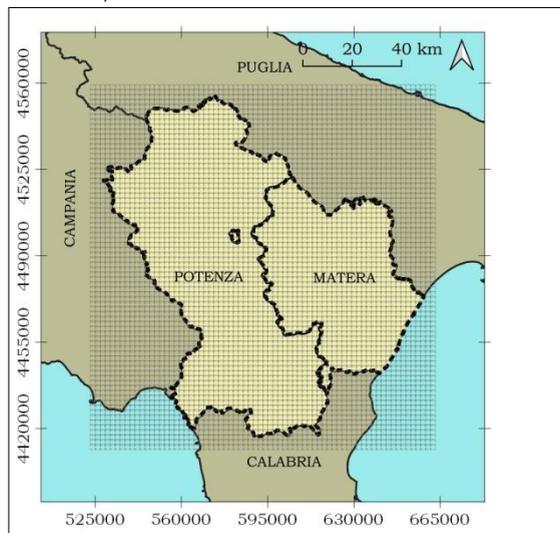


Figura 12.3.1. Dominio dell'area di studio.

Gli inquinanti sui quali è stata posta l'attenzione sono stati PM<sub>10</sub>, NO<sub>2</sub> ed O<sub>3</sub>, tenuto conto della loro maggiore variabilità e criticità, rispetto agli altri inquinanti,

riscontrata dall'esame dei dati storici del monitoraggio. Ai fini della valutazione dell'esposizione della popolazione alle concentrazioni massime e di fondo dell'inquinamento

atmosferico, si è fatto riferimento ai valori massimi giornalieri (per la massima esposizione) e ai valori minimi giornalieri (per il fondo). Gli output del modello sono stati comparati con i dati delle stazioni della rete di monitoraggio di qualità dell'aria della regione (n. 15 stazioni), anche per verificare che la stima dell'incertezza della modellizzazione rientrasse nei limiti previsti dal D.Lgs 155/2010.

Dagli output del modello si sono generate le mappe di SR, in accordo con la condizione di Nappo (Nappo et al., 1982), tradotta da Piersanti (Piersanti et al., 2015) nella funzione (1).

$$I_R(x, y) = \frac{1}{T} \sum_{i=1}^T f_i \quad \text{con } f_i = \begin{cases} 1, & \text{se } \frac{|Conc(x_r, y_r, t_i) - Conc(x_v, y_v, t_i)|}{Conc(x_r, y_r, t_i)} \leq 0,2 \\ 0, & \text{se } \frac{|Conc(x_r, y_r, t_i) - Conc(x_v, y_v, t_i)|}{Conc(x_r, y_r, t_i)} > 0,2 \end{cases} \quad (1)$$

dove:

$Conc$  è la concentrazione stimata,

$x_r$  e  $y_r$  sono le coordinate della cella di riferimento,

$x_v$  e  $y_v$  sono le coordinate della v-esima cella di verifica,

$t_i$  è il tempo al quale fa riferimento la concentrazione (in questo studio giornaliera),

$T$  è la lunghezza del periodo di calcolo (in questo studio un anno).

La funzione, che in questo lavoro è stata definita Indice di Rappresentatività ( $I_R$ ), descrive la frequenza con cui nel tempo la differenza tra il valore di concentrazione di una cella del dominio (che abbiamo definito cella di riferimento), con i valori di concentrazione di tutte le altre celle del dominio (che abbiamo definito celle di verifica), risulta minore della soglia del 20%. L'indice ha valori compresi tra 0 (la condizione  $\leq 0,2$  non è mai soddisfatta -  $I_R$  nullo) ed 1 (la condizione  $\leq 0,2$  è sempre soddisfatta -  $I_R$  pari al 100%).

Ai fini del calcolo dell' $I_{REP}$ , obiettivo del presente lavoro, è stato necessario considerare la distribuzione della popolazione sul territorio regionale, integrandola con l' $I_R$ .

In tal senso, la banca dati ISTAT, costituita da una adeguata mole di dati geografici territoriali, è stata un'utile fonte delle informazioni. Le informazioni presenti nei dati ISTAT si riferiscono all'ultimo aggiornamento presente, ovvero quello del 2011. Con opportune elaborazioni in ambiente GIS, si è ricavata, dai dati territoriali relativi alle Sezioni di Censimento, la mappa di densità della popolazione a scala regionale. La suddetta mappa è stata prodotta su un dominio con risoluzione di 74 x 70 celle e risoluzione spaziale di 2 km, perfettamente sovrapponibile al dominio utilizzato dal modello FARM; ciò al fine di rendere agevolmente confrontabili i risultati delle stime di concentrazione ottenute dal modello, con la densità di popolazione. In maniera ricorsiva, e per ogni cella di riferimento del calcolo dell' $I_R$ , è stato definito l' $I_{REP}$  secondo la formula (2).

$$I_{REP(r)} = \frac{\sum_{c=1}^n (POP_{(c)} * I_{R(c)})}{\sum_{c=1}^n POP_{(c)}} \quad (2)$$

dove:

$n$  è il numero di celle del dominio,

$POP_{(c)}$  è la popolazione della cella in esame,

$I_{R(c)}$  è l'indice di rappresentatività della c-esima cella di riferimento in esame.

In sostanza la (2) applica il concetto di media ponderata all' $I_R$ , considerandolo più importante laddove è maggiore la popolazione presente nella sua stessa cella e, viceversa, meno importante laddove la popolazione è minore o assente.

La Figura 12.3.2, aiuta a comprendere il significato del calcolo. Lo schema (a) simula un'elementare composizione di celle del dominio considerato (celle A, B, C e D con relativo indice di rappresentatività -  $I_R$  - e popolazione - POP). Con bordo in rosso sono rappresentate tutte le celle di riferimento, per le quali è stato calcolato l' $I_{REP}$  applicando la formula (2). La rappresentazione conclusiva contiene per ogni cella del dominio considerato (cfr. schema (b)) il relativo valore dell'indice. Più alto è il valore di tale indice, più la cella è

rappresentativa dell'esposizione della popolazione in relazione a tutte le altre celle del dominio preso in esame.

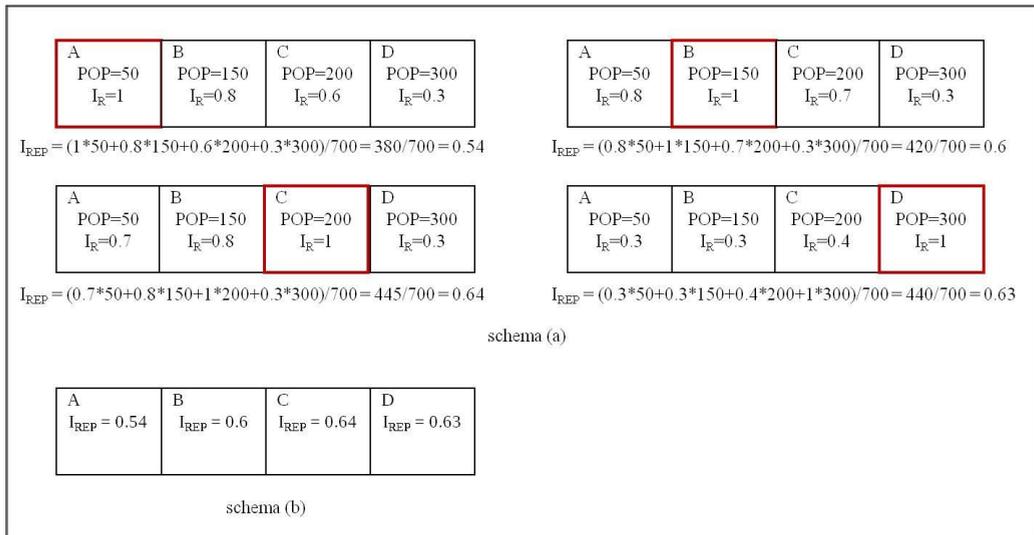


Figura 12.3.2. Schema esplicativo del metodo.

## Risultati

Tenuto conto dell'obiettivo del presente lavoro (esposizione della popolazione alle concentrazioni massime e di fondo dell'inquinamento atmosferico, attraverso l' $I_{REP}$ ), si sono estrapolati dagli output del modello e per ogni cella del dominio (5180 celle) i valori

massimi giornalieri (per la massima esposizione) e i valori minimi giornalieri (per il fondo). Per gli inquinanti presi in considerazione ( $PM_{10}$ ,  $NO_2$  ed  $O_3$ ), quindi, si sono prodotte 365 mappe con i valori minimi giornalieri per cella, ed uguale numero di mappe per i valori massimi giornalieri per cella, del tipo riportato in Figura 12.3.3

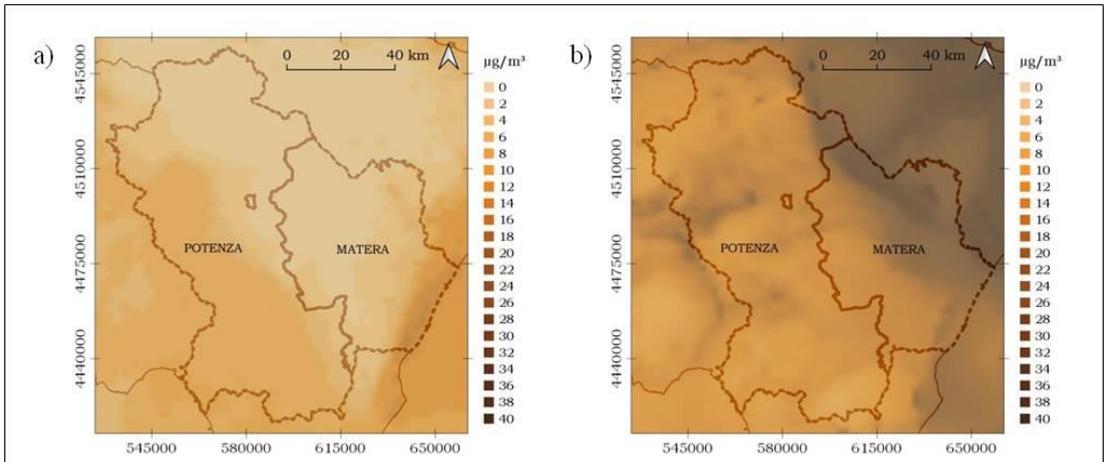


Figura 12.3.3. Output del modello FARM del giorno 21/06/2018. a) minimo giornaliero di PM<sub>10</sub>; b) massimo giornaliero di PM<sub>10</sub>

Dagli output del modello FARM si sono ricavate le mappe dell' $I_R$  attraverso la (1), con l'ausilio di un opportuno script in ambiente statistico "R". L'elaborazione ha generato una corposa serie di matrici del dominio oggetto di studio, rappresentabili in forma di mappe in ambiente GIS. Per ogni inquinante sono state prodotte tante

mappe dell'indice di rappresentatività per quante sono le celle del dominio (5180 celle considerate una alla volta come celle di riferimento), sia per i valori di fondo, sia per i valori massimi. Si riportano in Figura 12.3.4 alcuni esempi di rappresentazione dell' $I_R$ .

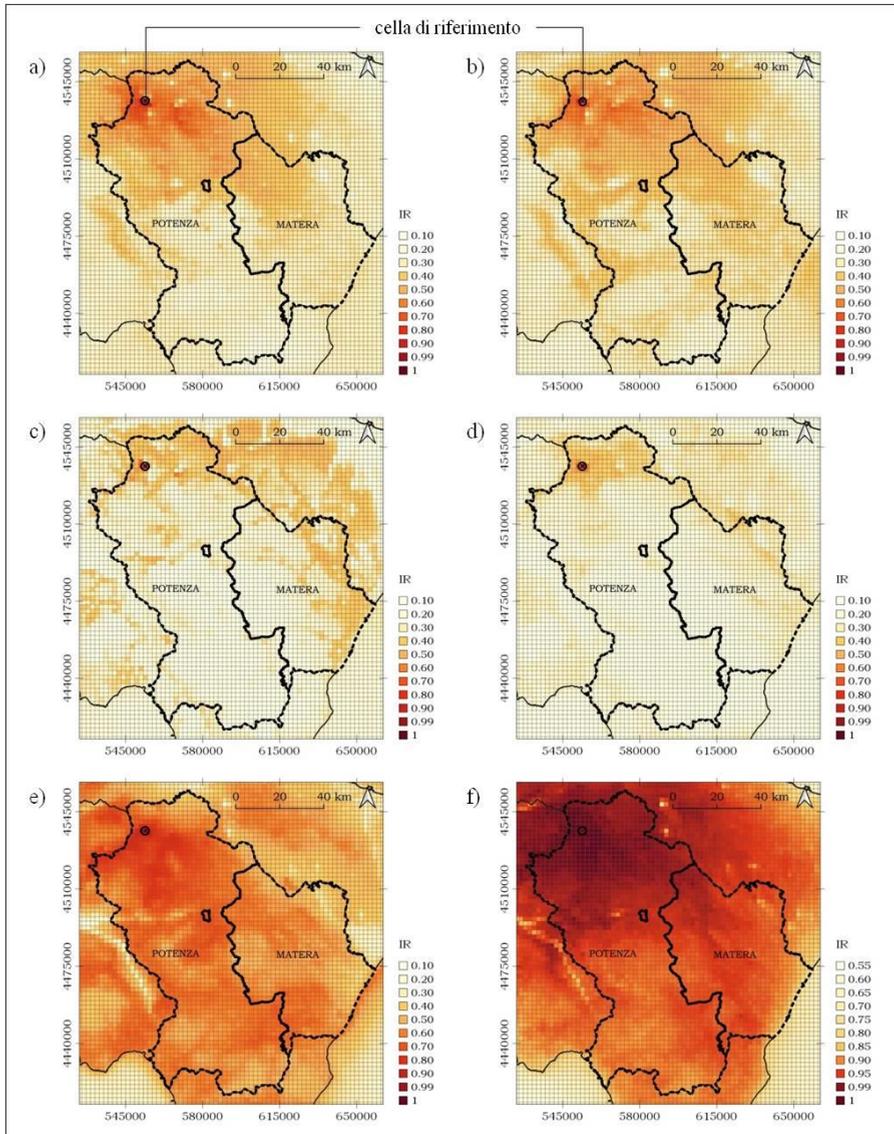


Figura 12.3.4. Esempi di output della funzione (1) – Indice di Rappresentatività della cella di riferimento indicata. a) valori di fondo di PM<sub>10</sub>; b) valori massimi di PM<sub>10</sub>; c) valori di fondo di NO<sub>2</sub>; d) valori massimi di NO<sub>2</sub>; e) valori di fondo di O<sub>3</sub>; f) valori massimi di O<sub>3</sub>

Ai fini dell'individuazione dell'  $I_{REP}$ , è stata utilizzata la mappa di densità della popolazione a scala regionale rappresentata in Figura 12.3.5.

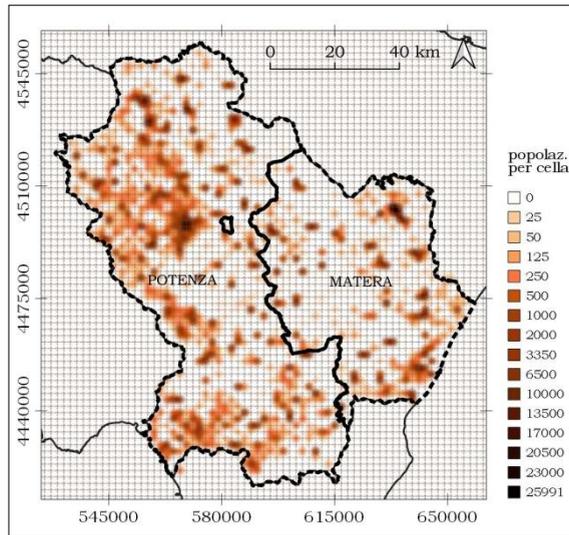


Figura 12.3.5. Mappa di densità di popolazione per cella

Applicando la (2), secondo lo schema di Figura 2, e l'utilizzo combinato delle mappe dell'  $I_R$  con la mappa di densità di popolazione, è stato ricavato l' $I_{REP}$  delle singole celle del dominio di studio. La (2) è stata applicata per zone omogenee, tenendo conto che il territorio della Regione Basilicata è stato suddiviso in 2 zone dal progetto di zonizzazione e classificazione degli inquinanti, in conformità al D.Lgs 155/2010; per gli inquinanti presi in considerazione nel presente lavoro le zone risultano così individuate: zona A e zona B per  $PM_{10}$  e  $NO_2$ , zona C e zona D per  $O_3$ . Anche il calcolo dell' $I_{REP}$

è stato eseguito con l'ausilio di un opportuno script in ambiente statistico "R", che ha generato, per i valori di fondo e i valori massimi degli inquinanti oggetto di studio, le matrici del dominio rappresentate in forma di mappe. Le mappe dell'  $I_{REP}$  dei valori massimi e di fondo degli inquinanti presi in considerazione, prodotte per le zone A e B, hanno evidenziato una rappresentazione, con relativo istogramma delle frequenze dell'indice, del tipo mostrato in Figura 12.3.6.

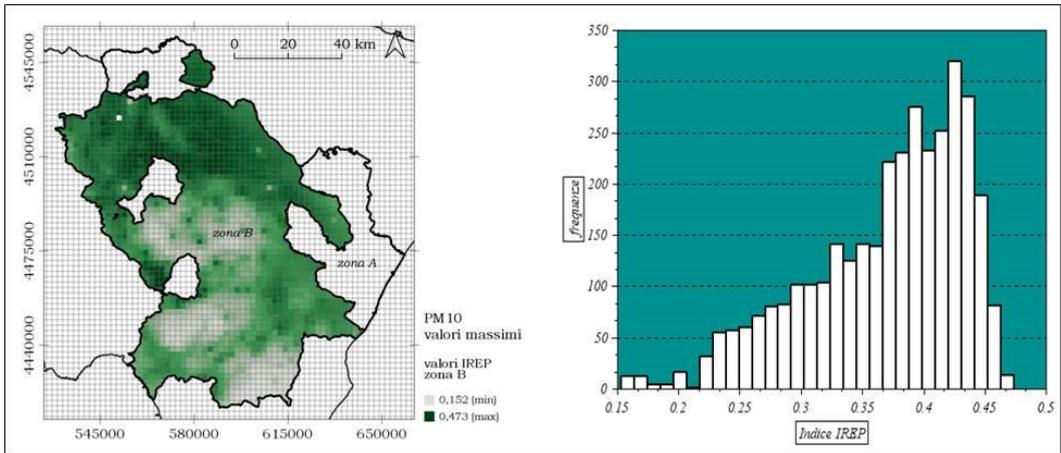


Figura 12.3.6. Zona B, mappa dell'I<sub>REP</sub> dei valori massimi di PM<sub>10</sub> e relativo istogramma delle frequenze

In tutte le mappe, ed i relativi istogrammi, la distribuzione dell'indice è del tipo non uniforme e generalmente con asimmetria negativa. Per le mappe finali dell'I<sub>REP</sub> si è applicata, pertanto, una classificazione in 10 fasce, secondo il metodo "natural breaks" (Jenks, 1967) disponibile in ambiente Gis (QGIS), che ha consentito di

ridurre la varianza all'interno delle classi e massimizzare la varianza tra le classi. La Figura 12.3.7 mostra le mappe finali dell'I<sub>REP</sub>, prodotte per le zone A e B (valori massimi e di fondo di PM<sub>10</sub> ed NO<sub>2</sub>) e per le zone C e D (valori massimi e di fondo di O<sub>3</sub>).

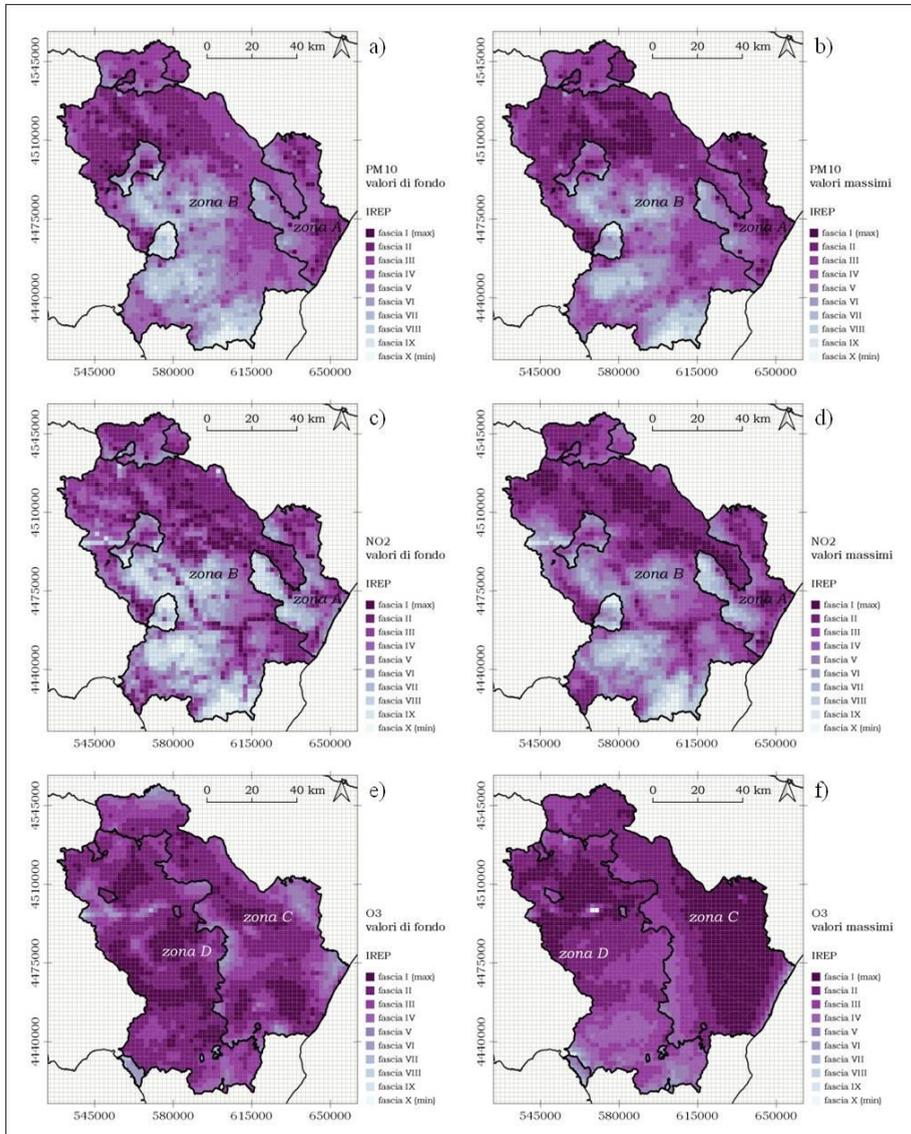


Figura 12.3.7. Mappe delle fasce dell'I<sub>REP</sub> relativo alle zone A e B e alle zone C e D.

a) rappresentatività all'esposizione dei valori di fondo di PM<sub>10</sub>; b) rappresentatività all'esposizione dei valori massimi di PM<sub>10</sub>; c) rappresentatività all'esposizione dei valori di fondo di NO<sub>2</sub>; d) rappresentatività all'esposizione dei valori massimi di NO<sub>2</sub>; e) rappresentatività all'esposizione dei valori di fondo di O<sub>3</sub>; f) rappresentatività all'esposizione dei valori massimi di O<sub>3</sub>.

Alle fasce sono state, inoltre, assegnate delle classi di giudizio secondo la Tabella 12.3.1, sia ai fini della

valutazione delle stazioni della rete di qualità dell'aria, sia ai fini della individuazione di nuove stazioni.

FASCIA I <sub>REP</sub>	CLASSI di GIUDIZIO
I	OTTIMO
II e III	BUONO
IV e V	DISCRETO
VI e VII	SUFFICIENTE
VIII - IX e X	INSUFFICIENTE

Figura 12.3.1. Corrispondenza tra fascia I<sub>REP</sub> e classi di giudizio

## Discussione

Gli output del modello FARM di Figura 12.3.3, confermano le tipiche distribuzioni dei valori di fondo e dei valori massimi del PM<sub>10</sub>, mostrando una bassa variabilità dei valori di fondo (*cf.* Figura 12.3.3 a) - la mappa assume un colore più uniforme e nei valori bassi della scala di concentrazione) ed una maggiore variabilità dei valori massimi (*cf.* Figura 12.3.3 b) - la mappa assume un colore meno uniforme e nei valori medio - alti della scala di concentrazione). Le stesse caratteristiche nella distribuzione delle concentrazioni si riscontrano anche negli output relativi al NO<sub>2</sub> ed O<sub>3</sub>.

La rappresentatività mostrata con le mappe di I<sub>R</sub> di Figura 12.3.4, evidenzia un comportamento differenziato a seconda dell'inquinante preso in considerazione. Tale comportamento risulta in linea con evidenze già presenti in letteratura (Vitali et al., 2013; Busillo et al., 2014). In particolare si evidenzia quanto segue.

L'indice relativo al PM<sub>10</sub> (*cf.* Figura 12.3.4 a) e 12.3.4 b) ) mostra una rappresentatività pressappoco simile tra i valori massimi ed i valori di concentrazione minimi giornalieri. L'estensione della rappresentatività, con i valori medio - alti della scala dell'indice (> di 0,7) si spinge anche oltre l'intorno della cella di riferimento.

L'indice relativo al NO<sub>2</sub> (*cf.* Figura 12.3.4 c) e 12.3.4 d)) evidenzia una rappresentatività leggermente più marcata

nei valori minimi rispetto ai valori di concentrazione massimi giornalieri. In ambedue i casi, comunque, l'indice conserva valori alti della scala dell'indice (> di 0,8) quasi esclusivamente nell'intorno della cella di riferimento.

L'indice relativo all'O<sub>3</sub> (*cf.* Figura 12.3.4 e) e 12.3.4 f)) mostra una rappresentatività molto diffusa nei valori medio - alti della scala dell'indice (> di 0,7) in riferimento ai valori di concentrazione minimi giornalieri, ed altrettanto diffusa nei valori altissimi della scala dell'indice (> di 0,9) in riferimento ai valori di concentrazione massimi giornalieri. Nel complesso l'ozono mostra, anche nei valori più alti della scala dell'indice, una rappresentatività più diffusa sia rispetto al PM<sub>10</sub>, sia al NO<sub>2</sub>, che si estende ben oltre l'intorno della cella di riferimento.

Le considerazioni fin qui espresse sulle mappe dell'I<sub>R</sub>, ed i relativi valori numerici, tengono conto della soglia di probabilità del 90% presente in letteratura (Nappo et al., 1982); in questo lavoro, tuttavia, assume poco significato un valore soglia dell'indice, in considerazione del fatto che lo scopo ultimo del lavoro non è quello di definire la *rappresentatività* o *non rappresentatività* di un sito di misura, bensì quello di definire una classificazione del territorio in fasce di rappresentatività espresse dall'I<sub>REP</sub> (strettamente connesso all'I<sub>R</sub>, attraverso la (2)).

Dall'analisi delle mappe dell'I<sub>REP</sub> di Figura 12.3.7, che rappresentano gli output del metodo fin qui descritto, è possibile trarre le seguenti considerazioni. L'I<sub>REP</sub> relativo alla massima esposizione, ovvero generato dai valori massimi delle concentrazioni degli inquinanti presi in considerazione (cfr. Figura 7 b), 7 d) e 7 f)) mostra la tendenza ad una clusterizzazione omogenea e con areali più estesi rispetto alla maggiore frammentazione dell'I<sub>REP</sub> relativo ai valori di fondo (cfr. Figura 7 a), 7 c) e 7 e)).

L'indice relativo al PM<sub>10</sub> ed NO<sub>2</sub> mostra uno spettro di valori più ampi rispetto all'indice relativo all'ozono. I primi due inquinanti, infatti, caratterizzano il territorio attraverso un indice più eterogeneo; in particolare la parte di territorio centro-meridionale è caratterizzata da bassi valori dell'I<sub>REP</sub>, al netto di piccole aree con indice più alto. I valori più alti dell'indice, invece, si collocano

nell'area nord nord-est. L'ozono, invece, caratterizza il territorio attraverso un indice più omogeneo, che si attesta prevalentemente sui valori più alti della scala.

Nel complesso gli output del metodo esposto rispondono alle aspettative attese, tenuto conto che le aree corrispondenti alle fasce dell'I<sub>REP</sub> risultano sufficientemente definite ed utili agli scopi prefissati. Il primo scopo, infatti, era la valutazione delle stazioni della rete in termini di esposizione della popolazione, sia ai valori di fondo sia alle massime esposizioni. La Figura 12.3.8 mostra la semplicità ed efficacia del metodo nel valutare la posizione di una stazione della rete di qualità dell'aria.

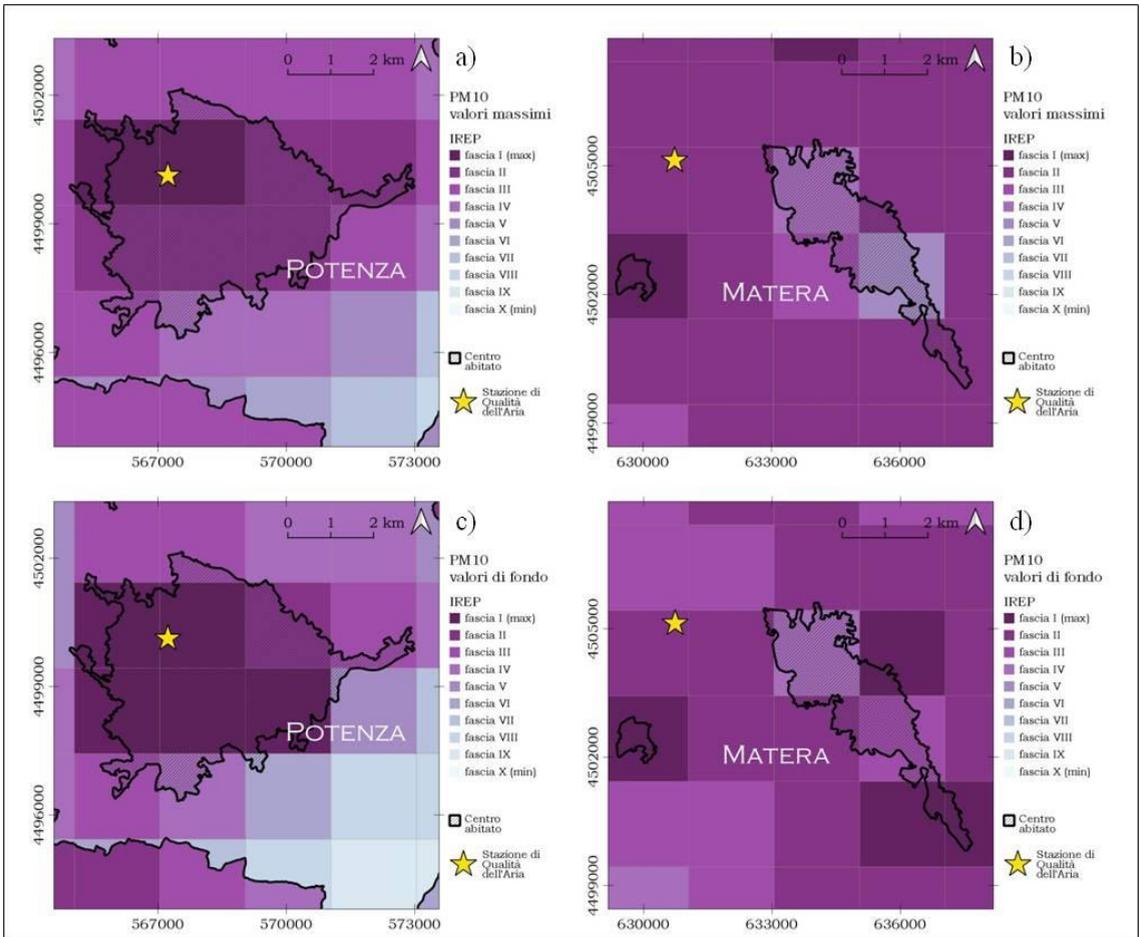


Figura 12.3.8. Valutazione di due stazioni della rete di qualità dell'aria in riferimento all'indice di rappresentatività di esposizione della popolazione relativo ai valori massimi e di fondo di PM<sub>10</sub>

La rilevazione della fascia della cella nella quale ricade la stazione, consente, attraverso la Tabella 12.3.1, di assegnare alla stazione il corrispondente giudizio relativo alla cella in essa ricadente. Nella Figura 12.3.8 si evidenzia la sovrapposizione di due stazioni della rete di qualità dell'aria (ambdue in zona A, una del tipo urbano nel centro abitato di Potenza e l'altra di tipo suburbano in prossimità del centro abitato di Matera) sulle mappe dell'indice di rappresentatività di esposizione della

popolazione relativo ai valori massimi e di fondo di PM<sub>10</sub>. Il giudizio della stazione di Potenza (cfr. Figura 12.3.8 a) e 12.3.8 c)) risulta "ottimo", sia nei valori di fondo, sia nei valori massimi di PM<sub>10</sub>, collocandosi in una cella con IREP di fascia I. La stazione di Matera (cfr. Figura 12.3.8 b) e 12.3.8 d)) ottiene un giudizio "buono", collocandosi in una cella con IREP di fascia II.

La verifica della stazione di Matera mostra l'utilità del metodo anche in riferimento al secondo scopo del presente lavoro, ovvero quello di disporre di uno strumento in grado di orientare la individuazione di nuove stazioni di qualità dell'aria. In tal caso, infatti, risulta evidente che alcune celle dell'abitato di Matera ricadono in fascia I. Risulterebbe quindi opportuno installare una nuova stazione di tipo urbano o suburbano in tali celle o dislocare la stazione esistente. L'efficacia del metodo risulta ancora più evidente quando sorge la necessità di individuare la migliore localizzazione in aree alquanto

estese del territorio. La Figura 12.3.9 (Figura 9 – Localizzazione sulla fascia Jonica di una nuova stazione rurale di fondo per l'ozono. a) fascia Jonica con rappresentatività all'esposizione dei valori di fondo di O<sub>3</sub>; b) individuazione della migliore posizione della nuova stazione) descrive la localizzazione sulla fascia Jonica di una nuova stazione rurale di fondo per l'ozono.

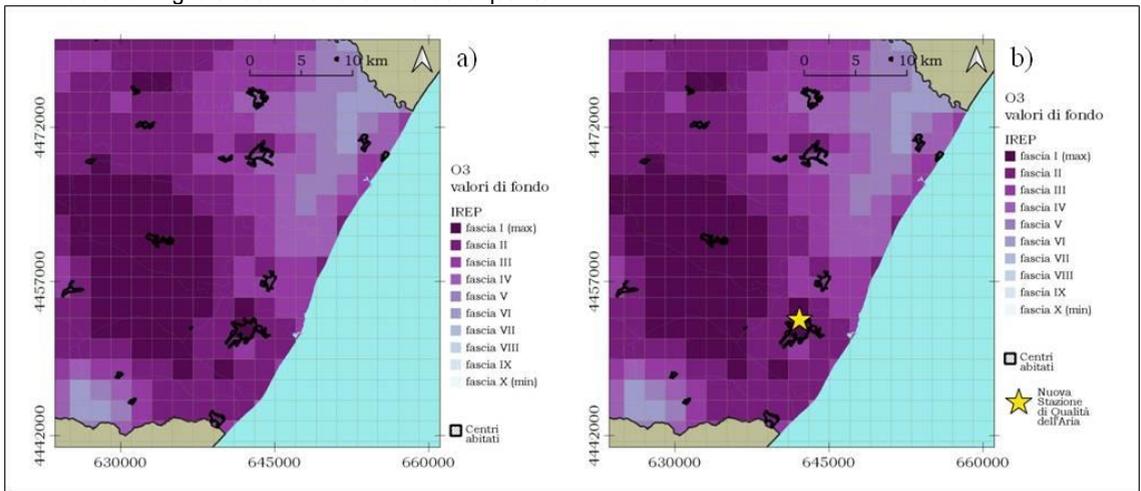


Figura 12.3.9. Localizzazione sulla fascia Jonica di una nuova stazione rurale di fondo per l'ozono. a) fascia Jonica con rappresentatività all'esposizione dei valori di fondo di O<sub>3</sub>; b) individuazione della migliore posizione della nuova stazione.

In Figura 12.3.9 a) si riporta la zona interessata con la mappa dell'I<sub>REP</sub> relativa ai valori di fondo di O<sub>3</sub>, dalla quale è possibile individuare le celle più idonee. In Figura 12.3.9 b) si riporta la stessa mappa con indicazione della localizzazione della nuova stazione, ricadente in una cella di fascia I e conseguente giudizio "ottimo".

## Conclusioni

Nel complesso il metodo, applicato in questo lavoro a scala regionale, si rivela di facile implementazione e di grande utilità, configurandosi nei suoi output finali come mappe di *suitability*, e pertanto fortemente orientati verso un sistema di supporto alle decisioni.

Appare evidente che il metodo risulti fortemente condizionato dal primo *step*, legato alla modellistica; quanto più dettagliati e puntuali sono i parametri di input del modello, tanto più precisi sono i suoi output e

conseguentemente gli indici che da essi discendono ( $I_R$  ed  $I_{REP}$ ).

Il metodo potrebbe essere testato anche a scala locale, su domini più limitati e con maggior dettaglio; in questo caso il modello Lagrangiano può risultare più appropriato, anche se risulterebbe necessario integrarlo con il modello Euleriano di dispersione degli inquinanti, qui utilizzato. Ciò consentirebbe di sopperire alla mancanza, nel modello Lagrangiano, del dato emissivo di fondo che caratterizza il dominio di calcolo.

Sarebbe inoltre opportuno applicare il metodo in contesti diversi da quello di questo lavoro. La regione Basilicata, infatti, si caratterizza per una antropizzazione molto

bassa, e con centri urbani di modestissime dimensioni, anche se con un discreto fenomeno di *sprawl* urbano. L'applicazione in realtà dove è prevalente la dimensione metropolitana dei centri urbani potrebbe condurre a risultati diversi, evidenziare ulteriori pregi o limiti del metodo.

### **Ringraziamenti**

Si ringrazia la società Arianet s.r.l. per il contributo fornito nell'ambito della simulazione a scala regionale.

## Bibliografia

Busillo C., Calastrini F., Guarnieri F. (2014): La rappresentatività spaziale delle reti di monitoraggio attraverso l'analisi dei campi di concentrazione stimati dal sistema modellistico WRF-CAMx. <http://www.lamma.rete.toscana.it/>

European Commission (EC), 11.06.2008. Directive 2008/50/EC of the European Parliament and of the Council of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe (The Framework Directive). Off. J. Eur. Commun. En. Ser. L152/51.

ISPRA -<http://www.sinanet.isprambiente.it/it/sia-ispria/inventaria/disaggregazione-dellinventario-nazionale-2015/view>

ISTAT – basi territoriali e variabili censuarie: <https://www.istat.it/it/archivio/104317>

Janssen, S., Dumont, G., Fierens, F., Mensink, C. (2008). Spatial interpolation of air pollution measurements using CORINE Land Cover data. *Atmospheric Environment* 42, 4884-4903.

Janssen, S., Dumont, G., Fierens, F., Deutsch, F., Maiheu, B., Celis, D., Trimpeneers, E., Mensink, C., (2012). Land use to characterize spatial representativeness of air quality monitoring stations and its relevance for model validation. *Atmospheric Environment*. 59, 492-500.

Jenks, G.F., 1967. The data model concept in statistical mapping. *Int. Yearb. Cartogr.* 7, 186 e 190.

Kracht O., Santiago J.-L., Martin F., Piersanti A., Cremona G., Righini G., Vitali L., Delaney K., Basu B., Ghosh B., Spangl W., Brendle C., Latikka J., Kousa A., Pärjälä E., Meretoja M., Malherbe L., Letinois L., Beauchamp M., Lenartz F., Hutsemekers V., Nguyen L., Hoogerbrugge R., Eneroth K., Silvergren S., Hooyberghs H., Viaene P., Maiheu B., Janssen S., Roet D. and Gerboles M., Spatial representativeness of air quality monitoring sites - Outcomes of the FAIRMODE/AQUILA intercomparison exercise, EUR 28987 EN, Publications Office of the European Union, Luxembourg, 2017, ISBN 978-92-79-77218-4, doi:10.2760/60611, JRC108791.

Martin F., Fileni L., Palomino I., García Vivanco M., Garrido J. (2014). Analysis of the spatial representativeness of rural background monitoring stations in Spain. *Atmospheric Pollution Research*. 5. 779-788. 10.5094/APR.2014.087.

Nappo, C.J., Caneill, J.Y., Furman, R.W., Gifford, F.A., Kaimal, J.C., Kramer, M.L., Lockhart, T.J., Pendergast, M.M., Pielke, R.A., Randerson, D., Shreffler, J.H., Wyngaard, J.C., 1982. The workshop on the representativeness of meteorological-observations, June 1981, Boulder, Colorado. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 63, 761e764.

Piersanti, A., Cremona, G., Vitali, L., Righini, G., Ciancarella, L. (2013). Rappresentatività spaziale di misure di qualità dell'aria-Valutazione di un metodo di stima basato su fattori oggettivi. 10.13140/RG.2.1.1793.3923.

Piersanti, A., Ciancarella, L., Cremona, G., Righini, G., Vitali, L. (2015). Spatial representativeness of air quality monitoring stations: a grid model based approach. *Atmospheric Pollution Research*, No 6, 2015, pp. 953-960, doi: 10.1016/j.apr.2015.04.005

QGIS - <https://www.qgis.org/it/site/>

Righini G., Cappelletti A., Ciucci A., Cremona G., Piersanti A., Vitali L., Ciancarella L., (2014). GIS based assessment of the spatial representativeness of air quality monitoring stations using pollutant emissions data. *Atmospheric Environment*. 97. 121–129. 10.1016/j.atmosenv.2014.08.015.

Spangl, W., Schneider, J., Moosmann, L., Nagl, C., 2007: Representativeness and classification of air quality monitoring stations. Final Report, Umweltbundesamt Report. Umweltbundesamt, Vienna.

Vitali L., Ciancarella L., Cionni G., Cremona G., Piersanti A., Righini G. (2013): Rappresentatività spaziale di misure di qualità dell'aria. Valutazione di un metodo di stima basato sull'analisi dei campi di concentrazione simulati dal modello nazionale MINNI, Rapporto Tecnico RT/2013/3/ENEA, ENEA.

## 12.4 APPLICAZIONE DELLA TEORIA DEGLI INSIEMI SFUMATI PER LA DEFINIZIONE DELL'INDICE FEAL. STUDIO DELLA RETE REGIONALE DI QUALITÀ DELL'ARIA E DELL'ESPOSIZIONE CON MAPPE FUZZY DI ANALOGIA AMBIENTALE.

Giardina M., Buffa P., Abita A., Madonia G.

ARPA SICILIA

### RIASSUNTO

Nel 2014 l'Assessorato Regionale Territorio e Ambiente (A.R.T.A.) della regione siciliana ha approvato il "Progetto di razionalizzazione del monitoraggio della qualità dell'aria in Sicilia ed il relativo programma di valutazione" redatto da ARPA Sicilia in accordo con la "Zonizzazione e classificazione del territorio della Regione Siciliana", come definita nel 2012.

Il Progetto ed il relativo programma di valutazione (PdV) hanno avuto come obiettivo la realizzazione di una rete regionale conforme ai principi di efficienza, efficacia ed economicità previsti dal D.Lgs. 155/2010. La rete è stata progettata per essere in grado di fornire un'informazione completa sulla qualità dell'aria ai fini di un concreto ed approfondito contributo alle politiche di risanamento.

Nell'ambito di una collaborazione tra ARPA Sicilia ed il Dipartimento di Ingegneria dell'Università di Palermo, è stata condotta una ricerca che ha consentito di sviluppare una metodologia innovativa, basata sulla teoria della logica fuzzy, capace di definire mappe di affinità ambientale utili a sostenere e migliorare la progettazione di reti di monitoraggio della qualità dell'aria su scala regionale.

Le mappe sono generate utilizzando un nuovo approccio metodologico che si basa sulla valutazione di un nuovo indice di *pressione ambientale del territorio* detto Fuzzy Environmental Analogy Index (FEAI).

Nel presente lavoro vengono descritti gli aspetti computazionali ed applicativi dell'indice FEAI rispetto alla formulazione del PdV della rete regionale di qualità dell'aria della regione Sicilia.

I risultati ottenuti confermano la capacità di FEAI di effettuare analisi sulle analogie che esistono tra aree

limitrofe in termini di pressioni ed esposizioni ambientali dovute a fonti antropiche e naturali e di valutare l'efficienza della rete di monitoraggio utilizzata per monitorare la qualità dell'aria negli strati bassi della troposfera.

**Parole chiave:** qualità dell'aria, rete di monitoraggio, teoria degli insiemi sfumati, fuzzy environmental pressure index

### ABSTRACT

Today, there is more and more interest in investigating relationships of spatio-temporal variations of air pollution due to anthropic or natural sources and weather conditions, especially for contamination risks, or more generally of substances hazardous to health. Moreover, a very important strategy is to support air quality management by developing methodologies that are useful to design effective and efficient air monitoring networks on large-scale. In the framework of a cooperation between ARPA Sicilia organization and Department of Engineering, University of Palermo, research efforts have been performed to provide solutions to the above problems by developing environmental pressure maps based on new and innovative index, called fuzzy environmental pressure index (FEAI). FEAI model, based on fuzzy theory, is deduced by combining two indexes: meteorological pressure indicator (IPM) that allows, for the examined territory, to investigate analogies relevant to meteorological conditions, and anthropic pressure indicator (IPA) which takes into account the impacts related to anthropogenic or natural sources at regional scale. Finally, FEAI applications for Sicily region, Italy, are described. Analyses of results allow to confirm the

robustness of FEAI index approach in modelling anthropic environmental pressures at regional scale.

**Keywords:** air quality, monitoring network, fuzzy set theory, fuzzy environmental pressure index

## Introduzione

Tutte le attività volte a studiare le cause primarie e gli effetti dell'inquinamento atmosferico presuppongono l'utilizzo di una rete di monitoraggio della qualità dell'aria realizzata secondo standard ottimali per la valutazione dell'esposizione della popolazione e della vegetazione agli inquinanti, con riferimento ai limiti imposti dalla norma vigente.

Nell'ambito di una collaborazione tra ARPA Sicilia ed il Dipartimento di Ingegneria dell'Università di Palermo, è stata condotta una ricerca che ha consentito di sviluppare una metodologia innovativa, basata sulla teoria della logica fuzzy, capace di definire mappe di affinità ambientale utili a migliorare la progettazione di reti di monitoraggio della qualità dell'aria su scala regionale, nonché di incrementare la capacità interpretativa delle pressioni ambientali causa di inquinamento di aree geografiche limitrofe.

L'approccio metodologico messo a punto è basato sulla costruzione di regole fuzzy in modo simile a quanto riportato in (Giardina et al., 2014 e 2019). Questa struttura modellistica permette di definire le regole interpretative delle variabili in studio ricorrendo alla teoria degli insiemi sfumati applicata attraverso le variabili linguistiche fuzzy che sacrificano la precisione a favore del significato.

In particolare, è stato creato un nuovo indice chiamato Fuzzy Environmental Analogy Index (FEAI) dedotto combinando due indici: l'indicatore di pressione meteorologica (IPM) e l'indicatore di pressione antropica (IPA).

IPM permette di studiare, per il territorio esaminato, le analogie meteorologiche (in particolare anemologiche) tra aree geografiche confinanti, nonché di confrontarne il funzionamento fluidodinamico nello strato basso della troposfera; IPA mette in relazione le analogie orografiche del territorio e gli impatti legati a fonti antropiche o naturali su scala regionale, verificando la somiglianza in termini di effetti ambientali su zone limitate appartenenti alle medesime aree funzionali (agglomerati urbani, agglomerati industriali, altre zone).

Per testare il modello e le regole fuzzy utilizzati per il calcolo degli indici sopra descritti, sono stati impiegati processi di ragionamento basati sull'opinione degli esperti insieme alle deduzioni legate alle esperienze tecniche del Sistema nazionale per la protezione dell'ambiente. Inoltre, sono state eseguite analisi di sensibilità variando la distribuzione delle funzioni fuzzy delle variabili esaminate per verificare la congruenza e convergenza dei risultati.

Il modello FEAI è stato applicato per l'analisi della rete della regione siciliana e i risultati ottenuti confermano la capacità di tale indice di indagare analogie tra aree limitrofe, in termini di pressioni ambientali connesse a fonti antropiche e naturali. Inoltre, il suo utilizzo ha consentito di mettere in evidenza nuovi aspetti di funzionamento della rete e confermarne altri che già da tempo si erano manifestati, come evidenze empiriche, nelle attività di monitoraggio della qualità dell'aria.

In questo contesto, questo documento è dedicato ad illustrare il nuovo approccio modellistico e i principali risultati nell'ambito delle attività di ricerca sopra descritte.

## La logica fuzzy

La teoria della logica fuzzy (sfumata) è stata introdotta da Zadeh per affrontare problemi in cui i fenomeni sono imprecisi e vaghi o per modellare esperienze definite da espressioni linguistiche (Zadeh, 1975; 1992).

La teoria degli insiemi di tipo classico (aristotelico) si basa su una logica bivalente in cui un numero, oppure un oggetto, è un membro di un insieme, oppure no (l'enunciato "l'oggetto appartiene all'insieme" può assumere il valore vero, oppure falso).

Al contrario, la logica sfumata attribuisce all'oggetto un grado di verità di appartenenza all'insieme che può assumere un valore compreso tra 0 ed 1, estremi 0 ed 1 compresi. Quindi, l'insiemistica basata sull'approccio classico diventa un sottoinsieme dell'insiemistica fuzzy e la teoria fuzzy estende la logica tradizionale a due valori (vero e falso, oppure 0 e 1) ad un "continuo di sfumature" di verità.

Definito con  $X$  un set di numeri, o oggetti (set Fuzzy), chiamato universo del discorso, i cui elementi sono indicati da  $x$ , un sottoinsieme fuzzy  $A$  in  $X$  è caratterizzato da una funzione di appartenenza  $\mu_A(x)$  che associa ciascun elemento  $x$  in  $X$  ad un numero reale, nell'intervallo  $[0,1]$ . La funzione  $\mu_A(x)$  rappresenta il grado di appartenenza di  $x$  in  $A$ .

I numeri fuzzy più comunemente usati sono impostati come relazioni fuzzy triangolari o trapezoidali.

Per i numeri sfumati triangolari,  $x_2$  restituisce il valore massimo di  $\mu_A(x)$ , cioè  $\mu_A(x_2) = 1$ , rendendolo il valore più probabile, mentre  $x_1$  e  $x_3$  sono i limiti inferiore e superiore dell'area di variabilità dei dati valutati.

Per i numeri fuzzy trapezoidali, i valori più probabili di  $\mu_A(x)$  rientrano nell'intervallo  $[x_2; x_3]$ , mentre  $x_1$  e  $x_4$  sono i limiti inferiore e superiore di variabilità dei dati.

Per brevità, i numeri sfumati triangolari e trapezoidali sono indicati con  $(x_1, x_2, x_3)$  e  $(x_1, x_2, x_3, x_4)$ , rispettivamente.

Sugli insiemi fuzzy è possibile applicare tutte le operazioni fondamentali degli insiemi classici quali unione, intersezione e negazione.

Zadeh (1975) suggerisce l'uso dell'operatore minimo per l'intersezione e dell'operatore massimo per l'unione, come descritto di seguito.

Detti  $A$  e  $B$  due insiemi fuzzy dello stesso universo  $X$ , con funzioni di appartenenza  $\mu_A$  e  $\mu_B$ , l'intersezione fuzzy e l'unione fuzzy sono definite attraverso le seguenti operazioni (Hong e Leeb, 1996):

$$A \cap B \equiv \{ \langle x, \mu_{A \cap B}(x) \rangle \mid x \in X \text{ and } \mu_{A \cap B}(x) = \min[\mu_A(x), \mu_B(x)] \} \quad [1]$$

$$A \cup B \equiv \{ \langle x, \mu_{A \cup B}(x) \rangle \mid x \in X \text{ and } \mu_{A \cup B}(x) = \max[\mu_A(x), \mu_B(x)] \} \quad [2]$$

La combinazione di questi due operatori è stata

impiegata nelle regole fuzzy *if-then* (operazione di inferenza fuzzy) utilizzate per valutare i nuovi indici messi a punto nell'ambito della ricerca, come descritto nel paragrafo seguente.

### Il sistema inferenziale Fuzzy

Come è noto, l'uso più importante della teoria degli insiemi Fuzzy è costituito dalla definizione di sistemi di regole applicabili con successo ad una vasta gamma di problemi in cui sono presenti incertezze ed imprecisioni in modi differenti (Pedrycz, 1996; Zimmermann, 2001).

Spesso non si ragiona con calcoli e numeri, ma con pensieri logici, espressioni linguistiche e incertezza non-probabilistica (intrinseca al fenomeno, non al suo verificarsi). In questo ambito, i modelli fuzzy, che sono robusti (tolleranti al rumore), consentono di gestire informazioni incerte attraverso regole logiche multivalenti.

Un tale strumento può essere utile in settori quali la modellistica ambientale che spesso comporta l'elaborazione di indici e l'analisi di un numero significativo di dati che sono oggetto d'imprecisione.

In genere, le operazioni funzionali nei sistemi basati su regole fuzzy procedono secondo i seguenti passaggi:

- processo di fuzzificazione;
- costruzione del sistema di inferenza fuzzy (FIS);
- aggregazione degli output;
- processo di defuzzificazione.

La Figura 12.4.1 riporta la struttura di un tipico sistema Fuzzy.

La procedura di fuzzificazione ha lo scopo di trasformare il valore reale del dato da elaborare in sets fuzzy, attraverso la definizione delle funzioni di appartenenza, come descritto in precedenza.

Il processo, denominato FIS, serve ad elaborare i fuzzy sets di input e produrre i fuzzy sets di output tramite la costruzione di regole fuzzy del tipo *if-then*.

In altre parole, l'inferenza fuzzy è il metodo che interpreta i valori del vettore di input e, sfruttando gli operatori fuzzy, quali ad esempio l'unione e l'intersezione (cfr. Eq.s [1] e [2]), assegna i valori del vettore di output.

Se consideriamo un set di input fuzzy definito nell'universo del discorso  $X \subset R_n$ , ed un set di output fuzzy definito nell'universo del discorso  $Y \subset R_m$ , attraverso i principi base della logica fuzzy (Zadeh, 1992), le regole fuzzy *if-then* possono essere determinate come segue:

*If*  $x_1$  is  $A_{j1}$  and ... and  $x_n$  is  $A_{jn}$  *then*  $y$  is  $B_{ij}(w_j)$  [3]

dove  $A_{ij}$  e  $B_j$  sono le variabili linguistiche definite negli insiemi fuzzy  $X$  e  $Y$ , citate come universodi input e di output del discorso.

La parte *if* della regola " $x_n$  is  $A_{jn}$ " è chiamata *premessa* o *antecedente*, mentre la parte *then* della regola " $y$  is  $B_j$ " è chiamata *conseguente*.

Il parametro  $w_j$  nell'equazione, indica il grado d'importanza della regola nell'intervallo  $[0, 1]$ . Spesso questo fattore viene utilizzato per descrivere l'incertezza della valutazione della regola da parte di un esperto.

Esistono diversi metodi per combinare le regole ed ottenere un unico insieme fuzzy di output, tra questi, in letteratura, è molto utilizzato il metodo Min-Max (Zadeh,1992).

In Figura 12.4.2 viene mostrato un esempio di applicazione di inferenza Min-Max.

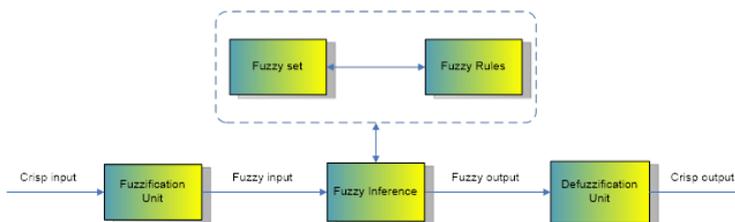


Figura 12.4.1. Struttura di un tipico sistema Fuzzy

La procedura Min-Max inizia con la selezione del valore minimo delle funzioni di appartenenza (intersezione) degli antecedenti *if* (minimo tra  $\mu(x_1)$  e  $\mu(x_2)$ ) per ciascuna premessa  $A_{ij}$  come riportato in Figura 12.4.2).

La funzione di appartenenza degli output è ottenuta dall'aggregazione (unione) degli insiemi fuzzy conseguenti, dopo aver ridotto il grado di appartenenza a quello minimo degli antecedenti e aver definito l'insieme dei minimi (cut-off di  $B_j$  in Figura 12.4.2).

Con riferimento alla Figura 12.4.2, se la regola Eq. [3] viene utilizzata con l'attribuzione di un peso ( $w_j$ ), le funzioni di appartenenza dei conseguenti, *then*, vengono modificate come segue:

$$\mu_j^*(x) = \max \{w_j \mu_j(x): j = 1, 2, \dots, m\} \quad [4]$$

dove  $w_j$  è il peso della conseguenza e  $m$  il numero di variabili linguistiche.

In Figura 12.4.2 il risultato di conseguente fuzzy senza peso viene rappresentato con area grigia, mentre il risultato di conseguente fuzzy con peso, (cioè attraverso l'uso dell'Eq. [4]), con area nera.

Il passo finale è il processo di *defuzzificazione* che consente di trasformare il set fuzzy di output (cioè il risultato dell'operazione di aggregazione fuzzy), in un singolo valore reale (crisp).

Tra i metodi proposti in letteratura il centro di gravità (COG\*), utilizzato nel presente lavoro, è ampiamente adottato per il suo semplice significato geometrico (Hellendoorn e Thomas, 1993; Ramli e Mohamad, 2009):

$$COG^* = \frac{\int x \mu^*(x) dx}{\int \mu^*(x) dx} \quad [5]$$

dove la funzione di appartenenza  $\mu^*(x)$  è valutata con l'Eq[4].

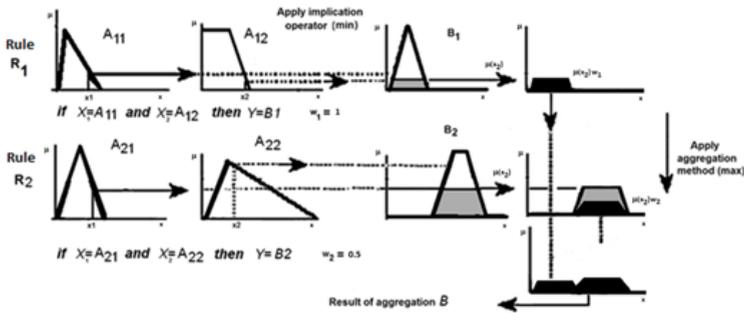


Figura 12.4.2. Esempio di processo inferenziale Fuzzy Min-Max

**Processo di fuzzificazione per la valutazione degli indici IPM e IPA**

*Indice di Pressione Meteorologica (IPM)*

L'indice IPM è stato sviluppato utilizzando le seguenti variabili per la definizione dei set di input fuzzy e le relative funzioni di appartenenza:

- velocità del vento (WS) [m/s];
- frequenza del vento (WF), espressa in percentuale [%].

Le classificazioni fuzzy sono basate sulle distribuzioni linguistiche riportate nelle Tabelle 1 e 2 e rappresentate in forma grafica nelle figure 3 e 4.

Tabella 12.4.1. Regole linguistiche per la velocità del vento

Linguistic value of WS parameter [m/s]	Fuzzy linguistic number (x1; x2; x3; x4); (x1; x2; x3)	Weight W <sub>WS</sub>
Very Low (SVL)	(0; 1.5; 3.3)	1/5 = 0.2
Low (SL)	(1.5; 3.3; 6)	2/5 = 0.4
Medium (SM)	(3.3; 5.5; 7; 10)	3/5 = 0.6
High (SH)	(6; 9.5; 11; 14)	4/5 = 0.8
Very High (SVH)	(10; 14; 100; 100)	1

Tabella 12.4.2. Regole linguistiche per la frequenza del vento

Linguistic value of WF parameter [%]	Fuzzy linguistic number ( $X_1; X_2; X_3; X_4$ ): ( $X_1; X_2; X_3$ )	weight $W_{WF}$
Very Low (FVL)	(0; 0; 5; 10)	$1/5 = 0.2$
Low (FL)	(5; 10; 15)	$2/5 = 0.4$
Medium (FM)	(10; 15; 20)	$3/5 = 0.6$
High (FH)	(15; 20; 25)	$4/5 = 0.8$
Very High (FVH)	(20; 25; 100; 100)	1

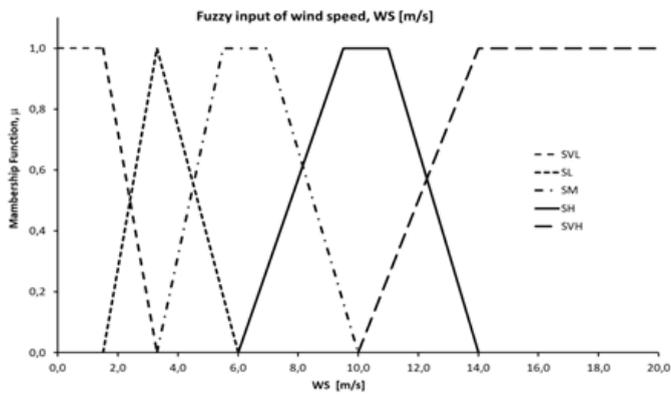


Figura 12.4.3. Rappresentazione delle variabili fuzzy relative a WS

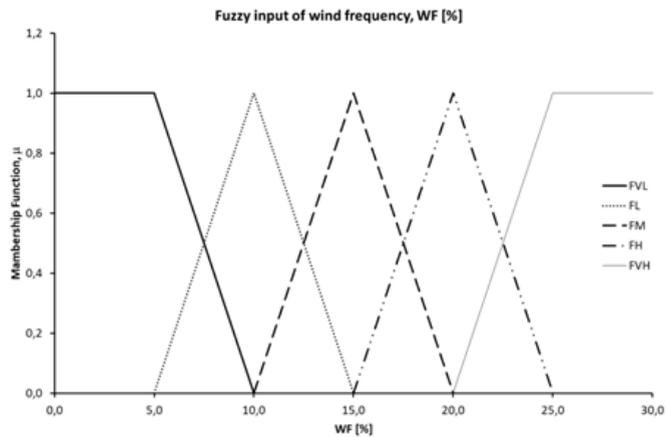


Figura 12.4.4. Rappresentazione delle variabili fuzzy relative a WF

La procedura Min-Max inizia con la selezione del valore

Si noti che la scala di Beaufort (Barua, 2005), riguardante le condizioni osservate delle velocità del vento in mare o

sulla terra, è stata usata per definire le rappresentazioni linguistiche della variabile WS.

Gli output fuzzy dell'indice IPM sono riportati in Tabella 12.4.3 (Figura 12.4.5).

La Figura 12.4.5 mostra le distribuzioni delle funzioni di appartenenza dell'IPM, definite considerando le combinazioni delle due variabili indipendenti velocità del vento (WS) [m/s] e frequenza del vento (WF) [%].

I dati di velocità e frequenza del vento, utilizzati per i calcoli su un dominio costituito da una griglia regionale organizzata con maglie (celle) di risoluzione 3x3 km, sono stati ottenuti con il codice CALMET (California Meteorological Model).

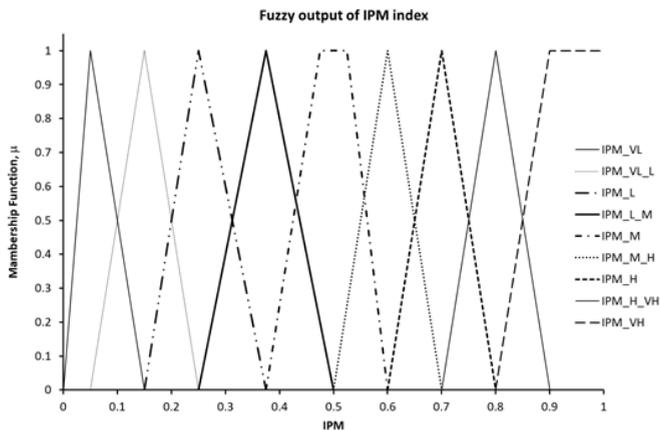


Figura 12.4.5. Rappresentazione delle variabili fuzzy dell'indice IPM

CALMET è un modello meteorologico diagnostico che, a partire da dati osservati (al suolo e di profilo verticale) e dati geofisici, produce campi orari tridimensionali di vento, insieme ad altre grandezze meteorologiche (Scirè et al., 1999). L'elaborazione fuzzy ha riguardato i primi tre strati verticali che, nelle simulazioni CALMET, schematizzano le condizioni atmosferiche a 10, 20, 40 m in quota.

#### Indice di Pressione Antropica (IPA)

Per il calcolo dell'indice IPA, sono stati utilizzati i seguenti parametri come set di input Fuzzy:

- indice di complessità orografica (ICO);
- portata dell'inquinante emessa da ciascuna sorgente (media annuale), normalizzata rispetto al valore massimo presente all'interno dell'area geografica di interesse (P);
- distanza della cella generica dalla cella in cui è ubicata la sorgente di emissione (D).

Le variabili linguistiche Fuzzy utilizzate per la definizione dei parametri ICO, P e D sono riportate nelle tabelle da 4 a 6, mentre quelle per l'indice IPA in Tabella 12.4.7.

Tabella 12.4.3. Variabili linguistiche per ICO

Linguistic value of ICO index [m]	Fuzzy linguistic number ( $x_1; x_2; x_3; x_4$ ); ( $x_1; x_2; x_3$ )	weight $W_{ICO}$
Extremely complex (EHC)	(200; 270; 620; 620)	1/5 = 0.2
High complexity (HC)	(130; 200; 270)	2/5 = 0.4
Medium complexity (MC)	(70; 120; 150; 200)	3/5 = 0.6
Low complexity (LC)	(15; 70; 130)	4/5 = 0.8
Very Low complexity (VLC)	(0; 15; 70)	1

Tabella 12.4.4. Variabili linguistiche per P

Linguistic value of P parameter [-]	Fuzzy linguistic number (x <sub>1</sub> ; x <sub>2</sub> ; x <sub>3</sub> ; x <sub>4</sub> ); (x <sub>1</sub> ; x <sub>2</sub> ; x <sub>3</sub> )	weight W <sub>P</sub>
Very Low (PVL)	(0; 0.166; 0.333)	1/5 = 0.2
Low (PL)	(0.166; 0.333; 0.5)	2/5 = 0.4
Medium (PM)	(0.333; 0.5; 0.666)	3/5 = 0.6
High (PH)	(0.5; 0.666; 0.833)	4/5 = 0.8
Very High (PVH)	(0.666; 0.833; 1; 1)	1

Tabella 12.4.5. Variabili linguistiche per D

Linguistic value of D parameter [km]	Fuzzy linguistic number (x <sub>1</sub> ; x <sub>2</sub> ; x <sub>3</sub> ; x <sub>4</sub> ); (x <sub>1</sub> ; x <sub>2</sub> ; x <sub>3</sub> )	weight W <sub>D</sub>
Very High (DVH)	(9; 10; 12; 12)	1/9 = 0.111
Between High and Very High (DH_VH)	(8; 9; 10)	2/9 = 0.222
High (DH)	(7; 8; 9)	3/9 = 0.333
Between Medium and High (DM_H)	(6; 7; 8)	4/9 = 0.444
Medium (DM)	(5.25; 6; 7)	5/9 = 0.556
Between Low and Medium (DL_M)	(4.5; 5.25; 6)	6/9 = 0.667
Low (DL)	(3.75; 4.5; 5.25)	7/9 = 0.778
Between Very low and Low (DVL_L)	(3.25; 3.75; 4.5)	8/9 = 0.889
Very Low (DVL)	(0; 3; 3.25; 3.75)	1

Tabella 12.4.6. Variabili linguistiche per IPA

Linguistic value of IPA [-]	Fuzzy linguistic number (x <sub>1</sub> ; x <sub>2</sub> ; x <sub>3</sub> ; x <sub>4</sub> ); (x <sub>1</sub> ; x <sub>2</sub> ; x <sub>3</sub> )	weight W <sub>IPA</sub>
Very Low (API_VL)	(0; 0.1; 0.2)	1/9 = 0.111
Between Very low and Low (API_VL_L)	(0.1; 0.2; 0.3)	2/9 = 0.222
Low (API_L)	(0.2; 0.3; 0.4)	3/9 = 0.333
Between Low and Medium (API_L_M)	(0.3; 0.4; 0.5)	4/9 = 0.444
Medium (API_M)	(0.4; 0.475; 0.525; 0.6)	5/9 = 0.556
Between Medium and High (API_M_H)	(0.5; 0.6; 0.7)	6/9 = 0.667
High (API_H)	(0.6; 0.7; 0.8)	7/9 = 0.778
Between High and Very High (API_H_VH)	(0.7; 0.8; 0.9)	8/9 = 0.889
Very High (API_VH)	(0.8; 0.9; 1; 1)	1

L'indice ICO è calcolato come media delle differenze tra l'altezza geodetica della cella C[i,j] e quella di ciascuna delle otto celle confinanti (Figura 12.4.6).

Queste elaborazioni vengono eseguite utilizzando un algoritmo, sviluppato nel linguaggio R-CRAN, che consente di elaborare i dati delle mappe topografiche USGS.

Le portate d'inquinante fanno riferimento ai dati emissivi georeferenziati riportati nell'Inventario delle Emissioni (ARPA, 2012). La normalizzazione dei dati emissivi ha facilitato la classificazione dell'intensità delle emissioni che, quindi, varia nell'intervallo [0, 1] (0 nessuna emissione, 1 emissione massima).

L'indice ICO è stato valutato con la seguente relazione:

$$ICO_{i,j} = \frac{\sum_{n=i-1}^{i+1} \sum_{m=j-1}^{j+1} |h_{i,j} - h_{n,m}|}{8} \quad i=2,r-1; j=2,c-1 \quad [6]$$

dove:

- $\overline{h_{i,j}}$  è l'altezza media della generica cella C[i, j] (Figura 12.4.6);
- $\overline{h_{n,m}}$  è l'altezza media della cella confinante;
- r è il numero di celle che compongono il dominio lungo la coordinata x;
- c è il numero di celle che compongono il dominio lungo la coordinata y.

I dati di input, necessari per il calcolo, sono stati ottenuti a partire da file GeoTIFF elaborati tramite il preprocessore Terrel, e relativi alla missione topografica radar Shuttle (SRTM). Inoltre, per aumentare la risoluzione delle linee di costa, è stato utilizzato il file

GSHHS\_F.B (Global Self-consistent Hierarchical High-resolution Shorelines).

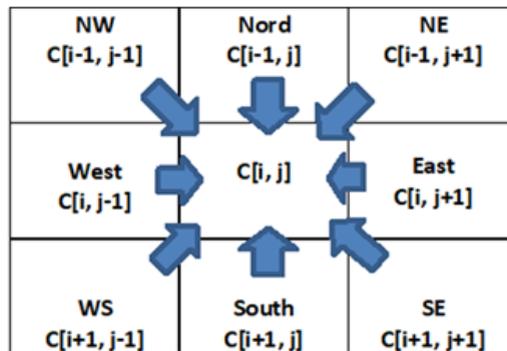


Figura 12.4.6 - Schematizzazione della cella  $C[i, j]$  del dominio di calcolo e celle confinanti utilizzate per l'elaborazione degli indici IPM  $[i, j]$  e ICO  $[i, j]$

In Figura 12.4.7 viene mostrata la rappresentazione cartografica, in falsi colori, dell'indice ICO, mentre la Figura 12.4.8 mostra la stessa mappa ottenuta con QGIS per evidenziare le differenze orografiche tra celle confinanti.

Il confronto tra la mappa dell'indice ICO, riportata in Figura 12.4.7 e la mappa topografica, riportata in Figura 12.4.8, consente di verificare la corrispondenza tra aree caratterizzate da più elevata variazione di quota.

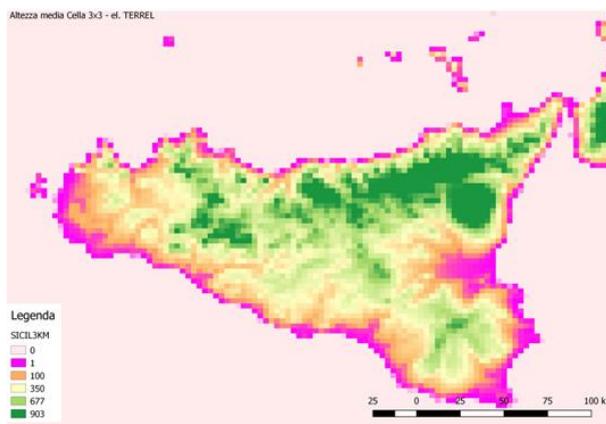


Figura 12.4.7. Cartografia, in falsi colori, dell'indice ICO. Altezze in metri.

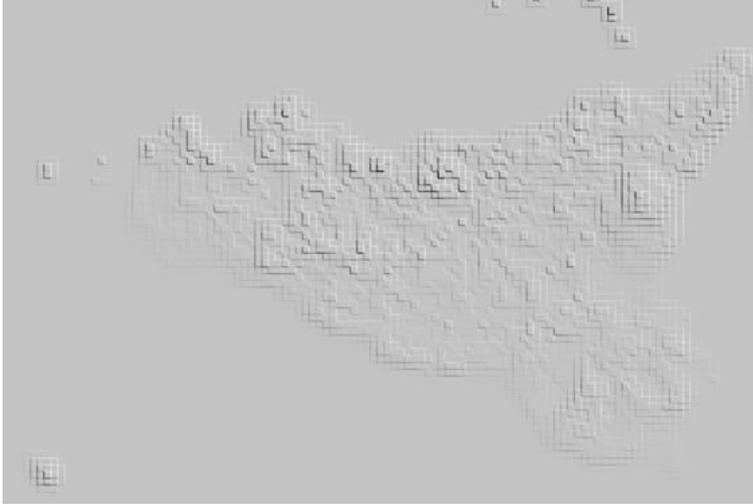


Figura 12.4.8. Mappa dell'indice ICO ottenuta tramite elaborazioni QGIS.

### Costruzione del sistema FIS degli indici IPM e IPA

Il metodo per la costruzione del FIS si basa sulla metodologia proposta in (Giardina et al., 2014). Ogni regola Fuzzy viene determinata tenendo conto

dell'importanza relativa,  $R$ , delle variabili Fuzzy di input, riportate nelle tabelle 8 e 9, e dei pesi,  $w_j$ , attribuiti alle variabili linguistiche, come riportato nelle tabelle 1 ÷ 7.

Tabella 12.4.7. Importanza relativa attribuita agli input per le regole FIS dell'indice IPM

Relative importance	Fuzzy variable	Value of Relative importance, 1° layer	Value of Relative importance, 2° and 3° layer
$R_{WS}$	wind speed	0.5	0.4
$R_{WF}$	wind frequency	0.5	0.6

Tabella 12.4.8. Importanza relativa attribuita agli input per le regole FIS dell'indice IPA

Relative importance	Fuzzy variable	Value of Relative importance
$R_{ICO}$	Orography complex index	0.375
$R_P$	normalised pollutant mass flow rates	0.375
$R_D$	distance between cells	0.275

I pesi  $w_j$  sono ottenuti assumendo relazioni lineari tra le distribuzioni linguistiche.

Di seguito si riportano due esempi di procedura di definizione di regole Fuzzy per l'indice IPM.

Prendiamo in esame i sets Fuzzy di input velocità del vento WS e frequenza del vento WF (Tab.s 2 e 3), i pertinenti pesi  $W_{WS}$  e  $W_{WF}$  e gli insiemi Fuzzy di output dell'indice IPM con i pesi  $W_{IPM}$  riportati in Tab. 3.

Il termine linguistico dell'output di IPM viene definito partendo dal calcolo del peso  $W_{IPM}$  utilizzando la seguente relazione:

$$W_{IPM} = R_{WS} W_{WS} + R_{WF} W_{WF} \quad [7]$$

essendo  $R_{WS} = 0.4$  e  $R_{WF} = 0.6$  (cfr. Tab. 9); e  $W_{WS}$  e  $W_{WF}$ , come già detto, i pesi riportati nelle Tab.s 1 e 2.

Sulla base della relazione Eq. [7], è stato possibile identificare, per esempio, le seguenti regole *if-based*:

**Rule 1:** *If* the wind speed (WS) is **Very Low** (SVL with  $W_{WS} = 0.2$ ) **and** wind frequency (WF) is **Low** (FL with  $W_{WF} = 0.4$ ) **then** the consequent part is obtained using Eq. [5], namely  $W_{IPM} = 0.4 \times 0.2 + 0.6 \times 0.4 = 0.32$ . This number is placed between  $W_{IPM} = 0.222$  of IPM as *Between Very Low and Low (IPM\_VL\_L)* and  $W_{IPM} = 0.333$  of IPM as *Low (MPI\_L)*; by using minimum condition the result is as follows: **IPM is Between Very Low\_Low (IPM\_VL\_L) with  $W_{IPM}=0.32$** ;

**Rule 2:** *If* the wind speed (WS) is **Very High** (SVH with  $W_{WS} = 1.0$ ) **and** wind frequency (WF) is **Very Low** (FVL with  $W_{WF} = 0.2$ ), **then** the consequent part is obtained using Eq. [5], namely  $W_{IPM} = 0.4 \times 1.0 + 0.6 \times 0.2 = 0.52$ . This number is placed between  $W_{IPM} = 0.444$  of IPM as *Between Low and Medium (IPM\_L\_M)* and  $W_{IPM} = 0.556$  of IPM as *Medium (IPM\_M)*; by using minimum condition the result is as follows: **IPM is Between Low and Medium (IPM\_L\_M) with  $W_{IPM}=0.52$** .

Utilizzando l'approccio descritto sopra, sono state sviluppate 25 regole per IPM e 225 per IPA.

Il processo di aggregazione, in base al quale gli insiemi fuzzy di output di ogni regola sono combinati in un

singolo set fuzzy, è stato eseguito utilizzando la procedura Min-Max descritta in precedenza.

La fase di defuzzificazione è stata eseguita utilizzando la relazione riportata nell'Eq [5] per il calcolo di COG\*.

Va notato che l'importanza relativa, R, delle variabili Fuzzy di input del primo strato atmosferico assegna lo stesso peso alle variabili WS e WF (Tab. 8), mentre, per il secondo e il terzo strato viene attribuito un peso leggermente più elevato alla variabile WF.

Ciò viene fatto per tenere in considerazione che l'attrito della superficie terrestre ha un impatto sempre meno importante sui valori della velocità del vento negli strati superiori al primo, quindi, la differenza dei valori della velocità del vento tra celle confinanti diventa meno significativa. Di contro la frequenza del vento diventa il parametro che meglio rappresenta scambi reciproci tra celle.

### Calcolo degli indici IPA e IPM

Per il calcolo degli indici IPA e IPM, l'algoritmo utilizza i seguenti pacchetti software:

- modello di inferenza regole fuzzy Mamdani;
- COG\*;
- t-norm: min;
- s-norm: max;
- funzione di implicazione: "ZADEH"

Per l'applicazione del metodo Min-Max, la costruzione delle regole FIS ed il calcolo di COG\* è stato necessario implementare in R-CRAN nuovi pacchetti software o modificare opportunamente alcuni pacchetti utilizzati in ambiente statistico.

Inoltre, è stata modificato l'algoritmo di calcolo della funzione d'implicazione di "ZADEH" sulla base dei modelli riportati in (Giardina et al., 2014).

Nelle Figura 12.4.9-11 sono riportati i risultati IPA ottenuti per gli inquinanti  $SO_x$ ,  $NO_x$ ,  $PM_{10}$  mentre nelle Figura 12.4.12 a)-e) i risultati di IPM per gli anni dal 2010 al 2014.

Nelle mappe i layers degli indici sono stati sovrapposti su una mappa che mostra i centri urbani principali, le autostrade e le strade provinciali sul territorio siciliano.

In tutte le figure, le diverse gradazioni di azzurro individuano celle caratterizzate da valori che ricadono nelle classi dal 85° percentile in poi. Dai risultati ottenuti si può dedurre che le celle con colore più intenso sono contraddistinte da alta affinità in termini di pressioni ambientali e significativi interscambi meteorologici tra celle adiacenti.

Per le altre celle si può solo evincere che le celle presentano bassa affinità in termini di pressioni ambientali o interscambi meteorologici con le celle adiacenti.

Va sottolineato che la rappresentatività territoriale delle informazioni fornite dai due indici deve essere strettamente correlata alle aree che sono rigorosamente confinanti, dato che la costruzione del modello si basa su valutazioni che riguardano la singola cella con le celle limitrofe. Quindi, l'intensità degli interscambi meteorologici, ad esempio, nella zona di Palermo non deve essere, ovviamente, messa in relazione con quanto si verifica in altre aree regionali non confinanti. La stessa considerazione va fatta per l'indice IPA.

### Calcolo dell'indice FEAI

Come è noto l'uso di un singolo indice, derivato dall'integrazione di diversi indicatori, ha il vantaggio di fornire in modo sintetico le informazioni necessarie per monitorare/individuare condizioni complesse.

Questo compito risulta particolarmente difficile se siamo in presenza di informazioni frammentate.

Ciò potrebbe portare alla perdita di informazioni utili, o all'amplificazione delle distorsioni derivanti dai singoli indicatori.

L'uso di attribuzioni linguistiche simili per l'indice IPM e IPA ha permesso, tuttavia, di ridurre la complessità semantica e, quindi, agevolare le relative operazioni di integrazione.

La procedura per valutare l'indice FEAI si basa sulla somma degli indici IPM e IPA normalizzati utilizzando l'attribuzione di un punteggio che varia nell'intervallo [0, 10]. Tale punteggio viene assegnato sulla base della distribuzione dei percentili, così come suggerito in (OECD, 2008). Quindi, per l'attribuzione del valore alla generica cella  $C[i, j]$  del dominio di calcolo, viene utilizzata la seguente relazione:

$$IPM [i, j], \text{ or } IPA[i, j] = \begin{cases} 0 & \text{if } IPM, IPA < p^{20} & 5 & \text{if } p^{60} \leq IPM, IPA < p^{70} \\ 1 & \text{if } p^{20} \leq IPM, IPA < p^{30} & 6 & \text{if } p^{70} \leq IPM, IPA < p^{80} \\ 2 & \text{if } p^{30} \leq IPM, IPA < p^{40} & 7 & \text{if } p^{80} \leq IPM, IPA < p^{85} \\ 3 & \text{if } p^{40} \leq IPM, IPA < p^{50} & 8 & \text{if } p^{85} \leq IPM, IPA < p^{90} \\ 4 & \text{if } p^{50} \leq IPM, IPA < p^{60} & 9 & \text{if } p^{90} \leq IPM, IPA < p^{95} \\ & & 10 & \text{if } IPM, IPA \geq p^{95} \end{cases} \quad [8]$$

Il parametro  $P_i$  è l'i-esimo percentile della distribuzione degli indici IPM, o IPA.

L'indice FEAI, per ogni cella  $C[i, j]$  della griglia, viene valutato sommando gli indici IPM e IPA, normalizzati secondo l'Eq. [8]:

$$FEAI_{[i, j]} = IPM_{[i, j]} + IPA_{[i, j]} \quad [8]$$

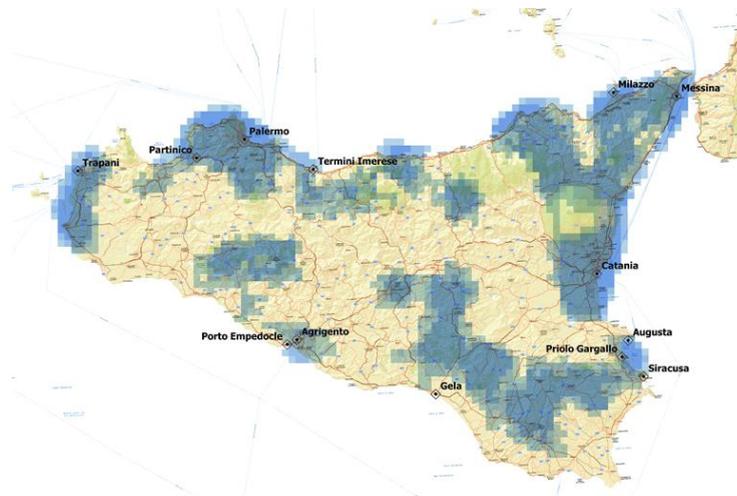
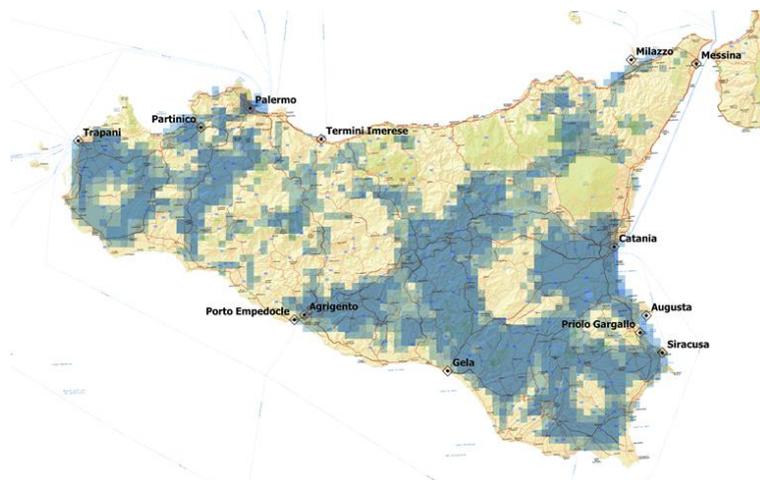


Figura 12.4.9. 85° percentile, dell'indice IPA per SOX per l'anno 2012

Figura 12.4.10. 85° percentile, dell'indice IPA per NO<sub>x</sub> per l'anno 2012

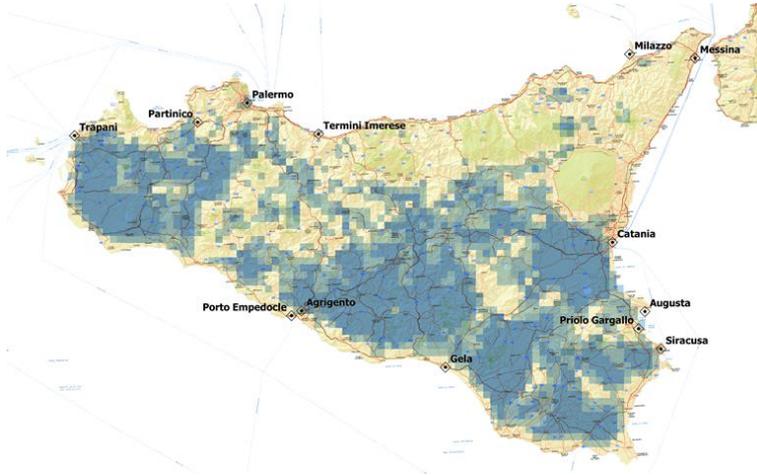


Figura 12.4.11. 85° percentile, dell'indice IPA per PM<sub>10</sub> per l'anno 2012

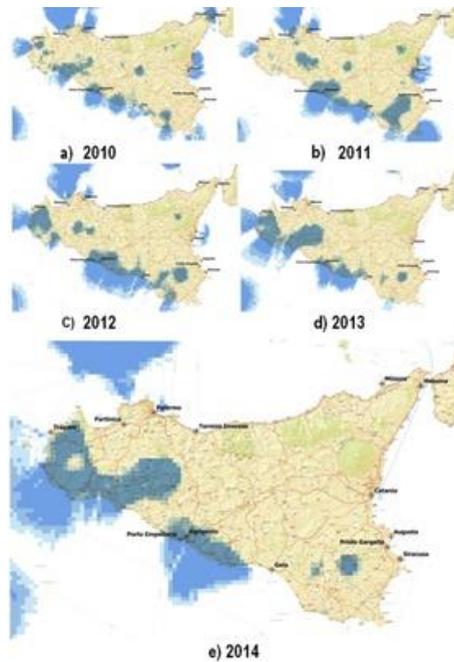


Figura 12.4.12. 85° percentile, dell'indice IPM per gli anni 2010÷2014

La Figura 12.4.13 riporta la flow chart della procedura messa a punto per il calcolo finale dell'indice FEAL sulla

base dei processi di calcolo descritti nei paragrafi precedenti.

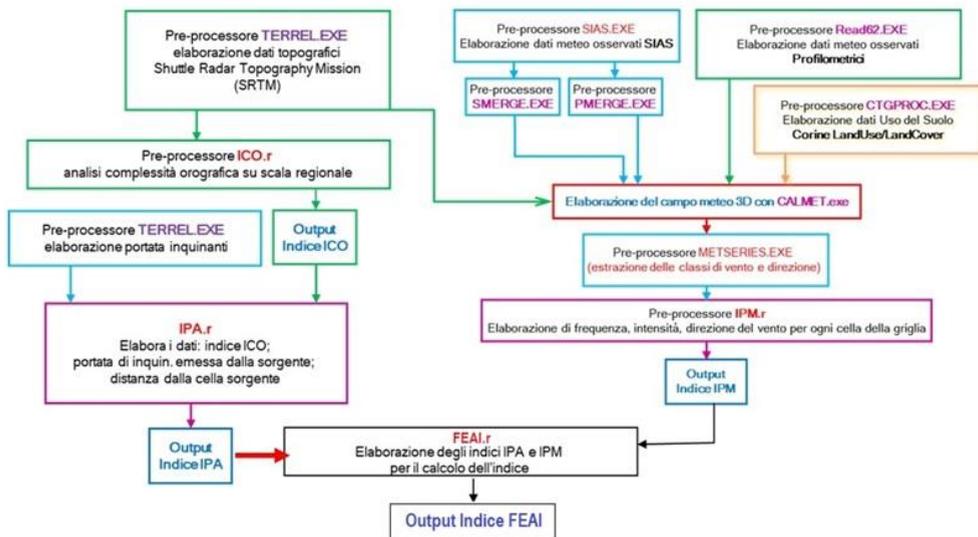


Figura 12.4.13. Flow Chart del processo di calcolo dell'indice FEAL

#### Descrizione dei principali risultati ottenuti

Le simulazioni CALMET, utilizzate per il calcolo dell'indice IPM, sono state svolte utilizzando le misure di temperatura, umidità relativa, radiazione solare incidente e direzione e velocità del vento di 77 stazioni superficiali, distribuite nel territorio siciliano, e i dati profilmetrici verticali della stazione di osservazione del Servizio Meteorologico dell'Aeronautica Militare, ubicata vicino all'aeroporto di Trapani Birgi.

Le stazioni superficiali, per la misura delle condizioni atmosferiche a 2 e 10 m di quota, hanno riguardato 60 punti di misura della rete del SIAS (Servizio Informativo Agrometeorologico Siciliano), 13 della rete WMO (World Meteorological Organization) e 4 della rete Mareografica.

I dati sono stati impiegati per valutare i campi meteorologici tridimensionali, con intervallo orario per un periodo di un anno, su un dominio con risoluzione 3x3 km. Sono state svolte cinque simulazioni per gli anni dal 2010 al 2014.

I dati dell'inventario delle emissioni per SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub> e PM<sub>10</sub>, utilizzati per lo studio, si riferiscono a fonti naturali ed antropogeniche, classificate come puntuali (centrali elettriche, o impianti industriali), lineari (trasporto stradale) e areali diffuse (area urbana).

Poiché uno degli obiettivi della ricerca è stato individuare il sottogruppo di stazioni di misura dell'assetto di rete, utile ai fini delle valutazioni con approcci modellistici, è stato necessario procedere con la sovrapposizione dei layer dell'indice FEAI per i cinque anni in studio (i.e. 2010 al 2014). Ciò ha consentito di raggiungere un risultato più robusto in quanto ha permesso d'individuare le zone caratterizzate da elevate analogie ambientali per un intervallo temporale significativo

Le Figure 14, 15 e 16 mostrano le aree in cui è presente un'elevata analogia ambientale per un intervallo temporale significativo rispettivamente per SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub> e PM<sub>10</sub>.

Si noti che in queste figure le celle evidenziate in grigio sono caratterizzate da un valore FEAI>60. Il valore 60 è stato scelto poiché ricade nella classe a cui corrisponde una probabilità di accadimento di circa il 90% (ipotesi conservativa), considerando una funzione di

distribuzione della probabilità delle classi FEAI di tipo esponenziale.

Ai fini della validazione di questi risultati, è stato condotto uno studio attraverso la tecnica multivariata della cluster analysis (o analisi di aggregazione). Lo scopo della cluster analysis è raggruppare i dati in classi secondo criteri di similarità, cioè determinare un certo numero di classi in modo tale che le osservazioni siano il più possibile omogenee all'interno delle classi ed il più possibile disomogenee tra le diverse classi. Per la condizione di similitudine è stato utilizzato l'algoritmo K-means. Per brevità si riportano in Figura 12.4.17 i risultati ottenuti per il solo SO<sub>x</sub>. Il confronto con la mappa di Figura 12.4.14 consente di confermare la robustezza del metodo proposto.

Dall'esame della Figura 14 si evince che gli agglomerati urbani e parti di alcune aree industriali mostrano analogie (celle grigie) per SO<sub>x</sub>. Pertanto la qualità dell'aria in queste celle confinanti può essere misurata da stazioni ubicate al loro interno. I dati di qualità dell'aria delle stazioni posizionate nelle aree non grigie (i.e. non sono presenti analogie ambientali), risultano rappresentative solo del loro limitatissimo intorno.

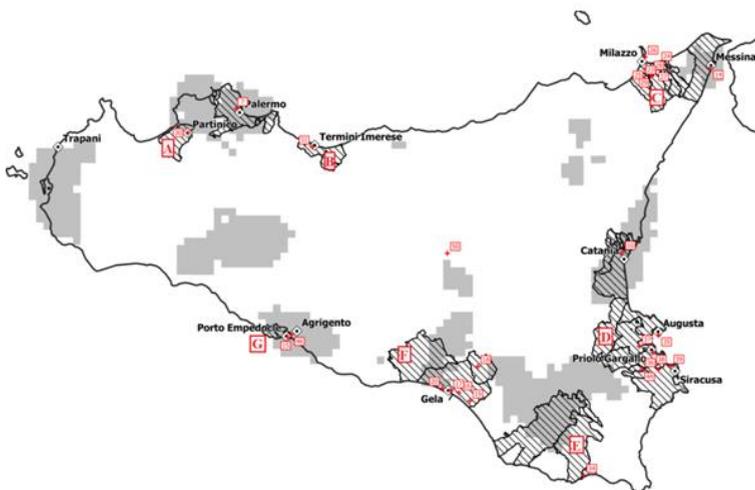


Figura 12.4.14. FEAI per SO<sub>x</sub>, layers sovrapposti dal 2010-2014.

Analogamente per  $\text{NO}_x$  (Figura 12.4.15) l'agglomerato di Messina, le AERCA del Comprensorio del Mela e di Priolo, le aree industriali di Termini e Partinico e parte delle altre aree industriali, non mostrano aree grigie e, quindi, non presentano analogie ambientali. Pertanto i

dati di qualità dell'aria delle stazioni ubicate in queste aree risultano rappresentative di aree con estensione molto limitata.

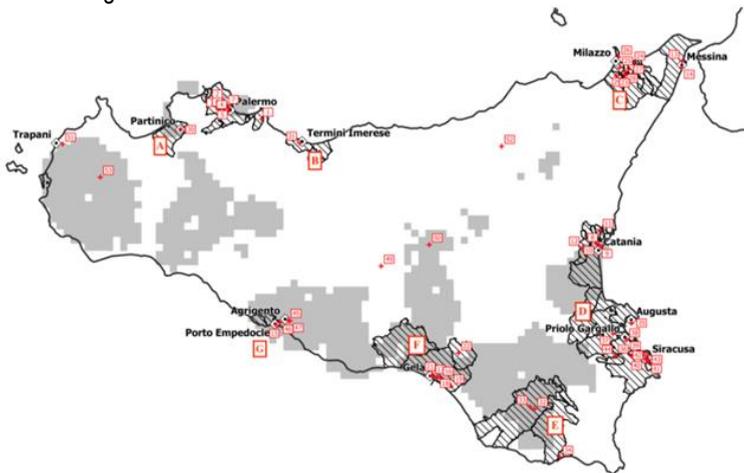
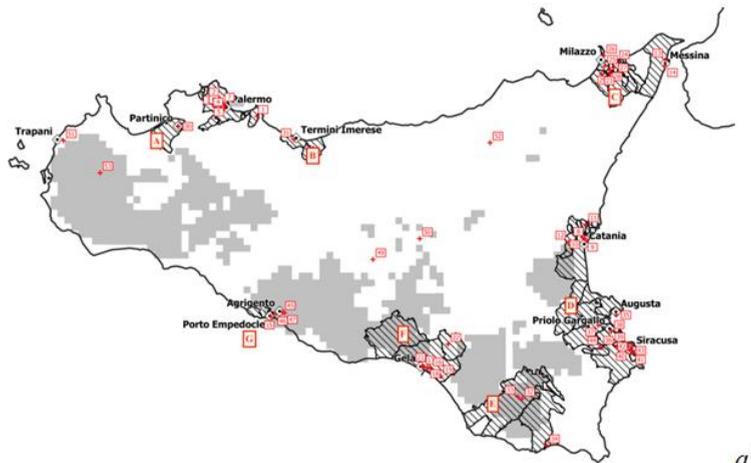


Figura 12.4.15. FEAI per  $\text{NO}_x$ , layers sovrapposti dal 2010-2014.

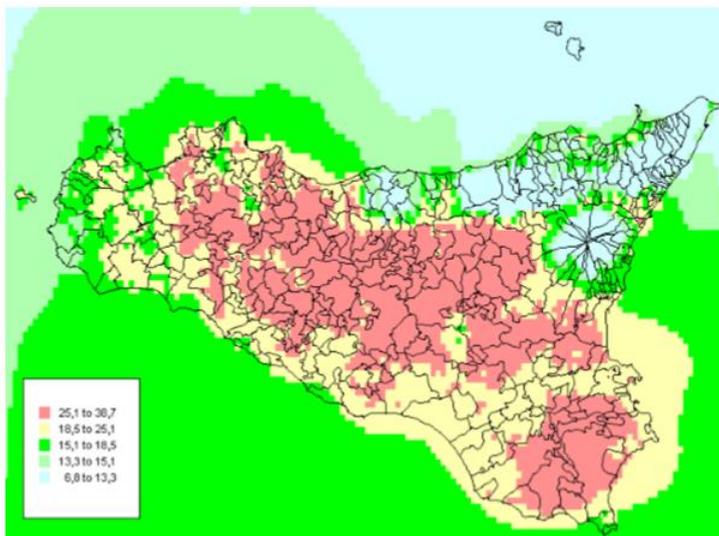
La Figura 16-a si riferisce all'indice FEAI del  $\text{PM}_{10}$ . Rispetto alla zonizzazione, si nota che esso mostra le maggiori analogie ambientali nella zona altro, nell'area industriale di Porto Empedocle ed in parte delle aree industriali del ragusano, probabilmente perché si risente molto del contributo naturale al particolato, in analogia alla mappa della stima delle concentrazioni in aria di  $\text{PM}_{10}$ , elaborata nella redazione del *Piano di Tutela della qualità dell'aria in Sicilia* con il modello Chimere (Figura 12.4.16-b). Anche in questo caso possiamo affermare che le stazioni esterne alle aree grigie risultano rappresentative solo della loro limitata area di ubicazione.

Le immagini riportate in Figura 12.4.16-a e 16-b vanno confrontate osservando che la prima fornisce indicazioni in ordine al grado di sensibilità allo scambio tra le celle, mentre la seconda si riferisce alle concentrazioni di ricaduta del  $\text{PM}_{10}$ . È interessante osservare che nella zona centrale della Sicilia c'è una sostanziale congruenza tra i risultati dei due modelli. Laddove la logica fuzzy indica facilità di relazione tra celle e quindi disponibilità alla dispersione degli inquinanti, il modello Chimere fornisce le minori concentrazioni; viceversa nel caso di scarsa comunicazione tra le celle (zone bianche di "ristagno") le concentrazioni  $\text{PM}_{10}$  stimate da Chimere appaiono più grandi.



a)

Figura 12.4.16-a. FEAI per PM<sub>10</sub>, layers sovrapposti dal 2010-2014.



b)

Figura 12.4.16-b. Modello Chimere – PM<sub>10</sub> totale annuale 2017

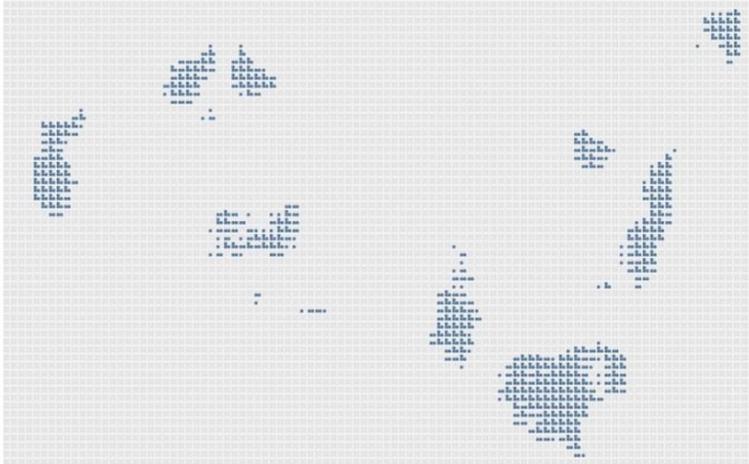


Figura 12.4.17. Risultati dell'analisi cluster per SO<sub>x</sub>

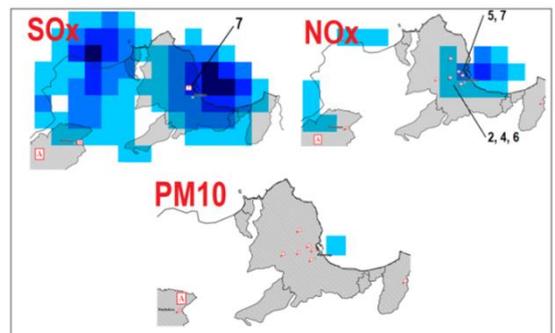
Di seguito, sulla base dei risultati dell'indice FEAI e con riferimento alla zonizzazione siciliana, vengono definiti i sottogruppi delle centraline previste nel PdV della qualità dell'aria, che possono essere utilizzate come punti di misura di riferimento per gli studi modellistici.

Nelle figure riportate di seguito, le celle del dominio di studio vengono colorate con gradazioni di blu se il corrispondente valore di FEAI risulta essere maggiore di 60. Il colore blu notte identifica le celle con valore di FEAI maggiore di 80.

#### ZONA IT1911, AGGLOMERATO DI PALERMO

Per l'inquinante SO<sub>x</sub>, l'analisi dell'indice FEAI di Figura 12.4.18 evidenzia una buona analogia ambientale su buona parte dell'agglomerato e la centralina n. 7 è rappresentativa della zona urbana e suburbana dell'agglomerato di Palermo.

Per l'inquinante NO<sub>x</sub>, si evidenzia una buona analogia ambientale nell'area cittadina con il maggiore traffico veicolare e pertanto l'insieme dei punti di misura rappresentativi di tale area e utili a supporto degli studi modellistici sono da scegliersi tra le centraline n. 2, 4, 5, 6 e 7 (Figura 12.4.18).



Se si vuole effettuare una differenza tra la zona urbana e suburbana, possono essere fatte le seguenti scelte:

- nella zona urbana, il sottogruppo è costituito dalle centraline n. 5 e 7,
- nella zona suburbana, il sottogruppo è costituito dalle centraline n. 2, 4, e 6.

Le centraline n. 1 e 3 ricadono in aree in cui le pressioni ambientali hanno un effetto primariamente locale (FEAI < 60), quindi, rappresentano singoli punti di misura per il riferimento modellistico e rappresentative del loro limitato intorno.

Per l'inquinante PM<sub>10</sub> non si evidenzia alcuna analogia ambientale nell'agglomerato urbano e quindi tutte le centraline rappresentano singoli punti di misura per il riferimento modellistico e sono rappresentative del loro limitato intorno.

ZONA IT1912, AGGLOMERATO DI CATANIA

Per l'inquinante SO<sub>x</sub>, risulta che la centralina n. 10 (Figura 12.4.19) consente di rappresentare un territorio che si estende lungo la costa del mar Ionio, dalla piana di Catania fino alla zona prossima alla città di Acireale e, quindi, è rappresentativa dell'agglomerato urbano.

Per l'inquinante NO<sub>x</sub>, le centraline n. 8, 9, 10 e 12 costituiscono un sottogruppo di riferimento in quanto il territorio in cui sono ubicate presenta analogie ambientali. La centralina n. 11 rappresenta un singolo punto di misura per il riferimento modellistico e i dati relativi sono rappresentativi del limitato intorno.

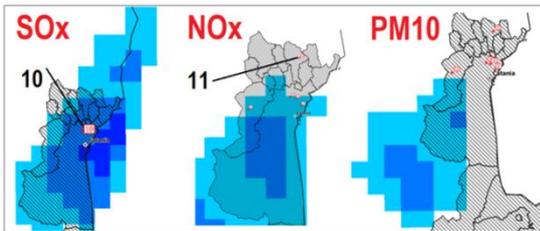


Figura 12.4.19. Valutazione FEAI per l'Agglomerato di Catania

ZONA IT1913 AGGLOMERATO DI MESSINA

Per l'inquinante SO<sub>x</sub>, la centralina n. 14 (Figura 12.4.20) è localizzata in una cella con elevato valore dell'indice FEAI>80, per cui è rappresentativa della zona urbana e suburbana di Messina

Per gli inquinanti NO<sub>x</sub> e PM<sub>10</sub>, le centraline n. 13 e 14 rappresentano singoli punti di misura per il riferimento modellistico, tenendo presente che l'indice FEAI è risultato minore di 60.

Riguardo all'NO<sub>x</sub> va precisato che l'indice FEAI ottenuto per l'agglomerato di Messina, che evidenzia l'assenza di scambio tra le celle, sebbene apparentemente si palesi

come un'anomalia rispetto ai risultati ottenuti con il modello CHIMERE, in realtà è congruente se si tiene conto del valore soglia impostato per il FEAI (60) al di sotto del quale le deboli interazioni di scambio vengono trascurate.

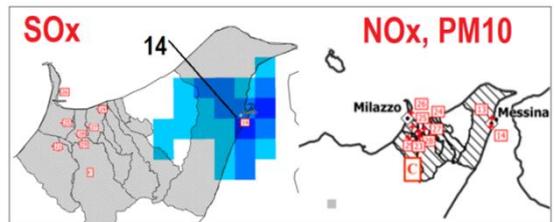
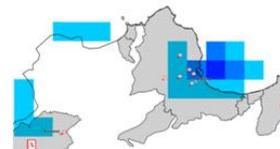


Figura 12.4.20. Valutazione FEAI per l'Agglomerato di Messina

ZONA IT1914, AREE INDUSTRIALI

Per semplificare la descrizione dei risultati riguardanti la zona industriale, si è attribuita una lettera identificativa alle varie aree che fanno parte della Zona IT1914 (Zona A÷G).

**Zona A**



Per l'inquinante SO<sub>x</sub>, si evidenzia che la centralina n. 30 è rappresentativa di un'area che si estende fino all'aeroporto Falcone-Borsellino.

Per l'inquinante NO<sub>x</sub>, la centralina n. 30 ricade in una zona in cui le pressioni ambientali hanno un effetto primariamente locale (FEAI<60), per cui è da considerare come singola unità di misura ai fini modellistici.

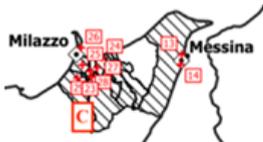
Per l'inquinante PM<sub>10</sub> valgono le stesse considerazioni fatte per NO<sub>x</sub>.

**Zona B**



Per tutti gli inquinanti la centralina n. 31 è da considerarsi singolo punto di riferimento ai fini modellistici.

### Zona C



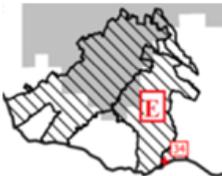
Per tutti gli inquinanti le centraline n. da 23 a 29 sono da considerarsi singoli punti di riferimento ai fini modellistici non rappresentative dell'AERCA del Comprensorio del Mela nel suo complesso.

### Zona D



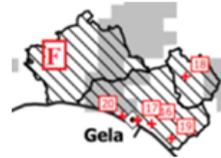
Per l'inquinante  $SO_x$ , le centraline n. da 35 a 39, e n. 44 sono da considerarsi singoli punti di riferimento ai fini modellistici; per gli inquinanti  $NO_x$  e  $PM_{10}$ , le centraline da n. 35 a 44 sono da considerarsi singoli punti di riferimento ai fini modellistici. Nessuna delle stazioni prevista nel PdV per l'AERCA di Priolo è quindi rappresentativa per gli inquinanti studiati del territorio, ma solo del suo limitato intorno.

### Zona E



Per l'inquinante  $SO_x$ , la centralina n. 34 è da considerarsi singolo punto di riferimento ai fini modellistici; per gli inquinanti  $NO_x$  e  $PM_{10}$  le centraline n. 32 e 33 sono da considerarsi un sottogruppo di punti di riferimento ai fini modellistici, e quindi rappresentative dell'area industriale del ragusano, mentre la centralina n. 34 è da considerarsi singolo punto di riferimento.

### Zona F



Per l'inquinante  $SO_x$ , le centraline da n.16 a 19 sono da considerarsi singoli punti di riferimento ai fini modellistici. Per l'inquinante  $NO_x$ , le centraline da n.16 a 18, e n.21 sono da considerarsi un sottogruppo di punti di riferimento ai fini modellistici, mentre le centraline n.19, 20 e 22 sono da considerarsi singoli punti di riferimento ai fini modellistici. Per l'inquinante  $PM_{10}$  le centraline da n.16 a 19, e n. 21 e 22 sono da considerarsi singoli punti di riferimento ai fini modellistici.

### Zona G



Per tutti gli inquinanti, la centralina n.15 è da considerarsi punto di riferimento ai fini modellistici. Per tutti gli inquinanti, la centralina n.15 è da considerarsi punto di riferimento ai fini modellistici.

La Tabella 12.4.10 riassume quanto descritto in precedenza, mentre la Figura 12.4.21 riporta la distribuzione delle stazioni del PdV.

Tabella 12.4.9. Sottoinsiemi o singoli punti di misura previsti nel PdV, di riferimento per gli studi modellistici nelle aree industriali.

<b>Zona IT1911</b>	<b>Sottogruppi per SOx</b>	<b>Sottogruppi per NOx</b>	<b>Sottogruppi per PM<sub>10</sub></b>
<b>Zona A</b>	30	30	30
<b>Zona B</b>	31	31	31
<b>Zona C</b>	23	23	23
	24	24	24
	25	25	25
	26	26	26
	27	27	27
	28	28	28
	29	29	29
<b>Zona D</b>	35	35	35
	36	36	36
	37	37	37
	38	38	38
	39	39	39
	44	40	40
		41	41
		42	42
43		43	
<b>Zona E</b>	34	32, 33	32, 33
		34	34
<b>Zona F</b>	16	16, 17, 18, 21	16
	17		17
	18	19	18
	19	20	19
	20	22	21
22			
<b>Zona G</b>	15	15	15

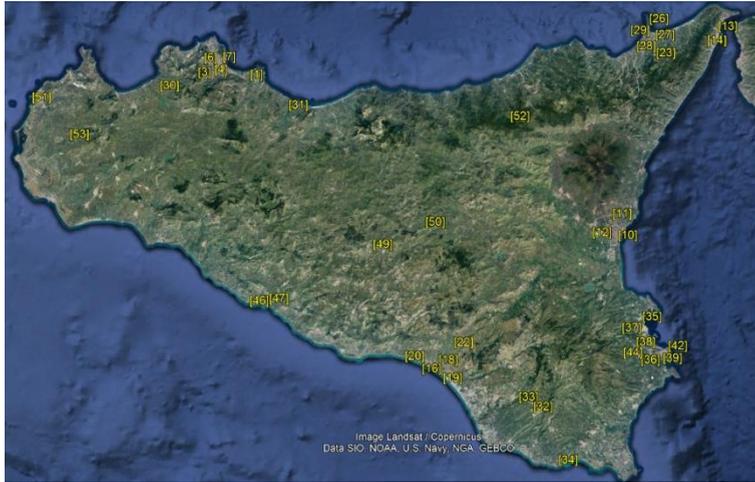


Figura 12.4.21. Distribuzione delle Stazioni facenti parte del PdV

### ZONA IT1915

Per l'inquinante  $SO_x$ , l'analisi dell'indice FEAI evidenzia che la centralina n. 50 ricade in aree in cui le pressioni ambientali hanno un effetto primariamente locale ( $FEAI < 60$ ), quindi rappresenta un singolo punto di misura per il riferimento modellistico. Per gli inquinanti  $NO_x$  e  $PM_{10}$ , le centraline n.49÷52 sono singoli punti di riferimento ai fini modellistici.

Vale la pena sottolineare che nel caso della zona di Trapani e per l'inquinante  $NO_x$  le centraline n. 51 e 53 potrebbero essere considerate come un sottogruppo.

### **Conclusioni**

Nell'ambito della presente attività di ricerca è stata messa a punto una nuova metodologia, basata sulla teoria degli insiemi Fuzzy, che consente di valutare un nuovo indice, chiamato FEAI (Fuzzy Environmental Analogy Index - FEAI) finalizzato a trovare relazioni esistenti tra aree oggetto di pressioni ambientali connesse alle emissioni di inquinanti di origine antropica e naturale.

Per le analisi sono state utilizzate le informazioni fornite in (ARPA, 2012) riguardanti l'Inventario delle emissioni su scala regionale.

In particolare, FEAI è un indice composito, dedotto dalla combinazione di un indicatore di pressione meteorologica (IPM) che, per celle confinanti nel dominio di calcolo, indaga le affinità connesse a fattori meteorologici tridimensionali e l'indice di pressione antropica (IPA) che trova relazioni tra le caratteristiche orografiche del territorio e l'intensità delle sorgenti inquinanti.

L'IPM è stato valutato elaborando i dati di frequenza e velocità del vento ottenuti utilizzando i risultati delle simulazioni CALMET, un modello meteorologico diagnostico che, a partire da dati osservati e da dati geofisici, produce campi orari tridimensionali di vento e bidimensionali di diverse variabili meteorologiche e micro-meteorologiche.

Per le simulazioni sono state utilizzate le misure di temperatura, umidità relativa, radiazione solare incidente, direzione e velocità del vento di 77 stazioni

superficiali, distribuite sul territorio siciliano, insieme ai dati della stazione di osservazione profilometrica del Servizio Meteorologico dell'Aeronautica Militare, ubicata presso l'aeroporto di Trapani-Birgi.

Va sottolineato che sono state svolte analisi di sensibilità, variando ad esempio i valori degli insiemi Fuzzy di input, i metodi di aggregazione dell'indice FEAI e i pesi utilizzati per la costruzione del sistema FIS, nonché studi di robustezza della metodologia, eseguendo perturbazioni della velocità e frequenza del vento. Queste attività hanno permesso di confermare la solidità e la coerenza della metodologia Fuzzy proposta per studi ambientali.

L'applicazione della metodologia messa a punto ha riguardato le emissioni di SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub> e PM<sub>10</sub> per un periodo di cinque anni (dal 2010 al 2014).

L'analisi dei risultati ottenuti ha consentito di determinare i sottoinsiemi, dell'insieme delle stazioni del PdV, più adatte per gli studi modellistici e per lo scambio di dati previsto con decisione della Commissione Europea 97/101/CE del 27 gennaio 1997 (Exchange of Information – Eol).

Per rafforzare le conclusioni ottenute dall'analisi dei risultati FEAI, è stata svolta anche una cluster analysis (o analisi di aggregazione), che ha confermato le conclusioni riportate nel presente rapporto.

L'analisi dettagliata dei risultati ha mostrato che:

- per gli agglomerati di Palermo e Catania, è stato possibile individuare sottogruppi di centraline di

riferimento per il supporto modellistico. Le stazioni possono essere considerate rappresentative anche delle aree sub-urbane;

- per gli agglomerati industriali, nella zona di Milazzo (zona C) e di Siracusa (zona D), l'indice FEAI risulta essere inferiore a 60, cioè il valore soglia imposto per l'individuazione di affinità territoriali in termini di analogie ambientali. Pertanto, le centraline che insistono in queste aree risultano essere rappresentative, al più, delle pressioni ambientali che ricadono nella cella in cui sono ubicate. Quindi, risultano essere singoli punti di misura per il riferimento modellistico, senza possibilità di estensione a celle circostanti. Di contro, per gli agglomerati industriali di Ragusa (zona E) e Gela (zona F), l'indice FEAI consente di individuare sottogruppi di centraline di riferimento, con possibile estensione territoriale.

- Per la zonizzazione definita "altro", le centraline sono rappresentative delle pressioni ambientali locali, per cui sono tutte da considerarsi singoli punti di misura per il riferimento modellistico. Ciò del resto era da attendersi, tenendo presente che la loro rappresentatività riguarda aree del territorio siciliano molto estese.

Il metodo messo a punto ed il lavoro di convalida hanno, in conclusione, consentito di confermare la solidità dell'indice FEAI nella modellazione delle pressioni ambientali antropiche su scala regionale.

**Bibliografia**

- Giardina M, Buffa P. Abita A. Madonia G. 2019. Fuzzy environmental analogy index to develop environmental similarity maps for designing air quality monitoring networks on a large-scale. *Journal Stochastic Environmental Research and Risk Assessment*, 2019, <https://doi.org/10.1007/s00477-019-01723-w>
- Barua D.K. 2005. Beaufort Wind Scale. In: Schwartz M.L. (eds) *Encyclopedia of Coastal Science. Encyclopedia of Earth Science Series*. Springer, Dordrecht, doi: 10.1007/1-4020-3880-1\_45
- Giardina M., Castiglia F., Tomarchio E. 2014. Risk assessment of component failure modes and human errors using a new FMECA approach: application in the safety analysis of HDR brachytherapy. *J Radiol Prot.*, 34(4), 891-914. doi: 10.1088/0952-4746/34/4/891.
- Hanss M., 2005. *Applied Fuzzy Arithmetic, An Introduction with Engineering Applications*. Springer, ISBN 3-540-24201-5
- Hellendoorn H., Thomas C. 1993. Defuzzification in fuzzy controllers, *Intell. Fuzzy Syst.*, vol. 1, pp. 109-123.
- Hong T., Leeb C. 1996. Induction of fuzzy rules and membership functions from training examples *Fuzzy Sets Syst.* 84 33-47.
- Pedrycz W. 1996. *Fuzzy Modelling. Paradigms and Practice* (Dordrecht: Kluwer).
- Ramli N., Mohamad D. 2009 A comparative analysis of centroid methods in ranking fuzzy numbers, *Eur. J. Sci. Res.*, 28, 492-501
- Zadeh L. A. 1975. The concept of a linguistic variable and its application to approximate reasoning. *Inf. Sci.* Part I and II, 8
- Zadeh L.A. 1992. The calculus of fuzzy if/then rules. *AI Expert*, 7, 23-7.
- Zamonin. 2006. [https://en.wikipedia.org/wiki/File:Topography\\_of\\_Sicily.png#filehistory](https://en.wikipedia.org/wiki/File:Topography_of_Sicily.png#filehistory)
- Zimmermann H. 2001. *Fuzzy Set Theory-and Its Applications*, Springer Science & Business Media

## 13. ASPETTI FENOMENOLOGICI E ANALISI DEI TREND

### 13.1 SIMULTANEITÀ DEI SUPERAMENTI DEL VALORE LIMITE GIORNALIERO DI PM<sub>10</sub> NELLA PIANURA PADANA NEL TRIENNIO 2014-2016.

F. Lollobrigida, C. Bussi, A. Bruno, E. Calderaro, M. Leogrande, M. Maringo, L. Milizia, F. Romeo, M. Sacco,

R. Sergi, C. Strumia

ARPA PIEMONTE

#### RIASSUNTO

Le concentrazioni di PM<sub>10</sub> in pianura padana sono caratterizzate da una elevata omogeneità spaziale e temporale. Per verificare in che misura tale omogeneità implichi una simultaneità delle giornate di superamento o non superamento del valore limite giornaliero di PM<sub>10</sub> sono state prese in considerazione le concentrazioni medie giornaliere del triennio 2014-2016 di sei stazioni di fondo urbano collocate in città di dimensioni e popolazione significativamente diverse. Per ogni coppia di stazioni sono state estratte le giornate in cui sono disponibili entrambe le medie giornaliere validate di PM<sub>10</sub>; la percentuale di coppie di dati estratte è compresa tra 80% e il 94% del totale teorico.

Tutte le coppie di serie di dati presentano un'elevata correlazione lineare, con valori di  $r$  di Pearson compresi tra 0,7 e 0,9. Per ogni coppia di stazioni è stata calcolata la percentuale di giorni in cui entrambe superano o entrambe non superano il valore limite giornaliero (giornate "concordi"). La percentuale di giornate concordi è compresa tra l'83% e il 93% e non è correlata in modo significativo con la distanza geografica. Se si estraggono dalla base dati complessiva le giornate in cui è presente il dato validato per tutte le sei stazioni e almeno una di esse presenta una concentrazione di PM<sub>10</sub> superiore al valore limite giornaliero, si osserva che in più del 60% dei casi il superamento riguarda contemporaneamente almeno tre stazioni. In questo insieme di giornate anche la dispersione delle medie giornaliere di PM<sub>10</sub> appare limitata: in più del 60% dei casi, infatti, la deviazione standard relativa è minore o uguale al 30%.

**Parole chiave:** PM<sub>10</sub>, bacino padano

#### ABSTRACT

It is of common knowledge that in the Po Valley PM<sub>10</sub> concentrations show a high spatial homogeneity. In order to investigate if such homogeneity implies simultaneousness of days when PM<sub>10</sub> concentration exceeds or does not exceed limit value, daily means of six urban background monitoring stations in 2014-2016 three-year period were collected. The six monitoring sites (Torino Lingotto, Milano Pascal, Mantova Ariosto, Parma Cittadella, Ferrara Villa Fulvia, Padova Mandria) cover OMSle Po Valley and are located in cities with different extent and population. The days when both PM<sub>10</sub> means are available were extracted from the validated dataset for every couple of sites; the percentage of extracted couple of data is between 80% and 94% of the total days. All couples of extracted data series show high linear correlation because Pearson correlation coefficient is between 0.7 e 0.9.

The percentage of days when both sites exceed or both do not exceed PM<sub>10</sub> daily limit value ("concordant" days) were calculated for every couple of sites. Concordant days percentage is between 83% and 93% and does not depend on geographical distance.

If days when PM<sub>10</sub> mean is available for all six stations and at least one of them exceeds daily limit value are extracted from the OMSle dataset, more of 60% of the days show exceedances in at least three sites. In this dataset also daily mean dispersion is low, because the coefficient of variation is lower or equal to 30% in more than 60% of the days.

**Keywords:** PM<sub>10</sub>, Po Valley

## Introduzione

La particolare conformazione orografica del bacino padano, unita alle sue caratteristiche meteorologiche, fanno sì che la componente di origine secondaria del particolato aerodisperso abbia una particolare rilevanza, in special modo nel periodo invernale, quello più critico per questo inquinante. Poiché i fenomeni di formazione secondaria del particolato interessano per loro natura aree vaste che possono ampiamente travalicare i confini regionali, le politiche di risanamento debbono di

necessità agire alla stessa scala spaziale e quindi prevedere un coordinamento delle azioni a livello sovregionale. Tale principio è stato riconosciuto a livello ufficiale in documenti tecnici del Ministero dell'Ambiente sin dal 2012 (1) ed ha trovato attuazione concreta negli Accordi di Programma sottoscritti dal Ministero stesso e dalle Regioni interessate nel 2013 e nel 2017 e con l'avvio in tale anno del progetto LIFE-prepAIR (Po Regions Engaged to Policies of Air).

Sotto il profilo tecnico-scientifico i fenomeni descritti fanno sì le concentrazioni di PM<sub>10</sub> nella pianura padana presentino - soprattutto a livello di stazioni di fondo urbano - una elevata omogeneità che risulta particolarmente evidente durante i mesi freddi dell'anno caratterizzati da elevati livelli di PM<sub>10</sub> (Figura 13.1.1 e Figura 13.1.2).

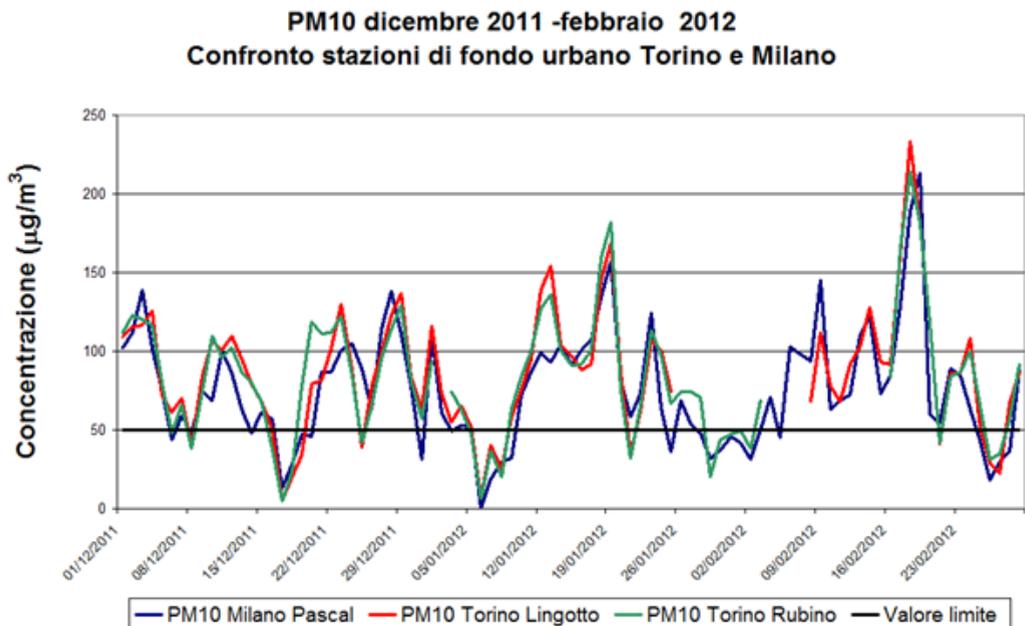


Figura 13.1.1. PM<sub>10</sub>- Confronto stazioni di fondo urbano di Torino e Milano Dicembre 2011 – Febbraio 2012

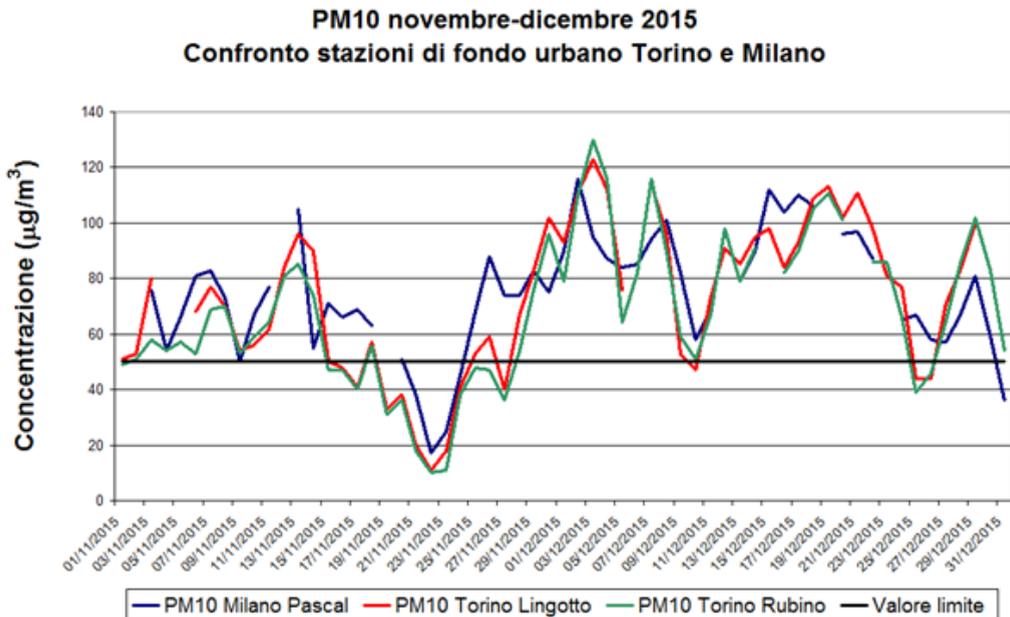


Figura 13.1.2. PM<sub>10</sub>- Confronto stazioni di fondo urbano di Torino e Milano Novembre-Dicembre 2015

### Obiettivi e metodologia dello studio

Lo studio si propone di verificare in che misura l'omogeneità spaziale e temporale delle concentrazioni di PM<sub>10</sub> nella pianura padana implichi su base statistica una simultaneità delle giornate di superamento o non superamento del valore limite giornaliero.

Sono state prese in considerazione le concentrazioni medie giornaliere del triennio 2014-2016 di sei stazioni di

fondo urbano - Torino Lingotto, Milano Pascal, Mantova Ariosto, Parma Cittadella, Ferrara Villa Fulvia, Padova Mandria - distribuite sull'intera pianura padana e collocate in città di dimensioni e popolazione significativamente diverse e con distanze in linea d'aria che vanno dai 66 km tra Ferrara e Padova ai 330 Km tra Torino e Padova (Figura 13.1.3).



Figura 13.1.3. Posizione delle sei stazioni di fondo urbano oggetto dello studio.

È stato scelto il triennio 2014-2016 perché maggiormente rappresentativo delle condizioni meteorologiche medie del bacino padano rispetto a quello più recente (2017-2019), che è stato caratterizzato nell'ultimo biennio - in particolare in Piemonte - da una elevata piovosità. Le serie storiche di medie giornaliere sono state ricavate dai database messi a disposizione dalle Agenzie regionali per l'Ambiente e elaborate con due diverse modalità.

Nella prima modalità per ogni coppia di punti di misura sono state estratte dalla base dati complessiva le giornate in cui sono disponibili entrambe le medie giornaliere validate di  $PM_{10}$ ; la percentuale di coppie di dati estratte risulta ampiamente rappresentativa poiché è compresa tra 80% e 94% del totale teorico nel caso dell'intera annualità e tra 82% e 97% se si considera solo il semestre freddo. Per ogni coppia di serie di dati estratti è stata calcolata la  $r$  di Pearson e la percentuale di giorni in cui i due punti di misura superano entrambi o non superano entrambi il valore limite giornaliero di  $PM_{10}$  (percentuale di giornate "concordi").

Nella seconda modalità dalla base dati complessiva di tutti i punti di misura sono state estratte le sole giornate in cui è presente il dato validato per tutte e sei le stazioni e almeno una di esse supera il valore limite di  $PM_{10}$ . Sui dati estratti è stata calcolata la percentuale di giornate nelle quali un numero "n" di stazioni supera il valore limite (con "n" compreso tra 1 e 6) e la deviazione standard relativa (CV%) per ogni giornata come indicatore di dispersione dei dati.

In entrambe le modalità le elaborazioni sono state effettuate considerando sia l'intera annualità che il solo semestre freddo (ottobre-marzo), il più critico per il  $PM_{10}$ .

## Risultati e discussione

I risultati evidenziano innanzitutto che tutte le coppie di stazioni presentano una correlazione significativa in termini di  $r$  di Pearson, con valori tra 0,68 e 0,91 per l'intera annualità e tra 0,57 e 0,90 nel semestre freddo (Figura 13.1.4).

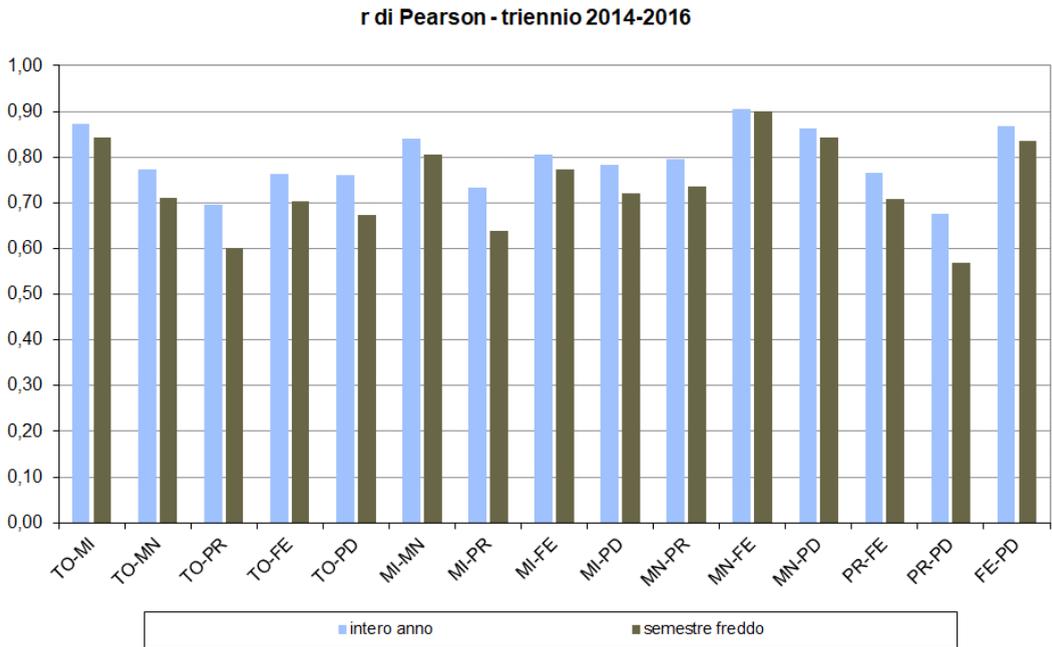


Figura 13.1.4. r di Pearson per tutte le coppie di serie di dati delle sei stazioni.

Analogamente tutte le coppie di stazioni mostrano un'elevata percentuale di giornate "concordi", compresa

tra 83% e 93% sull'intera annualità e tra 70% e 89% per il semestre freddo (Figura 13.1.5).

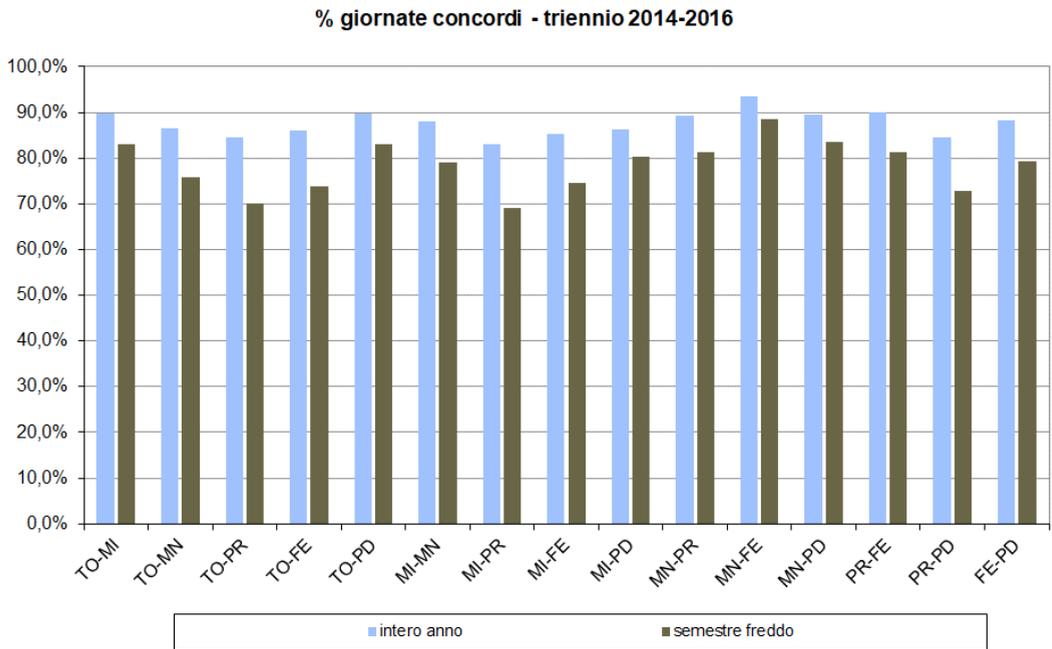


Figura 13.1.5. Percentuale di giornate “concordi” per tutte le copie di serie di dati

La percentuale di giornate “concordi”, a parità di stazione, è maggiore sull’intera annualità perché questa comprende il semestre caldo maggio-settembre in cui la quasi totalità delle giornate risulta “concorde” in quanto – grazie alle maggiori capacità dispersive dell’atmosfera – in tutta la pianura padana le giornate di superamento del valore limite di  $PM_{10}$  risultano estremamente rare.

La percentuale di giornate “concordi” non presenta alcuna dipendenza significativa dalla distanza in linea

d’aria tra due punti di misura (Figura 13.1.6); in particolare nel triennio considerato la percentuale di giornate “concordi” tra il sito ubicato più a Ovest (Torino) e quello immediatamente più vicino (Milano, 125 km) è pari a quella tra i due siti ubicati alle estremità del bacino (Torino e Padova, che distano 330 km).

### Correlazione percentuale giornate concordi - distanza tra le stazioni

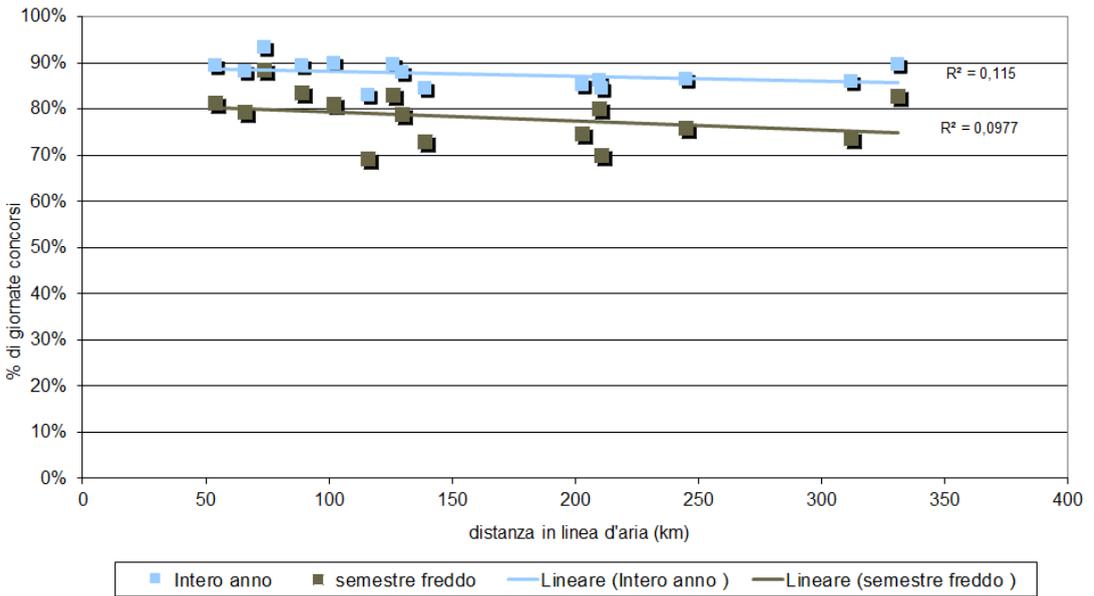


Figura 13.1.6. Correlazione tra percentuale di giornate “concordi” e distanza tra le stazioni di monitoraggio.

In più del 60% delle giornate in cui almeno una stazione supera il valore limite giornaliero il superamento riguarda in contemporanea almeno tre punti di misura e come è lecito aspettarsi nel semestre freddo - quello più critico per il  $PM_{10}$  - la percentuale di giornate di superamento

simultaneo è sempre maggiore che sull'intera annualità (Figura 13.1.7).

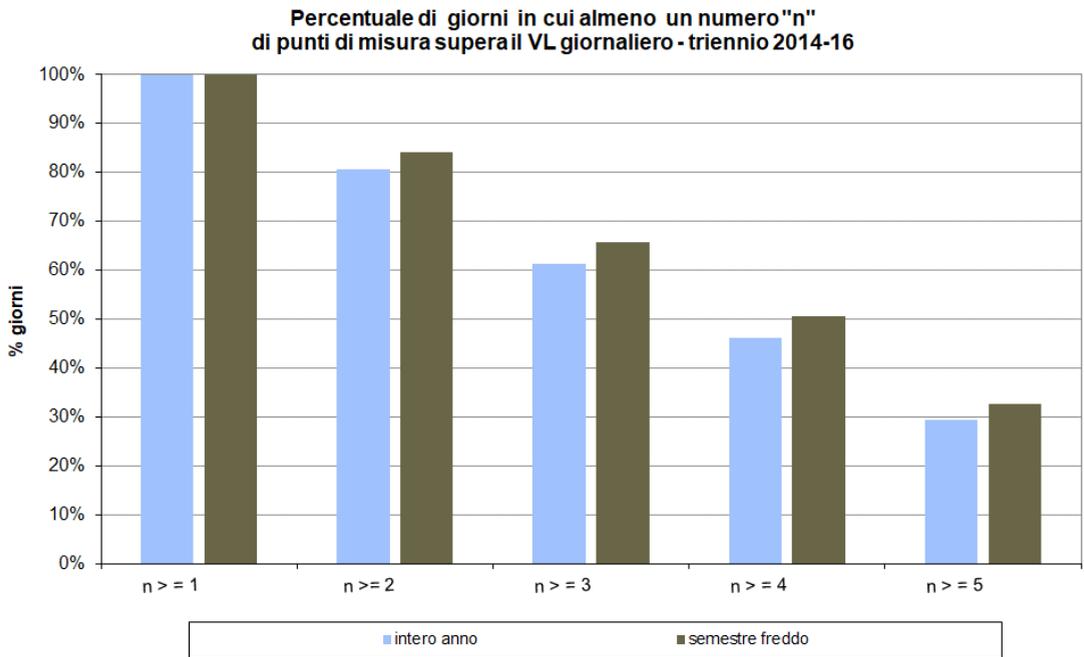


Figura 13.1.7: Percentuale di giorni in cui almeno un numero "n" di punti di misura supera il VL giornaliero

Inoltre in più del 60% delle giornate in cui almeno una stazione supera il valore limite giornaliero la deviazione standard relativa (CV%) delle misure di PM<sub>10</sub>, calcolata su tutti e sei i punti di misura, è minore o uguale al 30%; di conseguenza, tenendo conto della vastità dell'area geografica considerata, nelle giornate più critiche i dati

risultano relativamente poco dispersi. In termini generali ciò significa che in tali giornate critiche anche i punti di misura in cui il limite è rispettato

presentano statisticamente valori prossimi al limite stesso (Figura 13.1.8).

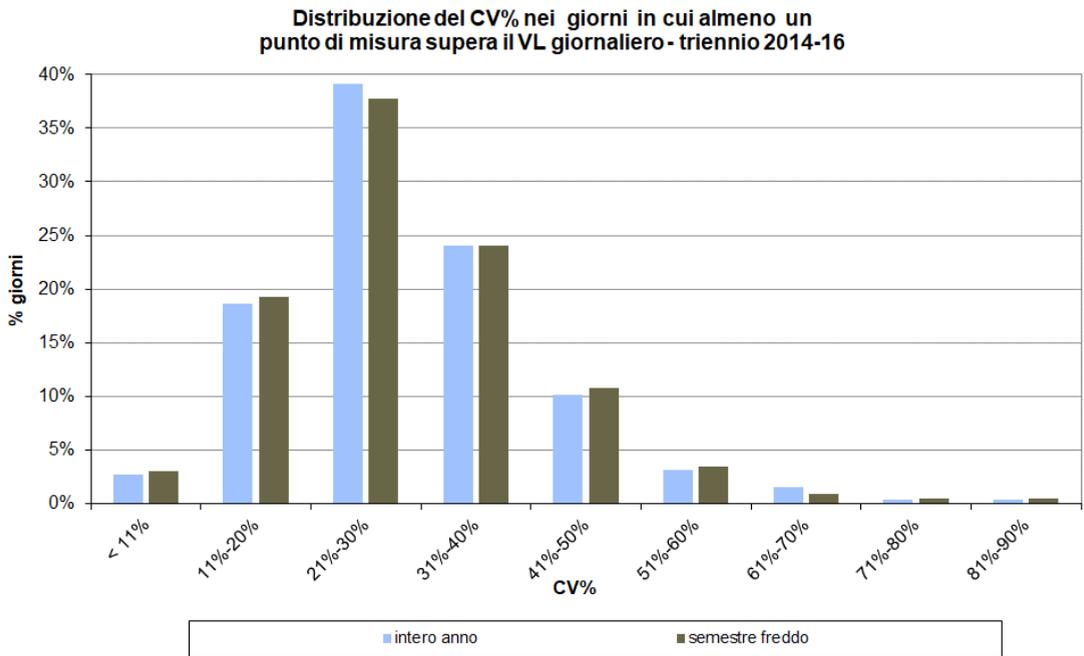


Figura 13.1.8: Distribuzione del CV% delle sei stazioni nei giorni in cui almeno una supera il valore limite giornaliero.

## Conclusioni

In pianura padana le stazioni di fondo urbano - che per loro natura sono rappresentative delle condizioni medie di esposizione della popolazione - presentano su base statistica un elevato grado di simultaneità temporale degli eventi di superamento o non superamento del

valore limite giornaliero di PM<sub>10</sub>, indipendentemente dalla distanza geografica tra i punti di misura. Nelle giornate di superamento simultaneo del valore limite tale omogeneità spaziale e temporale si esprime anche in termini di una dispersione relativamente bassa dei valori assoluti di concentrazione misurati nelle diverse stazioni.

## Bibliografia

(1) AA.VV. , a cura di I Allegriani e F. Romeo (2012). Gruppo di lavoro per l'individuazione delle misure per la riduzione dell'inquinamento atmosferico – Attività tecniche e proposte - MATT.

## 13.2 CONTROLLO QUALITÀ SULLE MISURE DI PARTICOLATO ATMOSFERICO PM<sub>10</sub>: L'ESPERIENZA DI ARPA VENETO

De Bortoli A., Zagolin L., Voltarel G., Marson G., Patti S.

ARPA VENETO

### RIASSUNTO

La misura delle frazioni di particolato atmosferico PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> in aria ambiente è un'importante attività istituzionale che le diverse Agenzie per l'Ambiente Regionali e Provinciali portano avanti da ormai due decenni. Il PM<sub>10</sub> e il PM<sub>2,5</sub> sono tra i parametri più critici della qualità dell'aria in Italia e in Europa, con superamenti sistematici dei relativi limiti di legge. È molto importante che queste misure, effettuate sempre più spesso anche con analizzatori automatici, siano riferibili al metodo ufficiale, descritto nella norma UNI EN 12341:2014. Strumenti che non rispettino i criteri di equivalenza a tale metodo, possono portare a sottostime o sovrastime che si riflettono in un calcolo errato degli indicatori di qualità dell'aria di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub>, con pesanti conseguenze sulle scelte politiche per la riduzione dell'inquinamento atmosferico.

Pertanto, al fine di garantire il mantenimento nel tempo degli obiettivi di qualità riportati nell'allegato I del D.Lgs. 155/2010 e s.m.i., è richiesta ai gestori delle reti regionali e provinciali la partecipazione ai circuiti di interconfronto organizzati dal Laboratorio Nazionale di Riferimento di ISPRA, a sua volta allineato periodicamente con il riferimento europeo (JRC-IES-ERLAP). La "catena di riferibilità" così costruita consente di stabilire se le misure di un dato strumento che opera su una rete locale sono confrontabili a livello nazionale ed europeo, entro il margine di incertezza massima consentita dal citato decreto.

Negli anni dal 2010 al 2019, ISPRA ha organizzato una serie di interconfronti a cui hanno partecipato le varie agenzie regionali e provinciali, tra cui ARPAV-Osservatorio Aria, ciascuna con strumenti di riferimento operanti nelle rispettive reti. La fase finale e più importante del lavoro consiste nel garantire la riferibilità

delle misure anche a scala locale mediante la pianificazione di circuiti di interconfronto interni (regionali e/o provinciali).

Nel presente lavoro sono illustrati i risultati degli interconfronti condotti su misure della frazione di particolato PM<sub>10</sub> organizzati dall'Osservatorio Aria (di seguito ORAR) presso alcune delle stazioni appartenenti alla Rete Regionale di Qualità dell'Aria di ARPAV, sia su strumenti manuali che automatici.

I risultati hanno permesso di avere un primo quadro conoscitivo dello stato di qualità degli strumenti della rete aria di ARPAV, evidenziando l'importanza di effettuare periodicamente queste verifiche, soprattutto su strumenti automatici. Inoltre, le stesse prove applicate a strumenti di nuovo acquisto, devono costituire una pratica necessaria e irrinunciabile in fase di verifica di conformità, ai fini dell'accettazione delle forniture.

**Parole chiave:** (PM<sub>10</sub>, interconfronto, riferibilità)

### ABSTRACT

PM<sub>10</sub> and PM<sub>2,5</sub> particulate matter measures in ambient air are among the most important activities that Regional (or Local) Environment Agencies have carried on for about twenty years.

PM<sub>10</sub> and PM<sub>2,5</sub> are very critical pollutants in Italy and in many other European Countries, with many exceedances of limit values. The increasing use of PM automatic analysers in local networks raises the issue of their equivalence to the EN 12341:2014 reference method. Instruments that don't comply with the standard method, may lead to wrong measures and air quality

indicators calculation, with heavy consequences on the air pollution reduction policies.

Therefore, to ensure the maintainance of PM analysers equivalence over the time, local network managers periodically have to participate, with their own instruments, to intercomparisons with ISPRA's National Reference Laboratory, which, in turn, takes part in European circuits. This work ensures PM measures traceability for the OMSle of Europe, within the data quality objectives of the 2008/50/EC Directive.

From 2010 to 2019 ARPAV Regional Air Observatory (ORAR) has taken part in ISPRA's intercomparisons with its own PM reference instruments. The final purpose is to transfer the traceability to local networks instruments. In this work, the first results about local PM<sub>10</sub> instruments intercomparisons conducted by ORAR are shown. The results reveal a first knowledge of local PM<sub>10</sub> instruments quality level. Furthermore, the same methods, applied in order to purchase new instruments, were essential in accepting the supply. 1 –

## Introduzione

Il presente documento illustra i risultati degli interconfronti condotti sulla frazione di particolato PM<sub>10</sub> organizzati da ARPAV Osservatorio Regionale Aria (di seguito ORAR), presso alcune stazioni di monitoraggio della Rete Regionale di Qualità dell'Aria del Veneto. Si tratta di una prima serie di interconfronti programmati da ORAR tra il 2017 e il 2020 con la collaborazione dei Dipartimenti ARPAV Provinciali, per ottemperare a quanto richiesto dal D.Lgs. n. 155/2010, come modificato dal D.Lgs. n. 250/2012 (D.Lgs. n. 155/2010; D.Lgs. 250/2012). Infatti, tale decreto richiede, alle Istituzioni che gestiscono le reti di monitoraggio, la partecipazione a programmi di garanzia della qualità a livello nazionale, e successivamente la verifica anche a scala locale (regionale e/o provinciale), e il mantenimento nel tempo degli obiettivi di qualità riportati all'allegato I, secondo le procedure della "Guide to the demonstration of equivalence of ambient air monitoring methods" (Guide, 2010). È noto infatti che la misura delle frazioni di

particolato atmosferico PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> in aria ambiente, descritta nella norma UNI EN 12341:2014 (UNI EN 12341, 2014), non può essere considerata riferibile in modo rigoroso alle unità del Sistema Internazionale (SI), nonostante le grandezze fisiche che la compongono lo siano (massa, flusso e tempo), in quanto il metodo di campionamento è definito per convenzione attraverso una ben specificata geometria della testa di prelievo. Per questo motivo è richiesta ai Laboratori Nazionali di Riferimento la partecipazione ai circuiti organizzati dal Laboratorio Europeo di Riferimento (JRC-IES-ERLAP) e ai gestori delle reti la partecipazione ai circuiti organizzati dai rispettivi Laboratori Nazionali.

Dal 2010 ad oggi ISPRA, in qualità di Laboratorio Nazionale di Riferimento per la Qualità dell'Aria in Italia, ha organizzato una serie di circuiti di interconfronto a cui le varie agenzie regionali e provinciali hanno partecipato, ciascuna con strumentazione utilizzata nelle rispettive reti. In questi dieci anni il laboratorio di ISPRA ha svolto un notevole lavoro nell'organizzare e condurre interconfronti sugli inquinanti della qualità dell'aria (non solo per le polveri), che sono diventati anche importanti occasioni di scambio su aspetti tecnici comuni tra i vari partecipanti, in un clima di aperta condivisione delle informazioni. Per ARPAV, l'ORAR ha impiegato i propri laboratori mobili partecipando alla maggior parte degli interconfronti. In tali circuiti, per motivi logistici, le Agenzie possono mettere in campo un numero limitato di strumenti, pertanto si rende necessario estendere successivamente le prove a ciascuna rete mediante degli interconfronti interni.

Le prove e i criteri di valutazione adottati negli interconfronti interni sono stati inoltre estesi anche alla verifica di conformità degli strumenti automatici di nuovo acquisto, come richiesto dal D.M. 30 marzo 2017 (D.M. 30 marzo 2017).

In entrambe le tipologie di prove lo scopo finale è la verifica dell'obiettivo di qualità del 25% di incertezza massima (D.Lgs. n. 155/2010): se questo non viene rispettato è necessario intervenire con opportune correzioni sugli strumenti e sui dati.

## Metodi

Nella conduzione delle prove sono state seguite le indicazioni riportate nella "Guide to the demonstration of equivalence of ambient air monitoring methods" (di seguito Guide (Guide, 2010)) e i contenuti delle norme UNI EN 12341:2014 (metodo gravimetrico di riferimento per la misura di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub>, (UNI EN 12341,2014)), UNI EN 16450:2017 (metodi automatici per la misura di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub>, (UNI EN 16450, 2017)), e infine il D.M. 30 marzo 2017 (Procedure di garanzia di qualità per verificare il rispetto della qualità delle misure dell'aria ambiente, effettuate nelle stazioni delle reti di misura, (D.M. 30 marzo 2017)). Si è inoltre attinto all'esperienza maturata nella partecipazione ai circuiti di interconfronto nazionali organizzati da ISPRA e ai vari report emessi (Report ISPRA, 2019). La Guide (Guide, 2010), nel capitolo 9, prevede che periodicamente ciascun analizzatore delle reti regionali e/o provinciali sia sottoposto ad un interconfronto con due strumenti di riferimento gravimetrici, per un totale di 80 giorni equamente distribuiti nell'arco di un anno, in cui almeno il 20% dei dati abbia concentrazione superiore alla soglia di valutazione superiore per il valore limite annuale del PM<sub>10</sub> (cioè 28 µg/m<sup>3</sup>). Gli strumenti di riferimento ideali sono quei campionatori che abbiano partecipato ad uno o più interconfronti a livello nazionale e di cui si conoscono lo scostamento e l'incertezza rispetto ai campioni primari del laboratorio di ISPRA. I parametri che si ottengono come risultato degli interconfronti sono:

- la retta di regressione ortogonale (intercetta, coefficiente angolare e coefficiente di determinazione R<sup>2</sup>);
- l'incertezza tra campionatori (between sampler, u<sub>bs</sub>);
- l'incertezza del metodo di misura per confronto con il metodo di riferimento effettuato in accordo alla Guide (Guide, 2010).

La retta di regressione ortogonale, nella forma  $y = a + bx$ , i cui coefficienti a e b sono calcolati in modo diverso dalla regressione ordinaria dei minimi quadrati, tiene conto

degli errori di entrambe le variabili x e y: essa rappresenta la relazione esistente tra le misure di riferimento (x) e le misure dello strumento candidato (y). La valutazione del coefficiente angolare e dell'intercetta viene effettuata secondo i seguenti criteri:

- il coefficiente angolare "b" deve essere non significativamente differente da 1:

$$|b-1| \leq 2 u(b)$$

- l'intercetta "a" deve essere non significativamente differente da 0:

$$|a| \leq 2 u(a)$$

dove u(b) e u(a) sono rispettivamente le incertezze tipo del coefficiente angolare e dell'intercetta, calcolate come la radice quadrata delle loro varianze. Le formule per il calcolo dei parametri a e b e le relative incertezze u(a) e u(b) si trovano in appendice alla Guide (Guide, 2010) e non vengono qui riportate. La valutazione del coefficiente di determinazione R<sup>2</sup> è stata condotta in analogia a ISPRA, che nei suoi report sugli interconfronti nazionali considera accettabili valori di R<sup>2</sup> maggiori o uguali a 0,950 (Report ISPRA, 2019).

La stima dell'incertezza between sampler (u<sub>bs</sub>) rispetto al campionatore di riferimento di ORAR, è stata ottenuta tramite la seguente equazione, che fornisce lo scarto medio quadrato tra le misure dei due strumenti (di riferimento e candidato):

$$u_{bs}^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (X_{i,1} - X_{i,2})^2}{2n} \quad (1)$$

Dove

X<sub>i,1</sub> = valore di PM<sub>10</sub> del giorno i-esimo misurato dallo strumento 1

X<sub>i,2</sub> = valore di PM<sub>10</sub> del giorno i-esimo misurato dallo strumento 2

n = numero di risultati delle medie giornaliere.

Questo parametro permette di avere una stima della variabilità tra campionatori, dovuta alle differenze delle misure in campo. I valori ottenuti di  $u_{bs}$  sono stati confrontati con quelli rilevati dal laboratorio di riferimento europeo JRC-IES-ERLAP in analoghi interconfronti a livello europeo e con i risultati ottenuti negli interconfronti nazionali condotti da ISPRA.

La stima dell'incertezza dei risultati dei metodi di misura in esame derivante dal confronto con il metodo di riferimento è stata effettuata, in accordo alla citata linea guida europea, utilizzando la seguente equazione, che descrive l'incertezza in funzione della concentrazione di particolato atmosferico  $x_i$ :

$$u_{CR}^2 = \frac{RSS}{(n-2)} + u^2(x_i) + [a + (b-1)x_i]^2 \quad (2)$$

dove

RSS = somma dei residui relativi derivanti dalla regressione ortogonale;

$u(x_i)$  = incertezza dei risultati del metodo di riferimento calcolata come  $u_{bs, RM}/\sqrt{2}$ , dove  $u_{bs, RM}$  è l'incertezza tra campionatori di riferimento ottenuta dall'equazione 1; nel caso specifico non è stato possibile determinare tale incertezza per via dell'uso di un solo campionario di riferimento per interconfronto, pertanto la guida europea consiglia di usare al posto di  $u^2(x_i)$  il valore di  $0.67 (\mu\text{g}/\text{m}^3)^2$ ;

$a$  e  $b$  sono rispettivamente l'intercetta e il coefficiente angolare della retta di regressione ortogonale;

$u_{CR}^2$  è stata calcolata per un valore di  $x_i$  pari a  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  per il  $\text{PM}_{10}$ .

La somma dei residui relativi è calcolata a sua volta con la seguente equazione:

$$RSS = \sum_{i=1}^n (y_i - a - bx_i)^2 \quad (3)$$

Quindi l'incertezza estesa relativa del metodo di misura in esame viene calcolata con la seguente equazione:

$$U_{CM} = k \sqrt{\frac{u_{CR}^2(y_i)}{y_i^2}} \quad (4)$$

dove

$k$  = fattore di copertura pari a 2.

Ai fini della valutazione del rispetto degli obiettivi di qualità, l'incertezza del metodo di misura relativa al  $\text{PM}_{10}$  deve essere calcolata per un valore di  $y_i = 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Tale valore viene confrontato con il valore dell'obiettivo di qualità per l'incertezza di misura fissato dal D.Lgs. 155/2010, pari al 25%.

In questa prima fase esplorativa della rete, non avendo ancora a disposizione strumenti di riferimento dedicati esclusivamente ad attività di controllo qualità, la scelta è ricaduta su tre campionatori gravimetrici normalmente utilizzati per campagne di misura sul territorio, i quali non sono stati utilizzati di recente nei circuiti nazionali di ISPRA. Inoltre, per poter coprire un maggior numero di stazioni su cui condurre gli interconfronti, è stato scelto di utilizzare un solo campionario per volta anziché due come richiesto dalla Guida (Guida, 2010). Per analoghi motivi la durata degli interconfronti è stata limitata a circa 40 giorni, scelti in periodi dell'anno, tipicamente tra l'inizio di ottobre e la fine di marzo, con valori elevati di  $\text{PM}_{10}$ , al fine di soddisfare il criterio che almeno il 20 % dei dati sia superiore alla soglia di valutazione inferiore per il  $\text{PM}_{10}$ , e consentendo di esplorare un intervallo di concentrazioni compreso tra circa 20 e 80-100  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , in cui entrambi i valori limite di legge del  $\text{PM}_{10}$  sono compresi. Prima dell'inizio di ogni interconfronto sono stati verificati il flusso, la temperatura e la pressione ambiente, misurati alla testa di campionamento degli strumenti di riferimento, e valutati in base alla norma sul  $\text{PM}_{10}$  (UNI EN 12341, 2014). Sono stati inoltre utilizzati due filtri bianchi da campo, pesati in laboratorio e posti nel campionario per tutta la durata di ciascun interconfronto. Al termine delle attività, tali filtri sono stati ripesati e le differenze sono state valutate come richiesto dalla norma sul  $\text{PM}_{10}$  (UNI EN 12341, 2014): sono ammesse differenze fino a 60  $\mu\text{g}$ , mentre valori più elevati meritano un approfondimento. Con criteri di lavoro

simili a quelli sopra esposti sono state condotte, su un numero di giorni variabile (20-90), le prove per il rilascio della dichiarazione di conformità di alcune recenti forniture di analizzatori automatici, di cui saranno sinteticamente riportati i risultati. Per le prove sono stati utilizzati come riferimenti strumenti diversi da quelli impiegati negli interconfronti di cui sopra; in particolare, in alcuni casi i confronti sono stati effettuati tra le concentrazioni fornite dagli analizzatori e i valori ottenuti pesando in laboratorio i filtri campionati dagli stessi, senza l'impiego di ulteriori strumenti gravimetrici. Anche se questo modo di operare non è contemplato nelle norme di riferimento sul PM (UNI EN 12341, 2014; UNI EN 16450, 2017) e nella Guide (Guide, 2010), si è rivelato comunque adatto per gli scopi prefissati.

## Risultati

I tre strumenti utilizzati come riferimento negli interconfronti sono costituiti da due campionatori TCR Tecora mod. Charlie+Sentinel, ciascuno installato all'interno di automezzi Fiat Doblò cargo, adattati a laboratori mobili e denominati "D407" e "D409", e un terzo campionatore TCR Tecora mod. Skypost (da esterno), denominato "SKY1". Tutti gli strumenti sono dotati di testa PM<sub>10</sub> a geometria CEN, secondo la norma EN 12341:1998, operanti ad un flusso di 2,3 m<sup>3</sup>/h. La scelta delle stazioni dove condurre gli interconfronti è stata fatta in accordo con i gestori delle reti dipartimentali, valutando la disponibilità di alimentazione elettrica per gli strumenti e lo spazio a disposizione nei pressi delle cabine (aree pubbliche, parcheggi) per il posizionamento dei due laboratori mobili D407 e D409. Le singole stazioni esaminate sono state rinominate per comodità con la sigla della Provincia in cui sono dislocate, seguita da un numero sequenziale e da una lettera che indica il tipo di strumento indagato, 'A' per strumenti automatici e 'M' per quelli che impiegano il metodo gravimetrico manuale. I risultati del lavoro sono riportati sinteticamente in Tabella 13.2.1, in cui in prima colonna compare il codice assegnato alle singole stazioni/strumenti, con l'aggiunta della frazione di

particolato misurato PM<sub>10</sub> e del campionatore di riferimento usato (D407, D409 o SKY1). Per ciascuna stazione, nelle successive colonne sono riportati i principali parametri della retta di regressione (coefficiente angolare  $b$ , intercetta  $a$  e coefficiente di determinazione  $R^2$ ), l'incertezza between sampler  $u_{bs}$ , l'incertezza estesa relativa del metodo al valore limite  $U_{CM}$  % e il numero di coppie di dati per ciascun interconfronto; infine, in ultima colonna, è riportata una sintetica valutazione nel caso uno o più parametri escano dagli intervalli di accettabilità: quando è indicato che  $a$  o  $b$  o entrambi sono significativi si intende che, secondo i criteri della Guide (Guide, 2010), espressi nel paragrafo precedente, tali parametri risultano essere rispettivamente diversi da 0 o da 1 in modo statisticamente significativo. In ultima riga compare l'interconfronto denominato "ORAR1M", che consiste in una prova eseguita mettendo in parallelo entrambi i campionatori dei laboratori mobili D407 e D409 per un periodo limitato di 22 giorni, come utile parametro di confronto per tutti gli altri. Nel calcolo di tutti i parametri di Tabella 13.2.1 (ma anche per Tabella 13.2.2) sono state utilizzate le formule da (1) a (4), oltre a quelle per i coefficienti della retta di regressione e di determinazione (Guide, 2010), e inserite in un opportuno foglio di calcolo.

Con criteri analoghi a quelli di Tabella 13.2.1, sono riportati in Tabella 13.2.2 i risultati delle prove per il rilascio della dichiarazione di conformità di strumenti automatici per la misura di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2.5</sub> acquistati da ARPAV tra il 2017 e il 2019. Gli strumenti di riferimento impiegati di volta in volta sono stati dei campionatori TCR Tecora o Zambelli, indicati in tabella, con i quali gli stessi gestori provinciali hanno condotto le prove, mentre ORAR si è occupato di valutarne i risultati. Nella codifica delle stazioni di Tabella 13.2.2 è stata aggiunta la dicitura "Ripesato" quando il confronto è avvenuto tra dati automatici e dati gravimetrici, questi ultimi ottenuti dagli stessi filtri dell'analizzatore, pesati anche in laboratorio; in alternativa è stato indicato il campionatore usato come riferimento, TCR Tecora o Zambelli. Sono stati verificati analizzatori per la misura sia di PM<sub>10</sub> che di PM<sub>2.5</sub>.

Tabella 13.2.1 – Risultati interconfronti PM<sub>10</sub> ORAR 2017-20

Codice Stazione/ strumento	Parametri regressione ortogonale			Incertezza <i>between sampler</i> $u_{bs}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	Incertezza estesa relativa del metodo al valore limite $U_{CM}$ (%)	N. coppie di dati	Valutazione
	Coeff. angolare $b \pm u(b)$	Intercetta $a \pm u(a)$	Coeff. determinazione $R^2$				
TV1M-PM <sub>10</sub> D409	0,946 ± 0,015	0,585 ± 0,775	0,991	2,31	11,9%	42	b significativo
TV1A-PM <sub>10</sub> D409	1,079 ± 0,021	-4,565 ± 1,133	0,984	2,62	13,0%	42	a e b significativi
TV2M-PM <sub>10</sub> D409	0,934 ± 0,016	1,648 ± 0,714	0,986	2,35	12,3%	53	a e b significativi
BL1A-PM <sub>10</sub> D407	1,086 ± 0,047	-4,701 ± 2,027	0,928	3,14	17,3%	40	$R^2 < 0,950$
PD1M-PM <sub>10</sub> D407	0,973 ± 0,014	-1,398 ± 0,565	0,993	2,02	12,1%	36	a significativo
PD2A-PM <sub>10</sub> D407	1,017 ± 0,027	-1,719 ± 1,095	0,972	2,47	13,7%	42	---
VR1A-PM <sub>10</sub> SKY1	1,003 ± 0,024	-1,322 ± 1,069	0,973	2,58	14,5%	50	---
ORAR1M-PM <sub>10</sub> D407-D409	1,015 ± 0,012	0,308 ± 0,626	0,997	1,09	5,4%	22	---

Tabella 13.2.2 – Risultati verifiche di conformità ARPAV per nuovi analizzatori di PM<sub>10</sub>/PM<sub>2,5</sub>, anni 2017-2020

Codice Stazione/ strumento	Parametri regressione ortogonale			Incertezza <i>between sampler</i> $u_{bs}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	Incertezza estesa relativa del metodo al valore limite $U_{CM}$ (%)	N. coppie di dati	Valutazione
	Coeff. angolare $b \pm u(b)$	Intercetta $a \pm u(a)$	Coeff. di determinazione $R^2$				
RO1A-PM <sub>10</sub> Ripesato	1,036 ± 0,040	-0,526 ± 1,720	0,971	2,58	15,4%	21	---
VE1A-PM <sub>2,5</sub> Tecora	1,039 ± 0,013	-0,324 ± 0,631	0,986	2,32	19,8%	91	b significativo
VE1A-PM <sub>10</sub> Zambelli	1,073 ± 0,017	1,225 ± 0,884	0,978	4,37	24,4%	95	b significativo
VE2A-PM <sub>10</sub> Ripesato	1,019 ± 0,014	2,959 ± 0,619	0,994	3,07	18,2%	33	a significativo
VE2A-PM <sub>2,5</sub> Ripesato	1,018 ± 0,031	2,152 ± 0,698	0,973	2,16	20,9%	31	a significativo
VI1A-PM <sub>2,5</sub> Tecora	1,071 ± 0,027	-0,267 ± 0,936	0,98	2,03	17,4%	32	b significativo
VI1A-PM <sub>10</sub> Ripesato	0,959 ± 0,041	2,541 ± 1,763	0,948	2,60	14,0%	31	$R^2 < 0,950$
BL2A-PM <sub>10</sub> Ripesato	0,983 ± 0,040	0,320 ± 0,955	0,955	1,72	9,6%	29	---

## Discussione

La Guide (Guide, 2010) detta i criteri di valutazione per stabilire l'equivalenza di un metodo di misura candidato rispetto ai metodi di riferimento dei singoli inquinanti di qualità dell'aria (inquinanti gassosi e particolato). Gli stessi criteri valgono sia che lo strumento candidato sia sottoposto per la prima volta ad una certificazione di equivalenza, sia che venga testato a seguito di un acquisto da parte delle Agenzie per l'Ambiente o, ancora, in caso di verifica del mantenimento nel tempo dell'equivalenza, come richiesto dalle norme sugli inquinanti dell'aria in generale e nello specifico da quelle sul particolato (UNI EN 12341, 2014; UNI EN 16450, 2017), oltre al DM 30 marzo 2017 (D.M. 30 marzo 2017). Le prove che ORAR ha condotto su alcuni strumenti della Rete Regionale di Qualità dell'Aria del Veneto si collocano in questi ultimi due casi. Nella valutazione dell'equivalenza, la Guide (Guide, 2010) stabilisce quale criterio primario la verifica del rispetto dell'obiettivo di qualità (Data Quality Objective, DQO) in prossimità del valore limite. Per il particolato PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> equivale a

rispettare il limite del 25% di incertezza riportato nell'allegato I del D.Lgs. 155/10 (D.Lgs. n. 155/2010). L'incertezza calcolata con la formula (4), pur non contemplando in modo esatto il contributo derivante dai campionatori usati da ORAR rispetto al riferimento nazionale di ISPRA, può essere comunque considerata una buona approssimazione dell'incertezza complessiva del metodo. Se questa incertezza ottenuta nei singoli interconfronti risulta essere inferiore al 25%, l'equivalenza è dimostrata, altrimenti si deve applicare una correzione ai dati attraverso l'inversa dell'equazione di regressione ortogonale e verificare nuovamente il rispetto dell'incertezza ricalcolata con i nuovi valori ottenuti. Anche se non richiesto dalla Guide, ISPRA nei suoi report (Report ISPRA, 2019) valuta anche il coefficiente di determinazione R<sup>2</sup>, che per valori al di sotto di 0,950 può indicare una dispersione eccessiva dei dati dovuta a problemi strumentali o di laboratorio (nel caso di strumenti gravimetrici).

Tabella 13.2.3 – Confronto tra i valori di incertezza between sampler ottenuti negli interconfronti di ORAR sul PM<sub>10</sub> e quelli medi ottenuti dal JRC

	confronto gravimetrico/gravimetrico (U <sub>bs</sub> ) medio	confronto gravimetrico/automatico (U <sub>bs</sub> ) medio
JRC/NRLs (medio)	2.62	4.52
JRC/local networks (medio)	3.56	7.61
	confronto gravimetrico/gravimetrico (U <sub>bs</sub> )	confronto gravimetrico/automatico (U <sub>bs</sub> )
TV1M-PM <sub>10</sub> -D409	2,31	---
TV1A-PM <sub>10</sub> -D409	---	2,62
TV2M-PM <sub>10</sub> -D409	2,35	---
BL1A-PM <sub>10</sub> -D407	---	3,14
PD1M-PM <sub>10</sub> -D407	2,02	---
PD2A-PM <sub>10</sub> -D407	---	2,47
VR1A-PM <sub>10</sub> -SKY1	---	2,58
ORAR1M-PM <sub>10</sub> -D407-D409	1,09	---

Scostamenti eccessivi dei coefficienti della retta di regressione dai rispettivi limiti si riflettono sull'incertezza complessiva e sono quindi valutati in considerazione di questa, ma non in modo vincolante. Infine l'incertezza *between sampler*  $u_{bs}$  è valutata per confronto con i valori medi registrati dal laboratorio di riferimento europeo (JRC-IES-ERLAP) nel corso degli interconfronti organizzati con i laboratori nazionali e le reti locali (Report ISPRA, 2019), (Tabella 13.2.3).

Fatte le dovute premesse, in Tabella 13.2.1 è evidente che l'obiettivo di qualità per l'incertezza  $U_{CM}$  è stato rispettato in tutti gli interconfronti, con valori sempre inferiori al 25%; a parte il valore più basso pari a 5,4%, ottenuto per confronto tra i due campionatori usati per riferimento, tutti gli altri variano da un minimo di circa 12 ad un massimo di circa 17 %. Le tre stazioni in cui sono stati confrontati campionatori manuali, TV1M, TV2M e PD1M, presentano le incertezze minime, circa il 12 %, mentre gli altri siti in cui sono stati confrontati analizzatori automatici (TV1A, BL1A, PD2A, VR1A), presentano incertezze mediamente un po' più alte. I coefficienti di determinazione  $R^2$  sono tutti maggiori di 0,950, indicando una buona correlazione, ad eccezione dello strumento automatico della stazione BL1A che risulta pari a 0,928. Questo coefficiente così basso è dovuto alla presenza di un outlier nella serie di dati, evidente nel grafico di dispersione di Figura 13.2.3. Se questo dato viene eliminato, infatti, la correlazione diventa paragonabile a quella riscontrata negli altri interconfronti. I parametri della retta di regressione, ovvero il coefficiente angolare  $b$  e l'intercetta  $a$ , risultano in alcuni casi significativamente diversi da 1 o da 0, rispettivamente, ma poiché è stata rispettata l'incertezza massima, non è stato necessario applicare nessuna correzione ai dati. La Tabella 13.2.3 mette in evidenza per l'incertezza *between sampler*  $u_{bs}$ , una situazione pienamente in linea o addirittura migliore rispetto a quanto riscontrato negli interconfronti del laboratorio di riferimento europeo JRC-IES-ERLAP con le altre reti nazionali.

Un breve accenno sui risultati relativi ai filtri bianchi di campo utilizzati negli interconfronti: le differenze di peso

osservate oscillano da un minimo di 5 fino ad un massimo di 105  $\mu\text{g}$ , con valori che si assestano mediamente intorno a 44  $\mu\text{g}$ . Solo in due casi i valori sono stati superiori ai 60  $\mu\text{g}$  accettabili secondo la norma sul particolato (UNI EN 12341, 2014). In particolare il valore massimo di 105  $\mu\text{g}$  è stato riscontrato presso la stazione di BL1A. Al momento non si possono trarre conclusioni in merito a questo caso isolato, ma sarà sicuramente oggetto di approfondimenti futuri.

In Tabella 13.2.2 tutti gli strumenti nuovi hanno rispettato l'obiettivo di qualità relativo all'incertezza, anche se è evidente che in media i valori di  $U_{CM}$  sono più alti di quelli riscontrati in Tabella 13.2.1. Ciò è dovuto in parte al fatto che alcune prove sono state condotte in periodi dell'anno (estate) con concentrazioni di polveri molto basse e in parte perché sono stati usati strumenti e metodi diversi rispetto agli interconfronti condotti direttamente da ORAR (strumenti gravimetrici e ripese dei filtri degli analizzatori). Entrambi i fattori hanno contribuito ad aumentare la dispersione dei dati che ha quindi inficiato la stima dell'incertezza. Altri aspetti che vanno considerati nelle verifiche di conformità di Tabella 13.2.2 sono: l'aver testato unicamente analizzatori automatici, di cui alcuni per la frazione  $\text{PM}_{2,5}$ , il diverso numero di giorni di campionamento e il personale che si è avvicinato nelle prove. È risaputo che in genere gli analizzatori automatici presentano una variabilità maggiore nelle misure rispetto al metodo gravimetrico che si riflette in una maggiore incertezza, aspetto già evidenziato in Tabella 13.2.1. La determinazione del  $\text{PM}_{2,5}$  è sicuramente una misura più sensibile del  $\text{PM}_{10}$  al variare delle condizioni e richiede quindi una gestione più attenta. Il diverso numero di giorni di test e il personale impiegato non sembrano aver contribuito in modo sostanziale. Il numero di giorni di campionamento è molto variabile, da un minimo di 21 per RO1A ad un massimo di 95 per VE1A, ma ciò non sembra evidenziare differenze sistematiche nei risultati. Nel complesso le incertezze variano da un minimo di 9,6% per BL2A fino ad un massimo di 24,4% per VE1A. Il coefficiente di determinazione  $R^2$  risulta molto buono per tutti gli strumenti testati ad eccezione di VI1A, che pur

possedendo un'incertezza accettabile, presenta un  $R^2$  leggermente inferiore a 0,950. Analogamente ai casi di Tabella 13.2.1, anche in Tabella 13.2.2 compaiono come significativi alcuni coefficienti della retta di regressione di alcuni strumenti testati, ma non vi è stata necessità di apportare correzioni sui dati per via del rispetto dell'incertezza massima UCM. Infine, l'incertezza between sampler abs, anche se non riportata in Tabella 13.2.3, risulta mediamente in linea con quella di Tabella 13.2.1 e con i valori medi riscontrati dal JRC-IES-ERLAP.

Si riportano infine i grafici di dispersione relativi ad alcuni degli interconfronti di Tabella 13.2.1 (Figure da 1 a 4). La Figura 13.2.1 mostra il grafico di dispersione e la retta di regressione ortogonale relativi ai dati di  $PM_{10}$  misurati in parallelo per 22 giorni dagli strumenti di ORAR usati

come riferimenti negli interconfronti, in cui si può notare l'elevata linearità dei punti. La Figura 13.2.2 riporta il grafico relativo all'interconfronto del campionatore gravimetrico TV1M, in cui la linearità è buona ma si nota una leggera sottostima alle medio-alte concentrazioni. Nelle Figure 3 e 4 sono riportati i casi di due analizzatori automatici, BL1A e PD2A, in cui nonostante la buona linearità, è evidente una maggiore dispersione dei punti rispetto ai grafici precedenti. Inoltre in Figura 13.2.3 si nota pure un punto più distante dalla retta di regressione che è un evidente outlier, come già discusso in precedenza a proposito del basso coefficiente di determinazione di questo interconfronto.

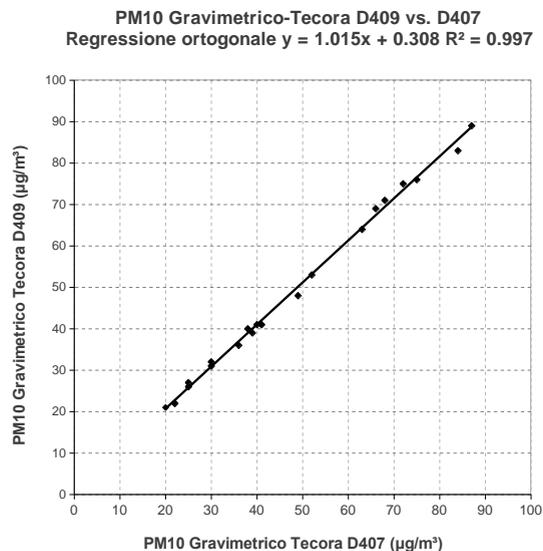


Figura 13.2.1. Grafico di dispersione dei dati dell'interconfronto tra strumenti di riferimento di ORAR.

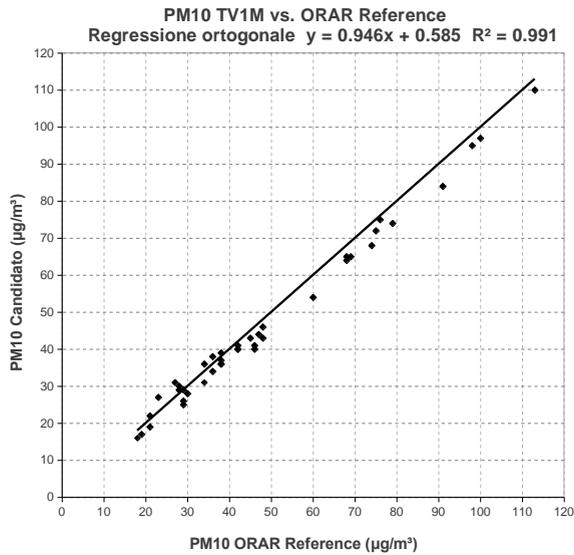


Figura 13.2.2. Grafico di dispersione dei dati dell'interconfronto tra TV1M e riferimento di ORAR.

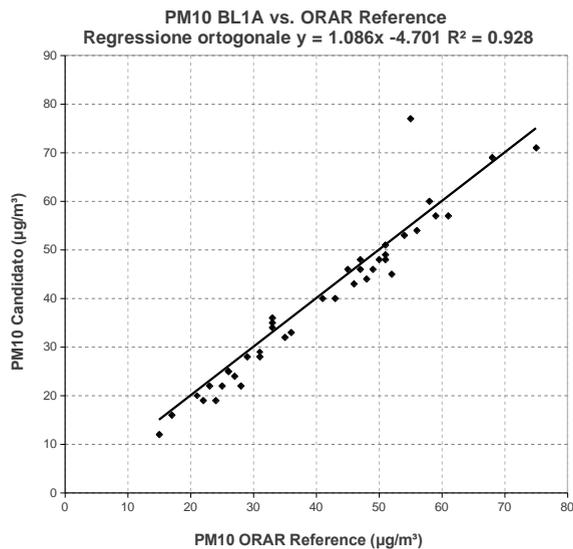


Figura 13.2.3. Grafico di dispersione dei dati dell'interconfronto tra BL1A e riferimento di ORAR.

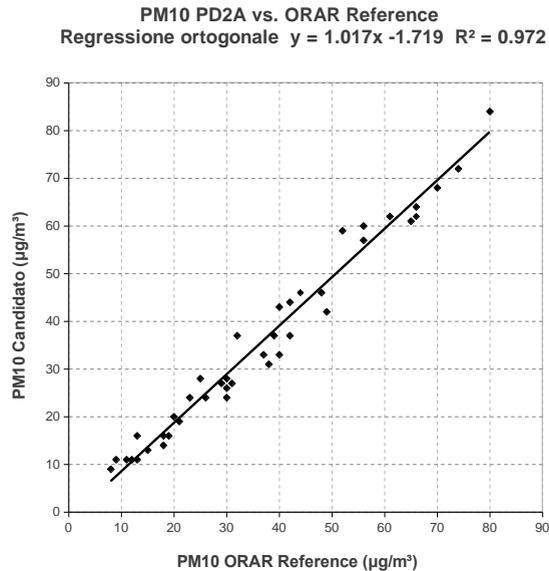


Figura 13.2.4. Grafico di dispersione dei dati dell'interconfronto tra PD2A e riferimento di ORAR.

## Conclusioni

Questa prima fase esplorativa dello stato di qualità delle misure di particolato PM<sub>10</sub> presso alcune stazioni della rete aria di ARPAV ha portato a risultati molto positivi e ha posto le basi per un modo di operare che dovrà diventare una prassi. I risultati degli interconfronti condotti sui campionatori gravimetrici hanno confermato la buona affidabilità delle misure con questo metodo attraverso un iter iniziato con la partecipazione di ORAR ai circuiti nazionali organizzati da ISPRA.

La necessità di fornire dati di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> in tempo reale per l'informazione alla popolazione, ha portato ARPAV a dotarsi sempre di più di analizzatori automatici. Tali strumenti necessitano però di controlli periodici per confermare l'equivalenza al metodo di riferimento gravimetrico. Deviazioni sistematiche anche contenute degli strumenti automatici rispetto ai gravimetrici, seppur all'interno dell'incertezza massima di legge, possono portare ad un errato calcolo degli indicatori di qualità dell'aria che si riflettono poi sulle azioni per la riduzione

dell'inquinamento da polveri. Sulla base dei primi risultati ottenuti si intende quindi rafforzare l'attività di interconfronto, estendendola a tutti gli analizzatori e comprendendo anche le misure di PM<sub>2,5</sub>. Recentemente è stata implementata una funzionalità software all'interno del sistema centrale di validazione dei dati di qualità dell'aria di ARPAV, che consentirà in modo automatico di apportare ai dati di PM le correzioni derivanti dalle regressioni ortogonali degli interconfronti.

La stessa metodologia applicata ai nuovi analizzatori acquistati si è rivelata uno strumento imprescindibile per il rilascio delle dichiarazioni di conformità, ottemperando anche al DM 30 marzo 2017 (D.M. 30 marzo 2017), il quale richiede che all'atto di una nuova installazione in stazione sia verificato che le condizioni sito-specifiche consentano di rispettare gli obiettivi di qualità del D.Lgs. 155/10 (D.Lgs. n. 155/2010).

## Ringraziamenti

Dipartimento Laboratori (ARPAV) : Marina Raris,  
Gianmaria Formenton

Dipartimenti ARPAV Provinciali: Riccardo Tormen,  
Massimo Simionato, Claudia Iuzzolino, Enzo Tarabotti,

Luca Coraluppi, Ermes Zanella, Silvia Rebeschini,  
Antonella Pagano, Enrico Cosma, Roberta Millini,  
Antonio Carollo, Andrea Salomoni.

**Bibliografia**

D.Lgs. n. 155/2010, "Attuazione della direttiva 2008/50/CE relativa alla qualità dell'aria ambiente e per un'aria più pulita in Europa".

D.Lgs. 250/2012, "Modifiche ed integrazioni al decreto legislativo 13 agosto 2010, n. 155, recante attuazione della direttiva 2008/50/CE relativa alla qualità dell'aria ambiente e per un'aria più pulita in Europa".

D.M. 30 marzo 2017 - "Procedure di garanzia di qualità per verificare il rispetto della qualità delle misure dell'aria ambiente, effettuate nelle stazioni delle reti di misura".

"Guide to the demonstration of equivalence of ambient air monitoring methods", January 2010.

Report degli interconfronti ISPRA, Misure delle frazioni di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2,5</sub> di materiale particolato in aria ambiente, Aosta 2010 – IC018 rev4, Roma 2012 – IC022 rev3, Terni 2014 – IC028 rev1, Roma-Castel Romano 2019-IC044.

UNI EN 12341:2014, "Aria ambiente – Metodo gravimetrico di riferimento per la determinazione della concentrazione in massa di particolato sospeso PM<sub>10</sub> o PM<sub>2,5</sub>".

UNI EN 16450:2017, "Aria ambiente – Sistemi di misura automatici per la misurazione della concentrazione del particolato (PM<sub>10</sub>; PM<sub>2,5</sub>)".

### 13.3 ANALISI STATISTICA PER LA VALUTAZIONE DELLA RIDONDANZA DEI DATI DELLE STAZIONI DI MONITORAGGIO DI QUALITÀ DELL'ARIA

Mangiamale L., Crisci A. M., Lovallo M., Esposito R.

ARPA BASILICATA

#### RIASSUNTO

Nell'ambito della predisposizione del Progetto di Adeguamento della rete di misura e del relativo Programma di Valutazione della Regione Basilicata, è stata individuata una metodologia, mediante l'applicazione di analisi statistiche alle serie storiche di dati delle stazioni di monitoraggio di qualità dell'aria, ai fini di valutare quelle stazioni che esprimono misure ridondanti.

Lo studio ha riguardato tutta la rete regionale di qualità dell'aria, costituita da 15 centraline di differente classificazione e tipologia. I parametri oggetto dell'analisi sono stati gli inquinanti gassosi di cui al D.lgs 155/2010, il PM<sub>10</sub> in tutte le quattro aree, oltre al PM<sub>2,5</sub> e all'H<sub>2</sub>S in Val d'Agri.

**Parole chiave:** statistica, inquinante, stazioni di monitoraggio, correlazione.

#### ABSTRACT

In the framework of carrying out of the Basilicata Region Evaluation Program, part of the Project of the monitoring network optimization, a methodology was identify by applying statistical analysis to the historical data of the air quality measurement stations, aiming to identify those stations express redundant measures.

The study concerns the entire regional air quality network which consists of 15 monitoring stations of different classification and type. The parameters analysed are the gaseous pollutants mentioned in the Legislative Decree 155/2010, PM<sub>10</sub> for all the macro-areas, in addition to PM<sub>2,5</sub> and H<sub>2</sub>S for Val d'Agri.

**Keywords:** statistics, pollutant, monitoring stations, correlation.

## Introduzione

Al fine di indagare eventuali ridondanze tra i dati della rete regionale di qualità dell'aria si è ritenuto opportuno condurre uno studio statistico e in tale ottica si è suddiviso il territorio regionale in quattro aree principali (Figura 13.3.1): l'area della Val d'Agri con 5 stazioni (Viggiano-VGZ, Masseria De Blasiis – MDB, Costa Molina Sud 1 – CMS, Viggiano 1 – VG1, Grumento 3 –

GR3), l'area del Vulture-Melfese con 3 stazioni ( Melfi – MEL, Lavello – LAV, San Nicola di Melfi – SNM), l'area del Materano con 3 stazioni (Matera La Martella – LMR, Pisticci – PIS, Ferrandina – FER) e la città di Potenza con 4 stazioni ( San Luca Branca –SLB, Viale dell'Unicef – VLU, Viale Firenze – VLF, C.da Rossellino – ROS).

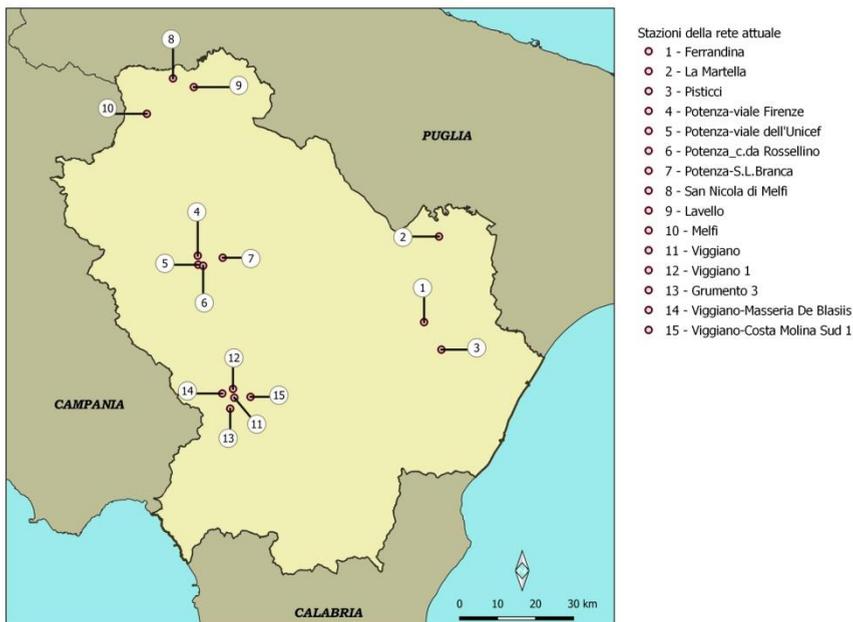


Figura 13.3.1. La rete di monitoraggio della qualità dell'aria in Basilicata. Fonte: elaborazione ARPAB.

Nella Figura 13.3.2 vengono sintetizzati in una tabella, per ogni inquinante e per le quattro aree analizzate, i risultati ottenuti con le analisi statistiche mediante una scala di colori che indica il livello di similarità tra le coppie di stazioni, basato su una valutazione qualitativa. La Tabella 13.3.riporta all'interno delle matrici ciascuna delle quali rappresenta il comportamento di un

determinato inquinante in una determinata zona. L'informazione viene visualizzata sulla parte superiore alla diagonale principale delle matrici per le quali si otterrebbe, essendo simmetriche, la stessa informazione nella parte inferiore alla diagonale principale, che pertanto si presenta di colore grigio. Fa eccezione la matrice relativa alle polveri della Val d'Agri nella quale

vengono sintetizzate le informazioni sia del PM<sub>10</sub> (parte superiore rispetto alla diagonale principale) sia del PM<sub>2,5</sub> (parte inferiore rispetto alla diagonale principale).

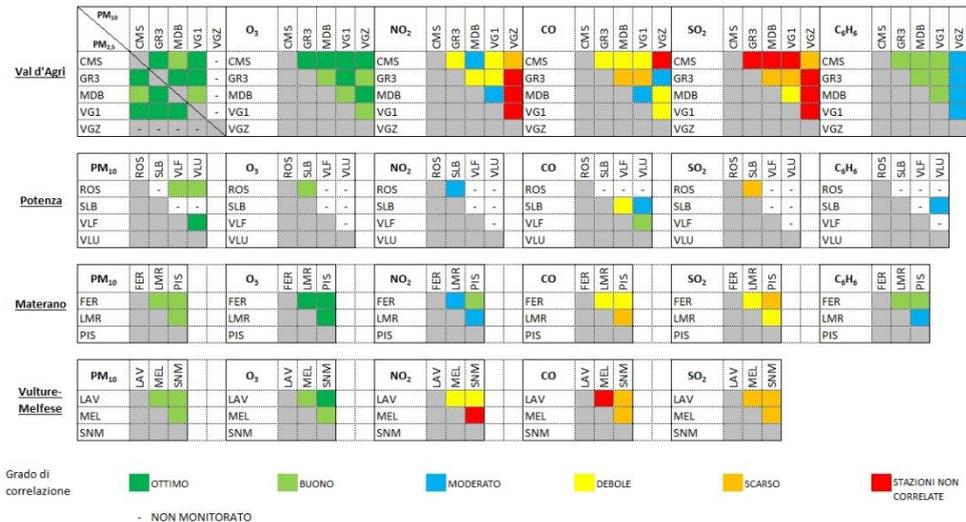


Figura 13.3.2. Tabella 13.3. di sintesi dei risultati ottenuti con le analisi statistiche relativamente agli inquinanti gassosi di cui al D.lgs 155/2010 e al particolato atmosferico. Fonte: elaborazione ARPAB.

## Metodi

L'elaborazione statistica proposta prevede una prima analisi volta ad individuare l'andamento dei dati e consiste nella determinazione della distribuzione di probabilità dei parametri di QA applicando il metodo non parametrico del Kernel, la rappresentazione grafica mediante box-plot e bar-Plot e relativa determinazione dei principali indicatori della statistica descrittiva. In seguito per indagare la ridondanza delle misure si procede con l'analisi della correlazione tra le serie di dati per ogni coppia di stazioni all'interno di una stessa area, la valutazione del grado di accuratezza e di precisione delle precedenti correlazioni tramite il calcolo del coefficiente di Pearson e del coefficiente di concordanza e l'analisi delle componenti principali (PCA – Principal Component Analysis). In ultimo risulta utile lo studio delle serie temporali al fine di individuare alcuni

comportamenti caratteristici degli inquinanti sulla base di particolari periodi di mediazione.

## Risultati

### Particolato Atmosferico

Il particolato atmosferico PM<sub>10</sub>, le cui medie annuali si distribuiscono intorno ai 15-20 µg/m<sup>3</sup>, ha come limite normativo la media giornaliera di 50 µg/m<sup>3</sup>, da non superare più di 35 volte nell'anno civile, e limite annuale 40 µg/m<sup>3</sup>. Nella regione Basilicata, fino ad oggi, si sono avuti soltanto superamenti di 50 µg/m<sup>3</sup> ma non del limite di 35 volte e di quello annuale. Nei casi in cui si verifica la contemporaneità degli incrementi di concentrazione su diverse stazioni della rete di monitoraggio, è frequente che la causa sia il trasporto di polveri desertiche e successiva intrusione a livello locale. Il PM<sub>10</sub> può essere considerato all'interno di tutte le quattro aree,

generalmente correlato ed in maniera più evidente nella Val d'Agri. Allo stesso modo il  $PM_{2,5}$  presenta un comportamento analogo.

Nelle Figure 3 e 4 si riportano le regressioni lineari ottenute per la coppia di stazioni di monitoraggio

Viggiano 1 - Grumento 3 dell'area della Val d'Agri rispettivamente per il  $PM_{10}$  e per il  $PM_{2,5}$ . In entrambi i casi si è ottenuta una correlazione dell'89%.

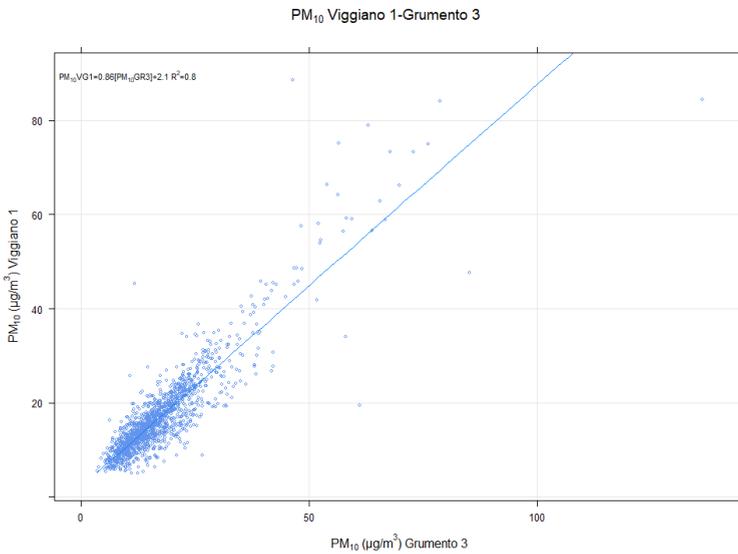


Figura 13.3.3. Regressione lineare per la coppia di stazioni Viggiano 1-Grumento 3 per il parametro  $PM_{10}$ . Fonte: elaborazione ARPAB.

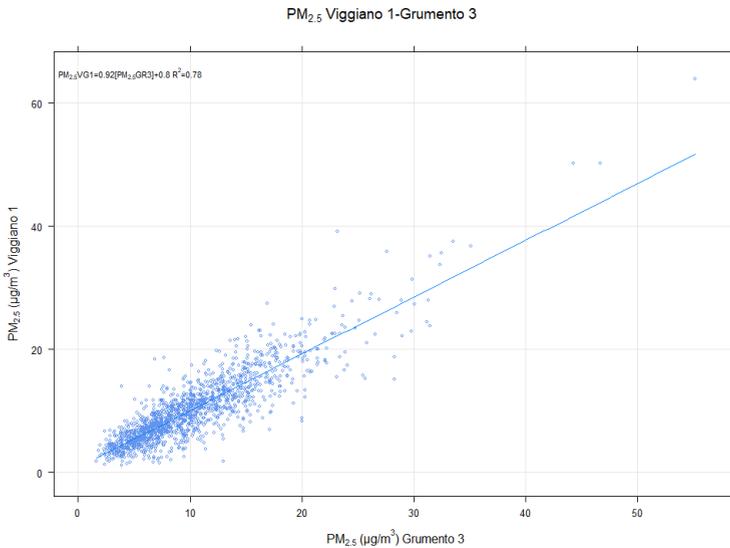


Figura 13.3.4. Regressione lineare per la coppia di stazioni Viggiano 1-Grumento 3 per il parametro PM<sub>2.5</sub>. Fonte: elaborazione ARPAB.

### Ozono

L'ozono (O<sub>3</sub>) è il parametro che in Basilicata presenta frequenti superamenti dei limiti normativi (valore obiettivo per la protezione della salute umana pari a 120 μg/m<sup>3</sup>). È un inquinante secondario che fa parte delle sostanze che costituiscono lo smog fotochimico e non ha un carattere locale, ma piuttosto si distribuisce omogeneamente su scala regionale. Infatti, come si evince dalla Figura 13.3.2, le analisi statistiche, effettuate sia sui dati orari sia sui massimi giornalieri, mostrano una generale correlazione tra le stazioni di una stessa area. Inoltre con una analisi delle componenti principali

applicata a tutte le stazioni della rete, risulta che anche stazioni di aree differenti sono in prima approssimazione correlate tra loro. Infatti, poiché la PCA permette di descrivere il sistema anche con la sola prima componente principale in quanto quest'ultima spiega il 71% della varianza totale, il grafico di Figura 13.3.5 evidenzia che le ascisse dei vettori che rappresentano le stazioni della rete risultano prossime tra loro. In particolare emerge la similarità tra le coppie di stazioni Lavello-Viggiano e Masseria De Blasiis-San Nicola di Melfi appartenenti ad aree differenti della regione.

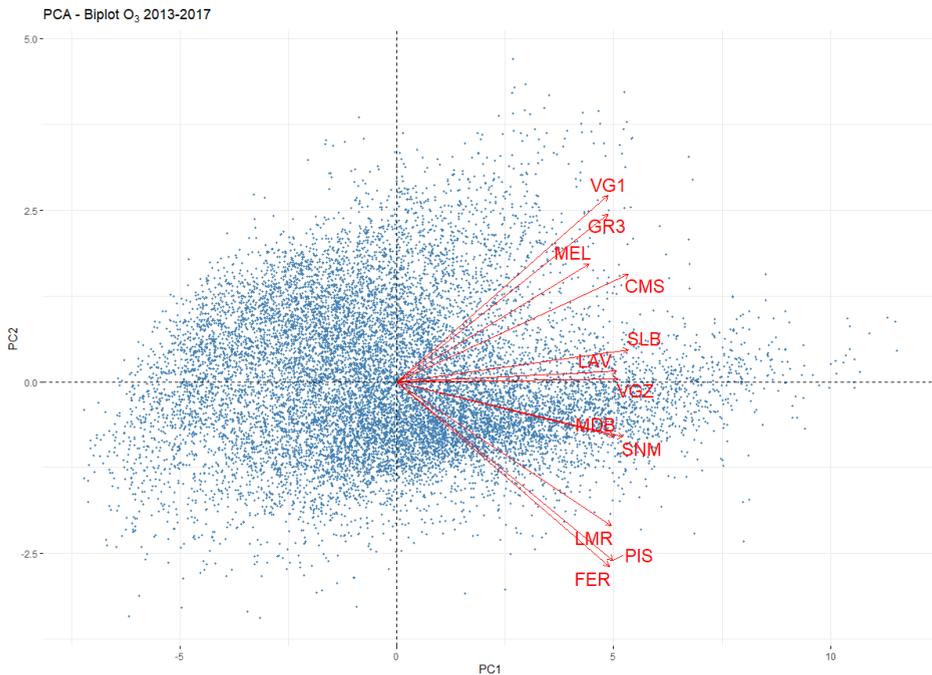


Figura 13.3.5. Grafico Biplot dell'analisi delle componenti principali per il parametro O<sub>3</sub>. Fonte: elaborazione ARPAB.

### Biossido di Azoto

Il limite orario del biossido di azoto (NO<sub>2</sub>) è di 200 µg/m<sup>3</sup> mentre il limite annuale è di 40 µg/m<sup>3</sup>. In Basilicata le medie orarie risultano essere piuttosto al di sotto del limite orario e le medie annuali si distribuiscono intorno ai 10-15 µg/m<sup>3</sup> per le stazioni di monitoraggio dell'area del Materano e della città di Potenza; risultano invece un po' più alte nel Vulture-Melfese, in particolare a Lavello e Melfi, con concentrazioni tra 10 e 25 µg/m<sup>3</sup>; di contro in Val d'Agri risultano più basse, tra 4 e 7 µg/m<sup>3</sup> con l'eccezione della stazione di monitoraggio di Viggiano, le cui medie annuali si distribuiscono intorno ai 12-17 µg/m<sup>3</sup>.

Le analisi statistiche mostrano la presenza di correlazione buona o moderata tra le stazioni all'interno dell'area del Materano, della città di Potenza e tra alcune

stazioni della Val d'Agri; per il resto invece si evince debole, scarsa o assenza di correlazione. Tuttavia dall'analisi delle serie temporali settimanali e giornaliere, per le quali si sono utilizzati come indicatori le medie orarie, si evidenziano due picchi giornalieri, uno tra le 8:00 e le 9:00 e l'altro tra le 21:00 e le 23:00 dai quali è possibile dedurre che la fonte sia il traffico. Si evince inoltre che i picchi diurni del fine settimana risultino generalmente inferiori a quelli dei giorni feriali. Si riporta in Figura 13.3.6 un esempio di grafico delle serie temporali settimanali dell'area del Vulture-Melfese. Si sottolinea che nella stazione di Melfi i picchi sono meno evidenti ma comunque presenti così come in Val d'Agri sono più accentuati quelli delle stazioni di Viggiano e Masseria De Blasiis rispetto ai picchi delle altre stazioni.

I grafici delle serie temporali annuali, ottenuti utilizzando come indicatori le medie giornaliere mostrano

l'andamento stagionale del biossido di azoto per cui le concentrazioni più alte si verificano in inverno quando l'altezza di rimescolamento diminuisce, e più basse in estate; tuttavia si nota in alcuni casi un aumento delle concentrazioni nei mesi tra Luglio e Agosto, la cui causa è presumibile che sia l'aumento del traffico estivo. In

Figura 13.3.7 viene riportato il grafico delle serie temporali annuali dell'area del materano.

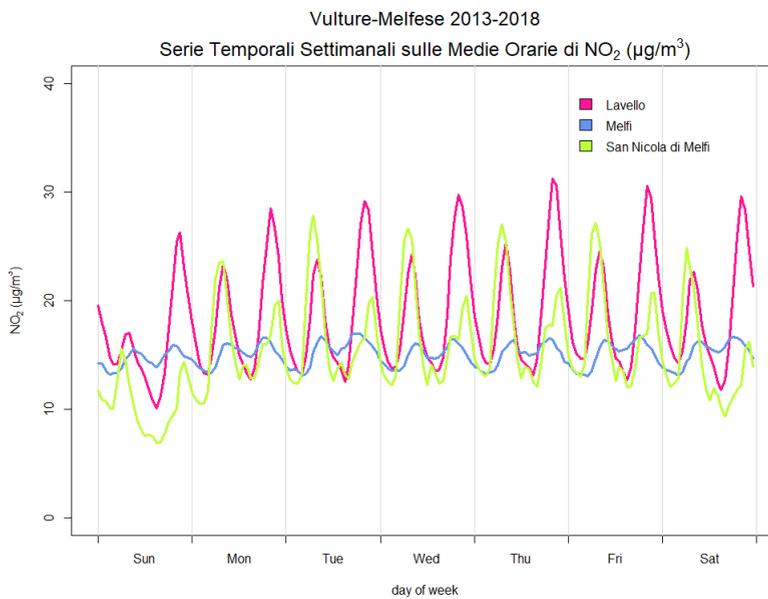


Figura 13.3.6. Grafico delle serie temporali settimanali di NO<sub>2</sub> dell'area del Vulture-Melfese dal 2013 al 2018. Fonte: elaborazione ARPAB.

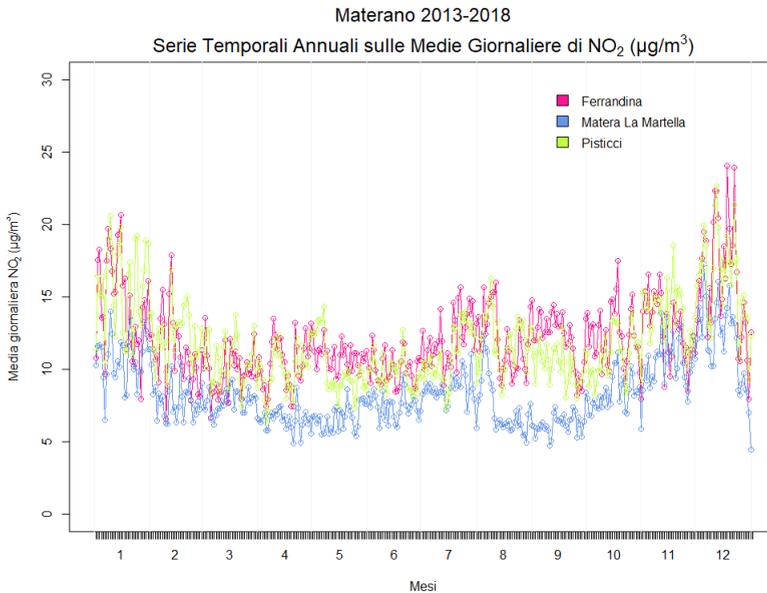


Figura 13.3.7. Grafico delle serie temporali annuali di NO<sub>2</sub> dell'area del materano dal 2013 al 2018. Fonte: elaborazione ARPAB.

### Monossido di Carbonio

I valori di concentrazione di monossido di carbonio (CO) risultano piuttosto bassi in tutte le stazioni della Rete con medie annuali inferiori a 1 mg/m<sup>3</sup>. Il limite normativo del CO è di 10 mg/m<sup>3</sup> e si utilizza come indicatore la media massima giornaliera calcolata su 8 ore; i massimi annuali di tale indicatore sono in generale minori di 4.5 mg/m<sup>3</sup>. Anche in questo caso, con le serie temporali si evidenziano picchi giornalieri, anche se in minor misura rispetto al biossido di azoto; quelli maggiormente evidenti si presentano nelle stazioni di Lavello e di Potenza di Viale dell'Unicef e Viale Firenze.

### Anidride Solforosa

L'anidride solforosa (SO<sub>2</sub>), il cui limite orario è di 350 µg/m<sup>3</sup> mentre il limite giornaliero è di 125 µg/m<sup>3</sup>, presenta bassi valori di concentrazione, prossimi ai limiti inferiori di rilevabilità strumentali, con medie annuali distribuite intorno a 1,2 – 7 µg/m<sup>3</sup>. L'analisi statistica, in questo caso, ha evidenziato che le coppie di stazioni

all'interno di una stessa area sono non correlate o presentano debole o scarsa correlazione e anche l'analisi delle serie temporali, le quali non hanno mostrato particolari andamenti, non ha prodotto utili risultati.

### Benzene

Il benzene (C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>), pur non presentando valori molto alti, risulta correlato tra le stazioni in maniera buona o moderata. In questo caso le correlazioni aumentano considerevolmente eliminando gli outliers eseguendo le regressioni lineari al 90°, al 95° e al 99° percentile sulle differenze tra le concentrazioni, misurate nella stessa data, dalla coppia di stazioni presa in esame. Le medie annuali si distribuiscono intorno a 0,24-1,93 µg/m<sup>3</sup> con concentrazioni maggiori nella città di Potenza e nella stazione di Viggiano. Nell'area della Val d'Agri e nella città di Potenza sono individuabili nelle serie temporali due picchi giornalieri dai quali quindi, analogamente al biossido di azoto e al monossido di carbonio, si evince il contributo del traffico.

### Acido Solfidrico

L'acido solfidrico o idrogeno solforato ( $H_2S$ ) non ha un limite normativo nazionale di riferimento, tuttavia la Regione Basilicata con D.G.R. 983/2013 "Norme tecniche e azioni per la tutela della qualità dell'aria nei comuni di Viggiano e Grumento Nova", ha adottato nella Val d'Agri, caratterizzata da un'intensa attività estrattiva e dalla presenza del centro di primo trattamento dell'olio (COVA, Centro Olio Val d'Agri), una soglia di intervento pari a  $32 \mu g/m^3$  calcolata come media giornaliera (operando una riduzione del 20% del valore limite di  $40 \mu g/m^3$  previsto dal D.P.R. 322/1971 abrogato dalla Legge 4 aprile 2012). L'inquinante in questione viene monitorato nella suddetta area in tutte e cinque le stazioni della rete di monitoraggio. Inoltre si fa presente

che le Linee Guida dell'Organizzazione Mondiale di Sanità indicano un valore di riferimento per la soglia olfattiva pari a  $7 \mu g/m^3$  calcolato come valore semiorario. Lo studio statistico non ha rilevato correlazioni tra le stazioni di monitoraggio.

Al fine di dare un'idea dell'andamento dei dati si riporta in Figura 13.3.8 il grafico box-plot nel quale è evidente che le concentrazioni più alte si registrano nella stazione di Viggiano; non si verificano superamenti del limite giornaliero tuttavia nella stazione in questione sono presenti picchi orari che in alcuni casi arrivano a superare  $200-300 \mu g/m^3$ .

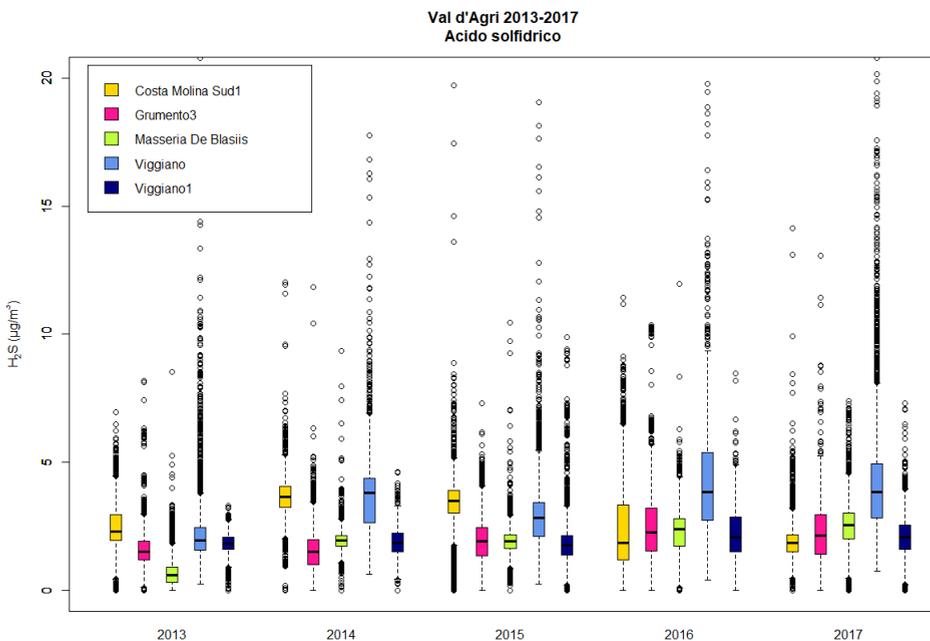


Figura 13.3.8. Box-plot delle misure orarie di  $H_2S$  a scala annuale dell'area della Val d'Agri. Fonte: elaborazione ARPAB.

## Conclusioni

I risultati dello studio hanno evidenziato misure pressoché ridondanti del particolato e dell'ozono all'interno di una stessa area e in minor misura anche del benzene. Per il biossido di azoto e per il monossido di carbonio soltanto in alcune coppie di stazioni è possibile individuare una moderata correlazione; tuttavia in generale i valori di concentrazione, se pur piuttosto bassi

rispetto ai valori limite in particolare per il CO, presentano due picchi giornalieri in corrispondenza delle ore di maggiore traffico. Relativamente all'anidride solforosa, le coppie di stazioni all'interno delle aree risultano non correlate; si riscontra, in tal caso, che i valori di concentrazione si presentano generalmente bassi, prossimi ai limiti inferiori di rilevabilità strumentali.

## Bibliografia

- Biggeri A., Bellini P., Terracini B., 2004, Metanalisi italiana degli studi sugli effetti a breve termine dell'inquinamento atmosferico MISA 1996-2002.
- Carslaw, D.C., 2015. The openair manual — open-source tools for analyzing air pollution data. Manual for version 1.1-4, King's College London.
- Galeotti P., Elementi di Probabilità e Statistica.
- Lin L., Hedayat A. S., Sinha B., and Yang M., 2002 Statistical Methods in Assessing Agreement: Models, Issues, and Tools.
- Lu Wei-Zhen, He Hong-Di, Dong Li-yun, 2010. Performance assessment of air quality monitoring networks using principal component analysis and cluster analysis.
- Montanari M., STATISTICA AMBIENTALE Analisi Multivariata Metodologie di Ordinamento
- Pérez-Arribas L. V., León-González M. E., and Rosales-Conrado N., 2017. Learning Principal Component Analysis by Using Data from Air Quality Networks.
- R Core Team (2019). R: A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria. URL <https://www.R-project.org/>.
- Saulo Helton, Leiva Víctor, Ziegelmann Flavio A., Marchant Carolina, 2013, A nonparametric method for estimating asymmetric densities based on skewed Birnbaum–Saunders distributions applied to environmental data.
- Telesca L., Lovallo M., 2017. On the performance of Fisher Information Measure and Shannon entropy estimators. *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, Elsevier, vol. 484.
- Tukey J.W., 1977, *Exploratory Data Analysis* Addison-Wesley, Reading, Massachusetts, USA..

### 13.4 OZONO: MISURE DI QUALITÀ DELL'ARIA E MISURE METEOROLOGICHE IN QUOTA.

De Vita A.<sup>1</sup>, Budillon G.<sup>1</sup>, Capozzi V.<sup>1</sup>, Onorati G.<sup>2</sup>, D'Auria P.<sup>2</sup>, Autorino J.<sup>2</sup>, Ballirano A.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI NAPOLI "PARTHENOPE" - DIPARTIMENTO SCIENZE E TECNOLOGIE

<sup>2</sup>ARPA CAMPANIA

#### RIASSUNTO

L'ozono è un inquinante secondario presente in troposfera e prodotto nel corso di reazioni chimiche in presenza della radiazione solare a partire da inquinanti primari, quali il biossido di azoto e i COV. È molto importante comprendere il contributo troposferico alle concentrazioni di ozono misurate a livello del suolo, quindi è stata svolta una ricerca sulle variazioni di concentrazione ozono in relazione agli episodi di caldo e di freddo estremi. Per la prima volta in Campania è stata effettuata una campagna di monitoraggio in stazioni di bassa quota ubicate nei comuni di Ariano Irpino e di Avellino, e nella stazione di alta quota di Montevergine in periodi significativi del 2016 e 2017. La campagna è stata mirata ad analizzare il legame che sussiste tra l'ozono troposferico e la temperatura e la rilevanza di tale relazione nelle stazioni selezionate e presso la stazione di riferimento nazionale di Monte Cimone gestita da AM e CNR-ISAC.

Le concentrazioni mensili di ozono nelle stazioni esaminate mostrano un andamento stagionale rappresentativo delle condizioni di fondo della troposfera: l'elevata radiazione solare e le condizioni meteorologiche stagionali favoriscono produzione ed accumulo di ozono, con un massimo estivo nel mese di agosto e minimo invernale nel mese di dicembre. Assieme ai fenomeni di trasporto su scala continentale dell'ozono e dei suoi precursori in troposfera, non sembrano essere trascurabili processi associati alla fotochimica locale per le stazioni a bassa quota. I dati esaminati hanno confermato che le concentrazioni di ozono a quote elevate sono maggiori rispetto alle zone di piana soprattutto d'inverno e nelle ore serali, quindi, in tali condizioni il contributo di origine troposferica è superiore a quello dovuto all'inquinamento locale. Tale aspetto è

da considerare nella valutazione dei livelli di inquinamento di ozono di origine antropica, discriminando fra l'ozono "naturale" e quello troposferico.

**Parole chiave:** ozono, monitoraggio, meteorologia, suolo, quota

#### ABSTRACT

Ozone is a secondary pollutant present in the troposphere and produced during chemical reactions in the presence of solar radiation from primary pollutants, such as nitrogen dioxide and VOCs. It is very important to understand the tropospheric contribution to ozone concentrations measured at ground level, therefore research has been carried out on changes in ozone concentration in relation to episodes of extreme heat and cold. For the first time in Campania, a monitoring campaign was carried out in low altitude stations located in the municipalities of Ariano Irpino and Avellino, and in the high altitude station of Montevergine in significant periods of 2016 and 2017. The campaign was aimed at analyze the link between the ground level ozone and the temperature and the relevance of this relationship in the selected stations and at the Monte Cimone national reference station managed by AM and CNR-ISAC.

The monthly ozone concentrations in the examined stations show a seasonal trend representative of the underlying conditions of the troposphere: the high solar radiation and seasonal weather conditions favor the production and accumulation of ozone, with a summer maximum in August and a winter minimum in the month of December. Together with the transport phenomena on a continental scale of ozone and its precursors in the troposphere, processes associated with local

photochemistry for low altitude stations do not seem to be negligible. The examined data confirmed that the ozone concentrations at high altitudes are higher than in the flat areas especially in winter and in the evening hours, therefore, in these conditions the contribution of tropospheric origin is higher than that due to local pollution. This aspect is to be considered in the assessment of anthropogenic ozone pollution levels, discriminating between "natural" and tropospheric ozone.

**Keywords:** ozone, monitoring, meteorology, soil, altitude

## Introduzione

Questo lavoro nasce dall'intento di individuare un legame tra due tematiche: cambiamento climatico e della qualità dell'aria, e comprenderne le relative influenze. Tra tutti i fattori che andrebbero presi in considerazione per valutare l'entità del cambiamento climatico e la tendenza della qualità dell'aria ad influenzare gli ecosistemi, sono stati selezionati due parametri notevolmente rappresentativi e apparentemente connessi tra loro: la temperatura e la concentrazione di ozono, una correlazione rintracciata sulla base dei dati osservati e finalizzata all'elaborazione di proiezioni per evoluzioni future. La correlazione tra ozono e parametri meteorologici è stata approfondita valutando la variabilità della concentrazione dell'inquinante

in relazione alla temperatura nel biennio 2016- 2017 nelle stazioni di Ariano Irpino, Avellino 41, Montevegine e Monte Cimone durante gli eventi di caldo e di freddo estremi.

## Ozono

L'ozono è un gas instabile, di colore bluastrò, costituito da tre atomi di ossigeno ( $O_3$ ), è una molecola allotropica dell'ossigeno, che si scinde facilmente, liberando ossigeno molecolare ( $O_2$ ) e un atomo di ossigeno estremamente reattivo ( $O_3 \rightarrow O_2 + O$ ). È un energico ossidante, capace di reagire sia con materiali organici che inorganici. La formazione dell'ozono stratosferico in natura avviene a più di 30 km di altezza, dalle zone equatoriali, dove si produce, per poi essere trasportato

verso i poli dai venti. Per effetto della circolazione atmosferica, viene in piccola parte trasportato anche negli strati più bassi dell'atmosfera (troposfera), è presente a basse concentrazioni e rappresenta un inquinante secondario particolarmente insidioso. La quantità di ozono presente nella troposfera, è dovuta al ridotto scambio tra troposfera e stratosfera, dalla sua formazione a partire dagli inquinanti primari; la sua concentrazione varia a seconda della zona geografica considerata, dell'ora, del periodo dell'anno, delle condizioni climatiche, della direzione e della velocità del vento, del grado di inquinamento primario, etc. (Arpa Campania, 2010).

L'ozono viene prodotto nel corso di varie reazioni chimiche, in presenza della luce solare, a partire da alcuni inquinanti primari, quali il biossido di azoto. In condizioni di intensa produzione di smog fotochimico, i livelli di ozono possono raggiungere concentrazioni tali da renderlo dannoso per la salute e per l'ambiente, pertanto, viene considerato un inquinante secondario.

La concentrazione di fondo alle nostre latitudini varia fra 0,03 e 0,07 ppm, anche se nell'ultimo secolo è praticamente raddoppiata. Il picco massimo di concentrazione di ozono, rilasciato dall'intenso traffico dei veicoli, ma anche dall'importanza della luce, si rileva intorno a mezzogiorno, mentre dopo le ore 18, la concentrazione cala registrando il minimo durante la notte.

Le più alte concentrazioni di ozono si rilevano nei mesi più caldi dell'anno, per la forte insolazione; incidono fortemente le condizioni di alta pressione e di scarsa ventilazione oltre al ristagno degli inquinanti e relativo accumulo. Dato che l'inquinamento da ozono interessa in particolare solo 4-6 ore del giorno, si considera di solito solo la concentrazione massima oraria.

L'ozono ha un'azione irritante sulle mucose in particolare delle vie respiratorie, anche di notevole entità, e a livello oculare determinando forti irritazioni. Nei soggetti più sensibili, come i bambini, aumenta la frequenza degli attacchi asmatici e può ridurre la capacità del sistema immunitario di combattere le infezioni batteriche. I danni

dovuti all'ozono possono anche verificarsi senza alcun segno evidente. L'ozono è considerato una delle principali cause del declino delle foreste in quanto provoca una riduzione nella crescita delle piante che risultano sensibili al gas che penetra al loro interno attraverso gli stomi, specialmente se in presenza di ampie quantità di vapore d'acqua che ne favorisce l'apertura. Le piante risultano così sensibili da poter essere utilizzate come spia biologica. ([www.arpapuglia.it](http://www.arpapuglia.it)). La variabilità della concentrazione di questo inquinante secondario è legata principalmente alle condizioni meteorologiche, in particolare al trasporto e alla diffusione degli inquinanti, che a loro volta, sono regolate dal gradiente termico, in cui in condizioni normali, la temperatura dell'aria diminuisce con l'altezza secondo un gradiente di circa 1°C/100 metri. Quando invece si registra il fenomeno noto come inversione termica, la temperatura aumenta con l'altezza ed in queste condizioni la dispersione degli inquinanti viene ostacolata e viene indirizzata verso il suolo (Rekacewicz, P., 2003).

Data la complessità dei meccanismi di produzione e rimozione, le concentrazioni di O<sub>3</sub> sono influenzate da diverse variabili meteorologiche, tra cui l'intensità della radiazione solare, la temperatura, l'umidità relativa, la pressione atmosferica, la direzione e la velocità del vento e la pioggia. ([http://www.arpa.veneto.it/arpavinforma/indicatori\\_ambientali/indicatori\\_ambientali/atmosfera/qualita-dellaria/livelli-di-concentrazione-di-ozono/view](http://www.arpa.veneto.it/arpavinforma/indicatori_ambientali/indicatori_ambientali/atmosfera/qualita-dellaria/livelli-di-concentrazione-di-ozono/view)).

### Metodologia

Sono state analizzate le variazioni delle concentrazioni di ozono osservate presso le stazioni di Ariano Irpino, Avellino 41, la stazione GAW-WMO di Monte Cimone (2165 m s.l.m., Appennini Settentrionali) in corrispondenza delle ondate di caldo e di freddo rilevate presso i siti di misura negli anni 2016 e 2017 e nel 2018, in particolare dal 25 Luglio al 31 Ottobre, per la stazione di Montevergine, ove è stato installato dall'ARPAC uno strumento per la rilevazione dell'ozono. L'applicazione di una metodologia di selezione specificamente calibrata

per stazioni di bassa e d'alta quota ha permesso di identificare la variazione dell'ozono in relazione alla variazione della temperatura. È stato valutato che in media le concentrazioni di ozono aumentano del 16.1% rispetto ai valori stagionali. Particolare attenzione è stata rivolta allo studio dell'ondata di calore osservata nel mese di Agosto che ha provocato le più elevate concentrazioni di ozono osservate in queste stazioni durante questo tipo di eventi e l'ondata di freddo osservata nel mese di Dicembre, dove è evidente una brusca diminuzione della temperatura rispetto alla temperatura media giornaliera. I risultati hanno evidenziato che l'analisi dei dati di temperatura e di ozono, molto spesso, mostra una correlazione.

In generale con il termine ondate di calore si indicano episodi estivi di lunga durata caratterizzati da temperature particolarmente elevate. Le condizioni meteorologiche che tipicamente si associano ad un'ondata di calore sono: alte temperature, stagnazione delle masse d'aria, elevata irradianza solare, bassi livelli di umidità e la persistenza di condizioni anticicloniche di "blocco". Tali condizioni debbono interessare un territorio esteso (come una regione o un continente) per un periodo di tempo relativamente lungo. Generalmente, il parametro maggiormente utilizzato nell'identificazione dei periodi interessati da ondate di calore è la temperatura dell'aria. In particolare, alcune definizioni si basano sul superamento di un valore di soglia dipendente dalle caratteristiche climatiche di una regione specifica [Robinson et al. 2000; Colombo et al., 2007], mentre altre adottano dei criteri puramente statistici, come il superamento di un certo intervallo di confidenza [Della Marta et al., 2007; Meehl et al., 2004]. Nella maggior parte dei casi, vengono analizzate le anomalie della temperatura massima giornaliera rispetto alla media climatologica caratteristica della regione di interesse. Le caratteristiche meteorologiche di un'ondata di calore si possono tipicamente collegare alle anomalie della circolazione atmosferica sulla regione considerata. In particolare, sul continente europeo sembra essere importante il ruolo svolto dalla NAO (North Atlantic Oscillation), uno dei pattern atmosferici dominanti nell'emisfero settentrionale, la cui variabilità può essere

descritta attraverso la valutazione della differenza di pressione superficiale tra la depressione d'Islanda e l'anticiclone delle Azzorre, e controlla la forza e la direzione delle correnti occidentali (*westerlywinds*) e dei cicloni extratropicali (*stormtracks*) sopra l'Oceano Atlantico settentrionale ed il continente europeo. Le ondate di calore possono causare effetti negativi sulla popolazione soprattutto su quelle fasce considerate più a rischio, come anziani, donne incinte, bambini e persone affette da patologie croniche cardiocircolatorie e respiratorie, che dipendono tuttavia dall'intensità e dalla durata dell'episodio oltre che dalle condizioni climatiche tipiche del luogo, dalle condizioni di salute della popolazione nonché da fattori culturali-locali. Oltre ad effetti sulla salute umana, ondate di calore possono avere ripercussioni sul ciclo dell'acqua e diminuire la resa dei raccolti agricoli, favorendo inoltre l'aumento di incendi spontanei [IPCC, 2007]. Nella bassa troposfera, gli episodi acuti di inquinamento da ozono che si registrano durante il periodo estivo sono generalmente favoriti da condizioni meteorologiche tipiche delle ondate di calore: elevato irraggiamento solare, condizioni di stagnazione delle masse d'aria ed elevate temperature superficiali [EEA, 2006]. Sul continente Europeo, recenti studi hanno messo in evidenza un aumento della frequenza e della durata delle ondate di calore, probabilmente a causa delle modificazioni climatiche indotte dall'aumento antropico della concentrazione di gas serra in troposfera [IPCC, 2007]. Per tali ragioni e tenuto conto del fatto che in troposfera l'ozono, oltre ad essere un potente inquinante, rappresenta anche un efficiente gas serra, risulta interessante valutare se e come le ondate di calore influenzino i livelli di fondo dell'ozono troposferico. Le ondate di freddo, invece, sono caratterizzate dal rapido abbassamento della temperatura rispetto alla temperatura media di una regione, che richiede uno stato di protezione supplementare per l'agricoltura, l'industria, il commercio e altre attività sociali. Lo studio di un'ondata di freddo è basato sulla velocità con cui la temperatura scende e sulla temperatura minima a cui arriva che a sua volta, dipende dalla regione geografica e dall'ora. Anche le forti ondate di gelo costituiscono un rischio per la salute umana in particolare per anziani e bambini e persone che soffrano di patologie croniche oltre che un

rischio diretto per morte da assideramento o ipotermia per senzatetto e indigenti. Dal punto di vista ambientale, le ondate di freddo possono arrecare danni alla società super-industrializzata, in particolare a trasporti e viabilità, all'erogazione di energia elettrica, al patrimonio agricolo e all'allevamento. L'attività di ricerca è stata svolta presso l'ARPA Campania (Agenzia Regionale per la Protezione Ambientale in Campania), presso cui i dati sono stati acquisiti, validati ed analizzati estrapolando i valori relativi alla concentrazione dell'ozono, con particolare attenzione ai valori di minimo, medio e massimo giornaliero in una determinata stazione e procedendo ad un raffronto con i valori di temperatura. In questo lavoro sarà presentato l'andamento climatologico delle temperature misurate nelle stazioni di riferimento nel periodo 2016 – 2017 e nel 2018 per la stazione di Montevergine. Lo scopo sarà quello di giungere ad una valutazione preliminare circa l'influenza di questi episodi sui livelli dell'ozono troposferico registrati presso i siti di misura.

Tanti studi ipotizzano con buona probabilità che al cambiamento climatico sarà associato un aumento della concentrazione di ozono troposferico, legato in buona parte all'aumento di temperatura previsto, così come è evidenziato da questo lavoro di tesi. E' molto difficile immaginare quali potrebbero essere gli effetti di un acutizzarsi della situazione di inquinamento da ozono attuale, a causa delle diverse quantità di fattori che entrerebbero in gioco. Il cambiamento climatico è dovuto all'effetto serra provocato dal notevole aumento della concentrazione atmosferica dei gas serra, che sostituiscono alla superficie terrestre una enorme quantità dell'energia persa dal pianeta sotto forma di energia invisibile nell'infrarosso. L'aumento dei gas serra è dovuto all'aumento della temperatura del pianeta da un minimo di 2°C ad un massimo di 6°C, (un rapido cambiamento che può provocare danni catastrofici qualora non venga fatto nulla per ridurre queste emissioni dei gas), alla fusione dei ghiacciai polari e alpini, all'innalzamento degli oceani e soprattutto all'estremizzazione del clima.

## Risultati

Attraverso i diagrammi a dispersione (*scatter plot*), è stato possibile analizzare il legame che sussiste tra l'ozono troposferico, la temperatura e la rilevanza di tale relazione a seconda del sito di misura considerato. La concentrazione media giornaliera di ozono misurata a Dicembre 2016 nella stazione di bassa quota di Ariano Irpino è pari a  $65 \mu\text{g}/\text{m}^3$  e la temperatura media registrata è  $10^\circ\text{C}$  mentre la concentrazione media di ozono rilevata nella stazione di Avellino nel Dicembre 2016, varia dai 15

$\mu\text{g}/\text{m}^3$  ai  $65 \mu\text{g}/\text{m}^3$  e la temperatura media non supera i  $10^\circ\text{C}$ . La concentrazione media di ozono oscilla tra i  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  e i  $140 \mu\text{g}/\text{m}^3$  nel mese di Agosto 2017 (Figura 13.4.1) ed è accompagnata da un aumento notevole della temperatura media, misurata intorno ai  $34^\circ\text{C}$ . Durante il mese di Agosto 2017, la stazione di monitoraggio di Avellino, ha rilevato una variazione media di  $\text{O}_3$ , tra i  $65 \mu\text{g}/\text{m}^3$  e i  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  con una temperatura media pari a  $30^\circ\text{C}$  (Figura 13.4.2).

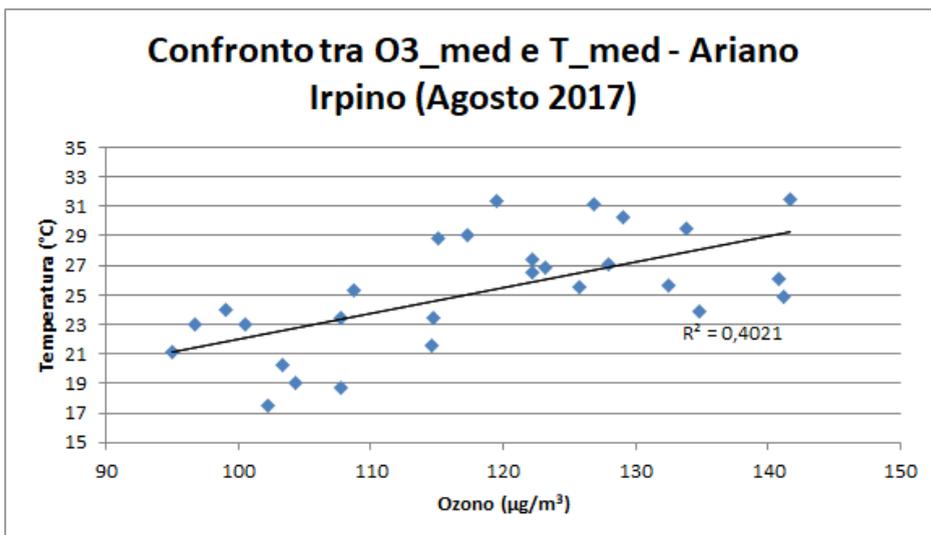


Figura 13.4.1. Correlazione tra temperatura ed ozono – Ariano Irpino (Agosto 2017).

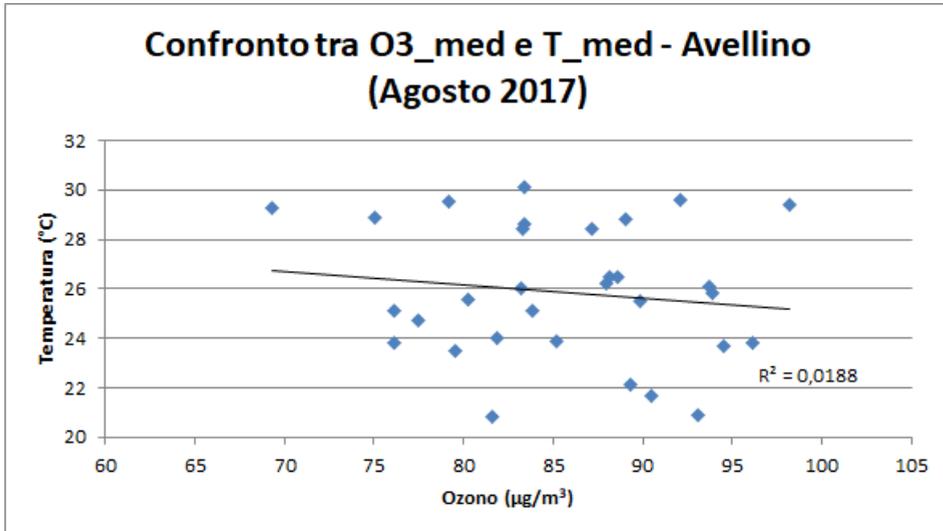


Figura 13.4.2. Correlazione tra temperatura ed ozono – Avellino (Agosto 2017).

Dall'analisi dei grafici riportati, si evidenzia correlazione nel periodo estivo.

La differenza tra le concentrazioni di ozono rilevate nelle stazioni di Avellino e Ariano Irpino, deriva dall'ubicazione delle stesse infatti mentre la stazione di Ariano Irpino è lontana da fonti di emissioni, quindi presenta variazioni di ozono priva di influenza urbana, quella di Avellino subisce influenza dell'aria urbana dove non tutti i precursori vengono effettivamente convertiti in ozono.

La stazione di alta quota di Monte Cimone, ha registrato nell'Agosto 2016, una concentrazione media di ozono che oscilla tra i 100 µg/m³ e i 140 µg/m³ con una temperatura pari a 16°C (Figura 13.4.3), mentre la correlazione tra i due parametri appare evidente anche nella Figura 13.4.4 dove, la concentrazione media di ozono diminuisce tra i 65 µg/m³ e i 100 µg/m³ e una T= 8°C.

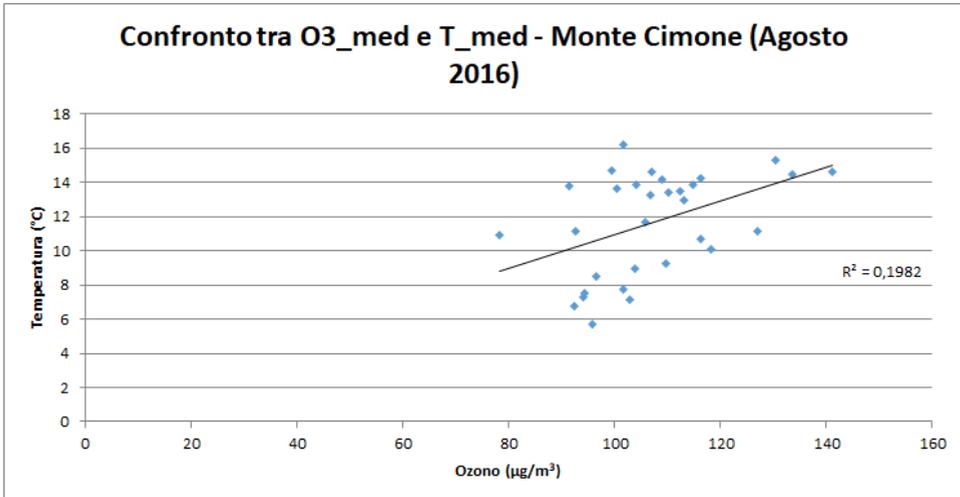


Figura 13.4.3. Correlazione tra temperatura ed ozono – Monte Cimone (Agosto 2016).

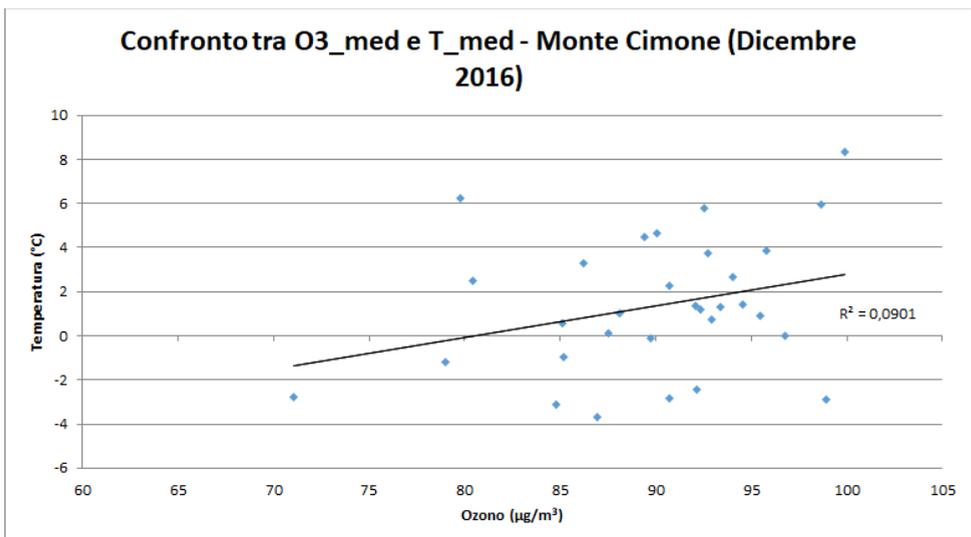


Figura 13.4.4. Correlazione tra temperatura ed ozono – Monte Cimone (Dicembre 2016).

Nell'Agosto 2017 la stazione di Monte Cimone ha registrato, invece, una concentrazione media di ozono tra i 90  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  e i 140  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  ed una temperatura media più alta intorno ai 20°C, rispetto a quella dello scorso anno (Figura 13.4.5). Anche nel mese di Dicembre è accaduto lo stesso fenomeno: la concentrazione media

di ozono è stata registrata intorno ai 60  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  e i 95  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , e la temperatura media ha subito una variazione tra i -7°C e i 4°C (Figura 13.4.6) rispetto al 2016.

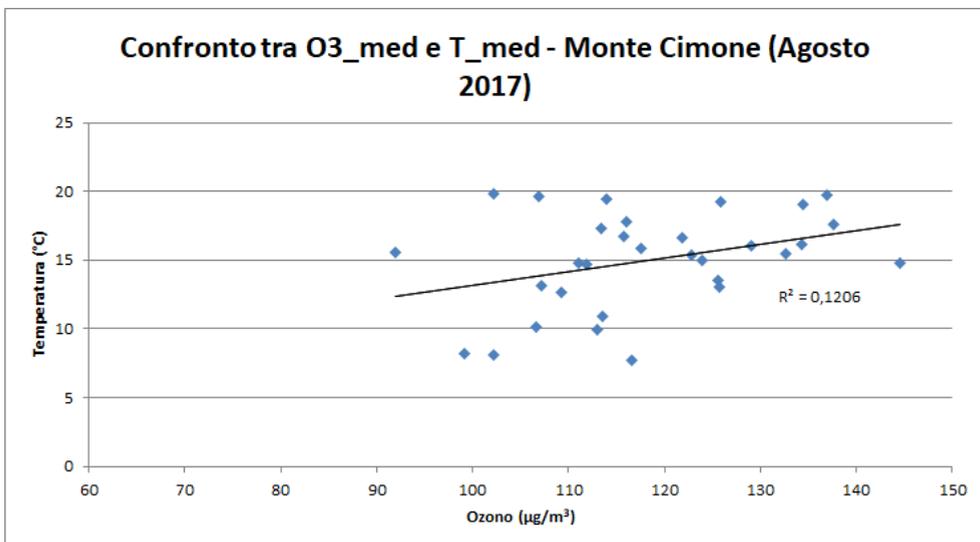


Figura 13.4.5. Correlazione tra temperatura ed ozono – Monte Cimone (Agosto 2017).

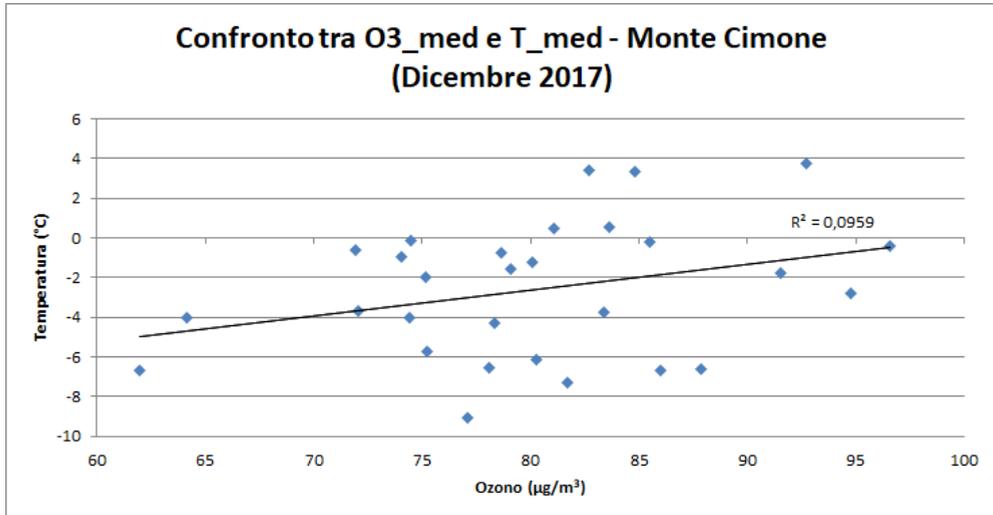


Figura 13.4.6. Correlazione tra temperatura ed ozono – Monte Cimone (Dicembre 2017).

Dai grafici riportati, è visibile una buona correlazione anche se non eccellente, che potrebbe essere dovuta al sopraggiungere di masse d'aria con concentrazioni di ozono diverse, difatti è più accentuata nel periodo invernale quando la cima del monte è interessata dalla presenza di corpi nuvolosi.

Allo stesso modo, è stata analizzata la concentrazione di ozono della stazione Montevergine del 2018, in cui è evidente che la concentrazione media dell'ozono è pari a 135 µg/m³ con una T= 22°C (Figura 13.4.7).

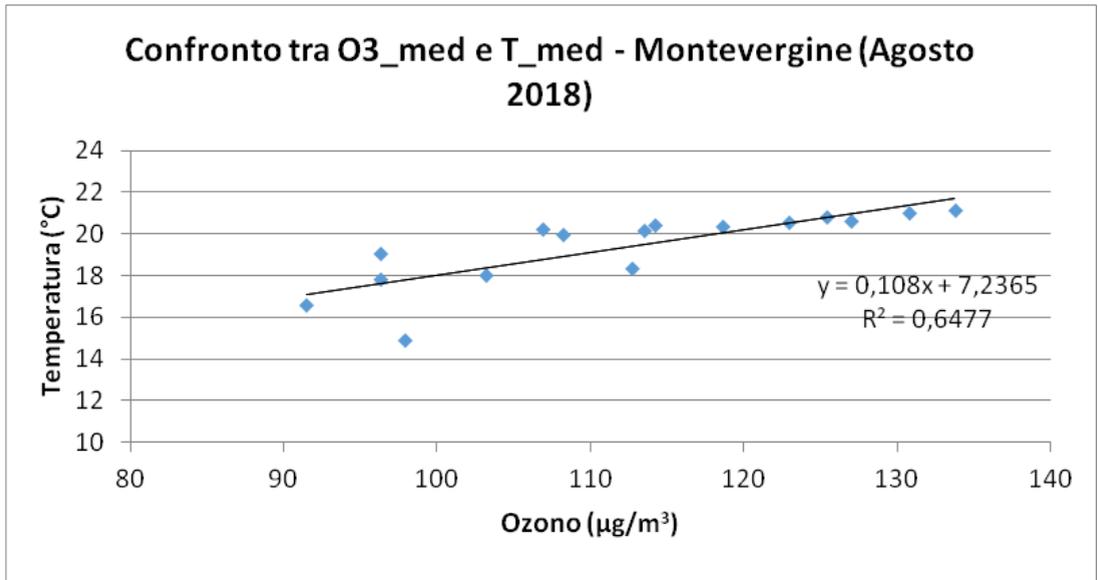


Figura 13.4.7. Correlazione tra temperatura ed ozono – Montevergine (Agosto 2018).

Nella stazione di Montevergine è stata fatta una campagna ad hoc per stimare le concentrazioni di ozono in quota. Dal grafico riportato, è possibile individuare due tipologie di eventi:

- per temperatura basse, l'ozono resta pressoché costante intorno ai 100 µg/m<sup>3</sup>, cioè la concentrazione media di ozono intorno ai 1000 m come da studi già pubblicati;
- è visibile una relazione diretta tra l'aumento di ozono e l'aumento della temperatura da cui si evince che la componente di aumento dipende dalla forzante meteorologica.

E' chiaro, dunque che la variazione dell'ozono dipende dalla variazione della temperatura: sono direttamente proporzionali e all'aumentare della temperatura aumenta

la concentrazione dell'ozono nel periodo estivo mentre nel periodo invernale accade il fenomeno opposto.

I valori mensili delle concentrazioni di ozono studiate nei siti considerati descrivono un andamento stagionale ben definito e rappresentativo delle condizioni di fondo della troposfera: infatti l'elevata radiazione solare e le tipiche condizioni meteorologiche, favoriscono la produzione e l'accumulo di inquinanti come l'ozono, che ha caratterizzato un massimo estivo nel mese di Agosto (Figura 13.4.8), come è stato evidenziato nei grafici precedenti ed un minimo invernale, nel mese di Dicembre dove nelle stazioni ad alta quota, il contributo stratosferico al budget dell'ozono in troposfera sembra essere più importante in inverno (Figura 13.4.9).

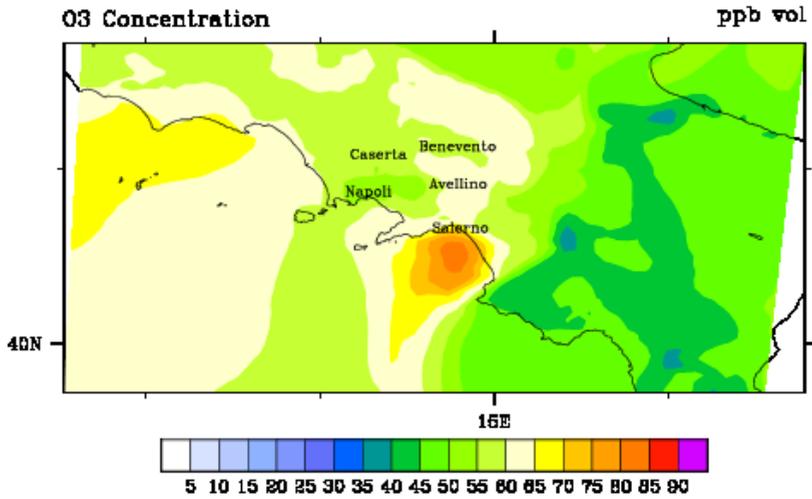


Figura 13.4.8. Esempio di concentrazione di ozono nel periodo estivo.

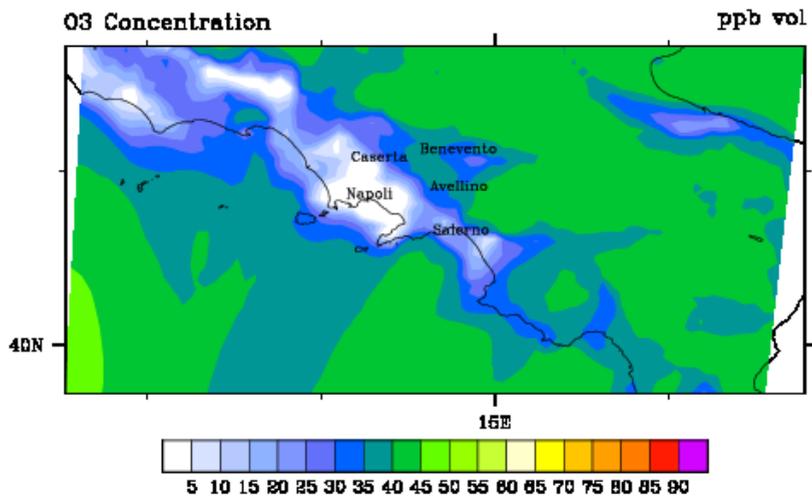


Figura 13.4.9. Esempio di concentrazione di ozono nel periodo invernale.

D'altro canto, assieme ai fenomeni di trasporto su scala sinottica di ozono e dei suoi precursori in troposfera, sono significativi processi associati alla fotochimica in situ. L'accoppiamento fra fenomeni chimici e dinamici in troposfera rappresenta quindi un'interazione fondamentale alla determinazione del massimo di ozono. La variazione stagionale della radiazione solare contribuisce a generare la periodicità annuale (massimo in estate, minimo in inverno) delle temperature massime giornaliere e, attraverso processi di produzione fotochimica, delle concentrazioni di ozono.

Si conferma che mediamente l'ozono aumenta con la temperatura e con la quota (Tabella 13.4.1).

In particolare, considerata la concentrazione di ozono rilevata nella stazione di Montevergine, equazione con

retta, si rileva che a temperatura di 22°C corrispondono concentrazioni di ozono pari a 140 µg/m<sup>3</sup>.

A riconferma della relazione tra la concentrazione di ozono e la quota delle stazioni in cui è stata effettuata la misurazione sono stati presi in considerazione i dati forniti da ISPRA per una serie di stazioni in quota di diverse regioni d'Italia (Tabella 13.4.2) per l'anno 2018; si è proceduto a correlare il numero di giorni di superamento del valore obiettivo per la protezione della salute [120 µg/m<sup>3</sup> da non superarsi più di 25 giorni come media su 3 anni] con le quote a cui tali superamenti sono stati rilevati. E' visibile un incremento dei giorni di superamento del valore obiettivo per la protezione della salute all'aumentare della quota delle stazioni di rilievo (Figura 13.4.10).

Tabella 13.4.1 – Relazione tra l'ozono e la temperatura.

	Temperatura	Ozono
Ariano Irpino	34°C	140 µg/m <sup>3</sup>
Avellino	30°C	100 µg/m <sup>3</sup>
Monte Cimone	15°C	140 µg/m <sup>3</sup>
Montevergine	22°C	135 µg/m <sup>3</sup>

Tabella 13.4.2 – Stazioni di alta quota e numero giorni di superamento valore obiettivo per protezione della salute anno 2018 – ISPRA

STATION_CODE	REGIONE	PROVINCIA	DENOMINAZIONE	GG SUPERAMENTO VALORE OBIETTIVO PROTEZIONE SALUTE	ALTITUDINE
IT1812A	LOMBARDIA	Lecco	MOGGIO	95	1192 m
IT1791A	VENETO	Vicenza	ASIAGO - CIMA EKAR	108	1366 m
IT0992A	LAZIO	Frosinone	FONTECHIARI	51	400 m
IT2160A	ABRUZZO	L'Aquila	Arischia	33	800 m
IT1806A	MOLISE	Campobasso	GUARDIAREGIA	69	954 m
IT2276A	CAMPANIA	Avellino	Villa Comunale	76	740 m
IT1191A	PA_TRENTO	Trento	MONTE GAZA	99	1601 m

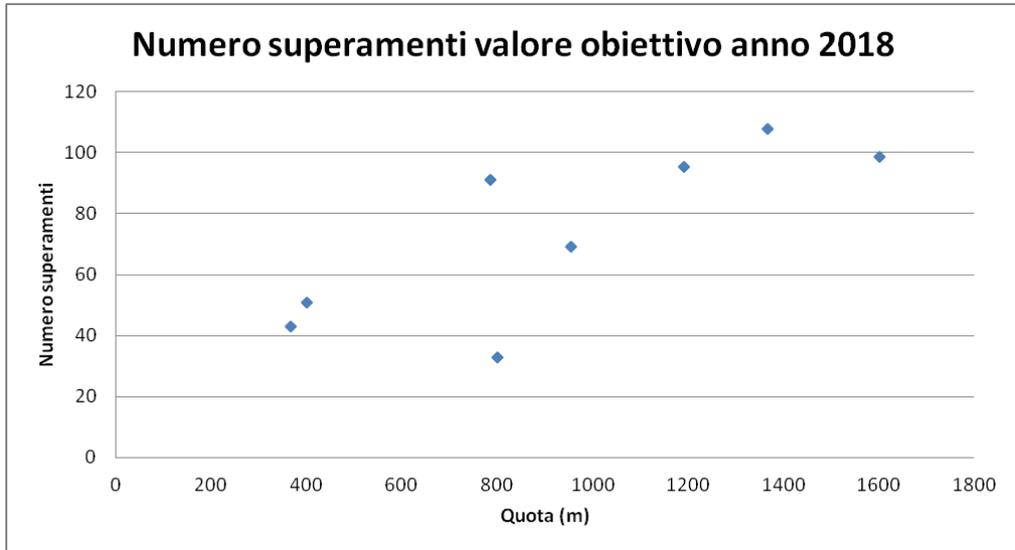


Figura 13.4.10. Correlazione tra numero di giorni di superamento valore obiettivo e quote delle stazioni di rilievo anno 2018- ISPRA.

Pertanto alla luce delle considerazioni finora espresse e dei dati analizzati possiamo asserire che la concentrazione di ozono aumenta con la quota sia a scala regionale che nazionale e che la concentrazione di ozono subisce un significativo incremento a temperature più elevate, effetto più evidente in aree rurali o montane

dove non sono visibili particolari variazioni dei precursori, mentre nelle aree urbane dove i precursori variano in modo più significativo, la correlazione con il fattore temperatura appare meno evidente.

## Bibliografia

3B Meteo, 2015, Ozono troposferico: inquinante estivo.

ARPA, (2004), Linee guida per la predisposizione delle reti di monitoraggio della qualità dell'aria in Campania.

Arpa Campania, 2010, Ozono troposferico: stato delle conoscenze.

Baird C. Cann M., 2006 - Chimica Ambientale – Zanichelli.

Cordioli, M., 2015, Analisi spaziali e modellistica per l'inquinamento atmosferico.

CNR - Consiglio Nazionale delle Ricerche, 2003, Risposta dell'emissioni dei composti organici volatili biogenici ai cambiamenti climatici.

Della Marta et al, 2007 - Summer Heat Waves in Western Europe, Their Past Change and Future Projections.

EEA, Environmental statement, 2006.

Fumarola G. (1992) - L'inquinamento atmosferico - Liguori Editore.

IPCC, Climate Change, 2007.

Manuale di meteorologia, Mario Giuliacci, 2016.

Meehl et al, 2004 - Combinations of Natural and Anthropogenic Forcings in Twentieth-Century Climate.

MeteoWeb, 2014, Meteo Didattica.

Ministero dell'Ambiente e della Tutela del Territorio e del Mare, 2010, qualità dell'aria ambiente: Ozono troposferico.

OMM, 2016, Organizzazione meteorologica mondiale.

PAA – Direzione generale, 2018.

Rekacewicz, P., 2003, Strategic Plan for the U.S. Climate Change Science Program.

Restelli G. Zanderighi G., 2001 - Chimica dell'atmosfera e dell'inquinamento atmosferico - Edizione Unicopli.

Stull., 1998, Weil, J., & Venkatram, A., 1998, Dispersion in the convective boundary layer.

Worldwide Air Quality, 2015, Ozone AQI: Using concentrations in milligrams or ppb?

Zannetti P. (1990). In Air Pollution Modelling. Computation Mechanics Pub.

## SITOGRAFIA

<https://www.ecoage.it/effetto-serra.htm>.

<http://www.atmosferagis.it/index.php/ambiti-di-competenza/modelli-di-dispersione-atmosferica>.

<http://www.meteoweb.eu/2014/06/meteo-didattica-geopotenziale-scoperta-sconosciuto-parametro-fondamentale-per-realizzazione-ottime-previsioni-meteorologiche/293542/>.

[http://www.arpa.veneto.it/arpavinforma/indicatori-ambientali/indicatori\\_ambientali/atmosfera/qualita-dellaria/livelli-di-concentrazione-di-ozono/view.www.arpapuglia.it](http://www.arpa.veneto.it/arpavinforma/indicatori-ambientali/indicatori_ambientali/atmosfera/qualita-dellaria/livelli-di-concentrazione-di-ozono/view.www.arpapuglia.it).

### 13.5 SERVIZIO OPERATIVO DI PREVISIONE E VALUTAZIONE DELLA QUALITÀ DELL'ARIA LEGATO AI PRODOTTI COPERNICUS CAMS

Stortini M., Amorati R., Giovannini G.

ARPAE Emilia Romagna

#### RIASSUNTO

In questo articolo viene presentato un sistema di previsione e valutazione operativa della qualità dell'aria. Il servizio utilizza i prodotti di Copernicus-CAMS ed è in grado di fornire quotidianamente mappe e campi numerici di previsione e monitoraggio della qualità dell'aria in ambito italiano. Il sistema è in fase di sviluppo per conto di una collaborazione tra l'Agenzia Spaziale Italiana (ASI) e il Sistema Nazionale Protezione Ambiente (SNPA).

Una sua applicazione ad un episodio di trasporto di dust e un episodio di alti valori estivi di ozono viene descritta.

**Parole chiave:** inquinamento dell'aria; modelli di previsione dell'inquinamento atmosferico; Italia; CAMS; telerilevamento

#### ABSTRACT

In this paper an operational forecasting and daily assessment system of air quality is presented. This new system is thought of as a Copernicus-CAMS downstream national service, able to develop and implement a service for air quality forecasting and monitoring in the Italian domain, running every day on the National territory. The system is being development on behalf of a cooperation between Agenzia Spaziale Italiana” (ASI) and Sistema Nazionale Protezione Ambiente” (SNPA).

An episode of summer ozone and dust transport are shown.

**Keyword:** air pollution; air pollution forecast modeling; Italy; CAMS; remote sensing

### Descrizione della suite modellistica

Il progetto “Piattaforma Tematica del Sentinel Collaborative GS per la Qualità dell’Aria”, è il primo dei progetti scaturiti dall’accordo tra ISPRA e l’Agenzia Spaziale Italiana (ASI) con lo scopo di sviluppare una piattaforma tematica dedicata alla valutazione, previsione e gestione della qualità dell’aria sull’intero territorio nazionale e di realizzare un servizio intermedio tra i prodotti della piattaforma europea Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) ed i servizi locali prodotti dall’SNPA. Il progetto, sotto la responsabilità di ISPRA e con il coordinamento scientifico di Arpae, prevede la partecipazione di diverse Agenzie regionali.

Il servizio operativo sperimentale, implementato da Arpae su risorse di calcolo messe a disposizione dalla Struttura Idro Meteo Clima (SIMC), permette la valutazione e previsione (fino a 72 ore) della qualità dell’aria su tutto il territorio nazionale con risoluzione temporale oraria e risoluzione spaziale di circa 7x7 km. Il servizio è basato su simulazioni numeriche ottenute dal modello fotochimico di trasporto e dispersione CHIMERE e da dati meteorologici del modello nazionale COSMO.

Il modello fotochimico agisce su diverse scale, innestate una dentro l’altra, dalla scala europea alla scala nazionale, come si vede in Figura 13.5.1.

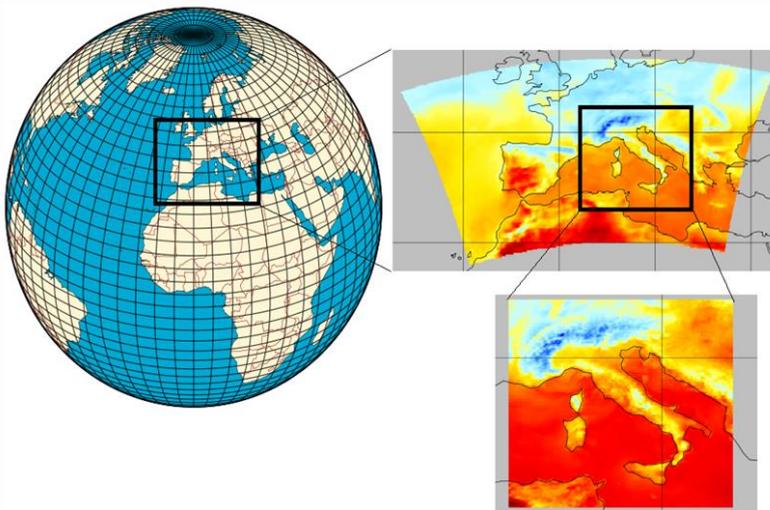


Figura 13.5.1 Domini di integrazione del modello fotochimico

La simulazione a scala europea utilizza le condizioni al contorno fornite dal modello globale CAMS e le emissioni a livello europeo, mentre la simulazione a scala italiana innestata sul dominio europeo utilizza le emissioni

nazionali fornite da ISPRA. Lo schema logico della suite modellistica è rappresentata in Figura 13.5.2

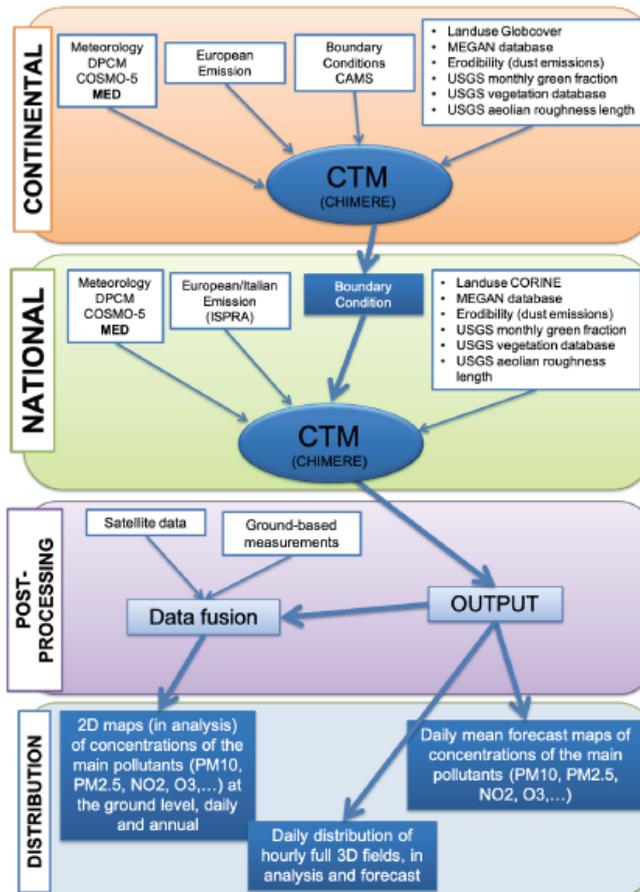


Figura 13.5.2 Schema a blocchi della suite modellistica

Inoltre è stato predisposto un sito web per la visualizzazione delle simulazioni modellistiche a scala nazionale e regionale ed i dati di qualità dell'aria in tempo quasi reale (near-real time) raccolti sul territorio dalle Agenzie regionali e delle province autonome.

Utilizzando la piattaforma open source CKAN è possibile scaricare non solo le mappe giornaliere 2D - in analisi e previsioni - delle principali concentrazioni di inquinanti (PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, NO<sub>2</sub> e O<sub>3</sub>), ma anche i campi 3D orari

completi, in analisi e previsione. Attualmente le condizioni al contorno fornite dal modello nazionale sono usate da ARPAE operativamente per le simulazioni sul bacino padano nell'ambito del progetto Life-IP PrePair e per simulazioni ad alta risoluzione sulla regione Emilia-Romagna, da ARPA Piemonte, ARPA Friuli-Venezia-Giulia, ARPA Veneto, ARPA Campania, ARPA Umbria, ARPA Lazio per sperimentarne l'utilizzo nelle proprie catene modellistiche di qualità dell'aria.

La suite modellistica è poi corredata da un tool di verifica (METOPA) e da un modulo per l'elaborazione dei dati da satellite.

METOPA è un tool di verifica scritto in codice R in grado di calcolare indicatori statistici continui come BIAS e RMSE e dicotomici come FAR e POD, utili nel caso di valutare le performance dei modelli per il confronto con soglie definite dall'utente.

Il modulo di elaborazione dati da satellite elabora i dati del Sentinel-3 SYN livello 2, in particolare l'AOD a 550 nm e stima le concentrazioni al suolo di PM10 attraverso una relazione lineare di questo tipo:

$$PM10_{sat} = \frac{A * \left(\frac{AOD_{sat}}{HPBL}\right) + B}{f(RH)}$$

$$con f(RH) = \frac{1}{1 - \left(\frac{1}{RH}\right)}$$

dove A e B sono coefficienti lineari, HPBL è l'altezza di rimescolamento e f(RH) rappresenta il fattore di crescita dell'aerosol dovuto all'umidità relativa.

Se il dominio di interesse è più grande del granule di AOD a disposizione il tool prevede la possibilità di utilizzare più granule e nel caso in cui ci siano zone coperte da nubi viene utilizzata una procedura di riempimento utilizzando l'algoritmo DINEOF.

## Alcune applicazioni

### *Episodio di trasporto di dust dal lago di Aral*

A fine marzo 2020 si è verificato un fenomeno di trasporto di polveri a grande scala proveniente dall'est Europa orientale come evidenziato dalle immagini elaborate del satellite ESA Sentinel-3 che evidenzia per il 24 marzo la formazione di un "dust-storm" nella zona del lago di Aral (est Europa, zona del Mar Caspio), da diversi anni ormai del tutto prosciugato. Successivamente un flusso proveniente da Est ha investito l'Europa centrale e quindi il centro-nord della penisola italiana.

Tale fenomeno è stato ben riprodotto dalle simulazioni modellistiche come evidenziato in Figura 13.5.3 che mostra le concentrazioni misurate il 28 marzo e le previsioni a 72 ore prodotte il 26 marzo: è ben evidente sia il trasporto di dust con valori alti di PM<sub>10</sub> in Bosnia-Erzegovina e nell'alto Adriatico sia la divisione in due dell'Italia con concentrazioni basse al centro-sud ed alte al centro-nord.

### *Episodio di elevati valori di ozono di fine luglio 2020*

A fine luglio si è verificato un episodio di inquinamento da ozono in particolare nella Pianura Padana. Le figure seguenti mostrano le previsioni a 72 ore, prodotte il 26 luglio ad inizio episodio ed il 1 agosto a fine episodio.

L'evoluzione dell'episodio concluso come previsto il 3 agosto è ben illustrato in Figura 13.5.5 dove sono mostrate le concentrazioni orarie di ozono (dati near real time) sulla Pianura Padana

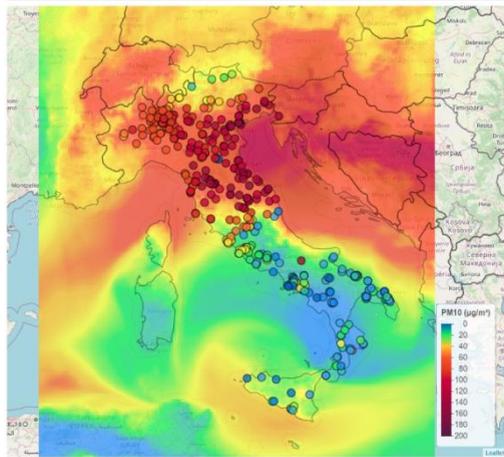


Figura 13.5.3 Concentrazioni di  $\text{PM}_{10}$  previste il 28 marzo a 72 ore e misurate dalla rete di monitoraggio

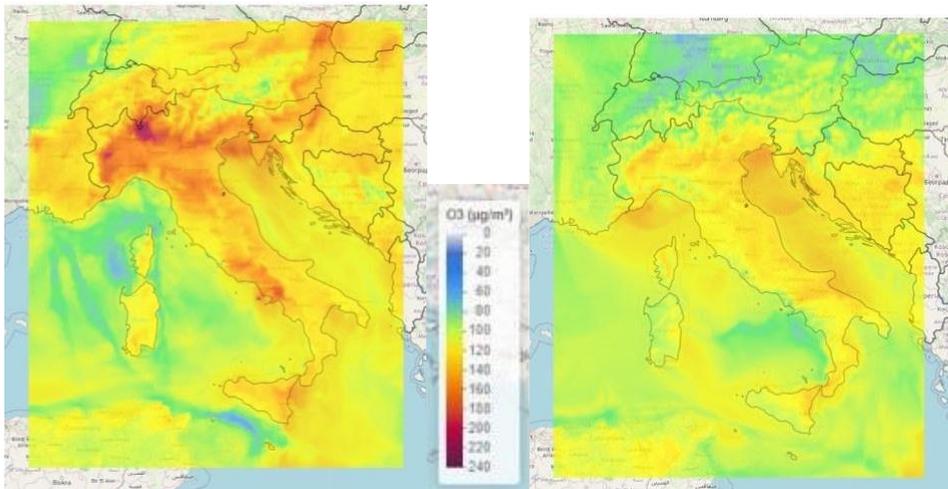


Figura 13.5.4. Livelli massimi orari delle concentrazioni di ozono in Italia, previste per il 28 luglio 2020, prodotte il 26 (a sinistra) e previste per il 3 agosto 2020, prodotte il 1 agosto.

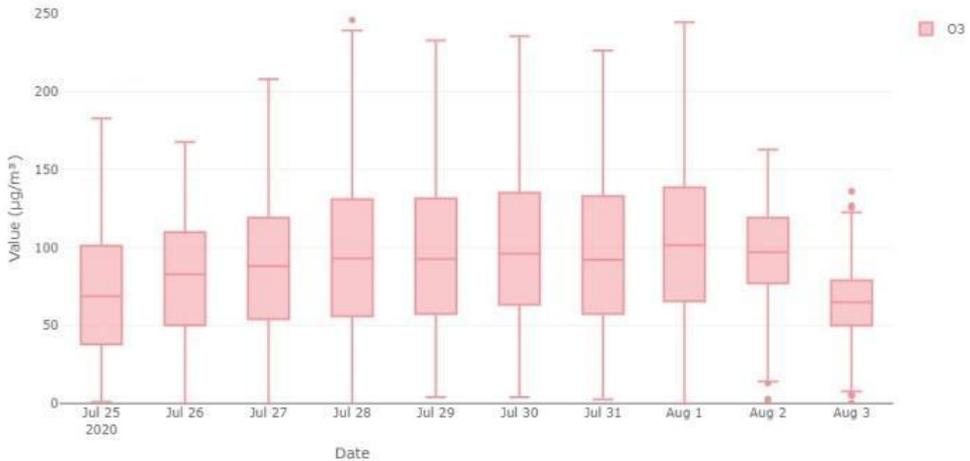


Figura 13.5.5. Box plot delle concentrazioni orarie di ozono (near real time) in Pianura Padana

## Conclusioni

Il servizio sperimentale di modellistica nazionale legato ai prodotti Copernicus CAMS è attualmente operativo e fornisce tutti i giorni condizioni al contorno orarie utili ai modelli di qualità dell'aria ad alta risoluzione su scala regionale a diverse agenzie regionali. Nella suite modellistica inoltre è implementato un algoritmo per la stima della concentrazione media giornaliera di particolato utilizzando i dati di AOD da satellite Sentinel 3 ed un tool di verifica. Il servizio sarà ulteriormente

sviluppato nell'ambito del programma nazionale Copernicus Mirror Programme.

## Ringraziamenti

Si ringrazia l'Agenzia Spaziale Italiana (ASI), Istituto Superiore per la Protezione e Ricerca Ambientale (ISPRA), Arpae Emilia Romagna, Arpa Piemonte, Arpa Umbria, Arpav Veneto, Arpa Friuli Venezia Giulia, Arpa Lazio, Arpac Campania.

**Bibliografia**

M.Stortini, B.Arvari, M.Deserti (2020). Operational Forecast and Daily Assessment of the Air Quality in Italy: A Copernicus-CAMS Downstream Service, *Atmosphere* 2020, 11(5), 447; <https://doi.org/10.3390/atmos11050447>

B.Arvari, (2016). Seasonal monitoring and estimation of regional aerosol distribution over Po valley, northern Italy, using a high-resolution MAIAC product. *Atmospheric environment*, 141, 106-121

G.Cattani, M. Stortini (2020). Le previsioni SNPA dell'ozono utilizzando i servizi di Copernicus (<http://snpambiente.it/2020/08/10/le-previsioni-snpa-dellozono-utilizzando-i-servizi-di-copernicus>)

L. Torregiani, A. Trentini, M.Stortini, V.Poluzzi, M.Ballareni, B.Arvari, T.Bacci (2020) Un episodio di dust storm dal Caspio al Nord Italia . *Ecoscienza* 3/2020.

## 14. MONITORAGGIO DEGLI INQUINANTI NON REGOLAMENTATI

## 14.1 OSSERVAZIONI SULLE CONCENTRAZIONI DI DIOSSINE E FURANI MISURATE DURANTE SITUAZIONI EMERGENZIALI QUALI GLI INCENDI

Cuccia E, Gianelle V, Dal Santo U, Corbella L, Colombi C, Algieri A, Grillo M, Ferrari A

ARPA LOMBARDIA

### RIASSUNTO

Nell'ambito delle attività condotte in emergenza, Arpa Lombardia effettua il monitoraggio della qualità dell'aria durante e successivamente ad incendi della durata di più di sei ore, con la finalità di valutare l'impatto in aree abitate interessate dalla ricaduta dei fumi dell'incendio. La scelta di campionare solo nei casi di incendi di durata superiore alle sei ore è determinata dal fatto che solo in situazione di incendio prolungato sono riscontrabili livelli di inquinanti che si discostano dal fondo.

Nelle varie situazioni sono stati monitorati diversi inquinanti tra cui le diossine (PCDD) ed i furani (PCDF), attraverso il campionamento con sistemi ad alto volume. Tali microinquinanti possono essere considerati come traccianti dei fumi dell'incendio in quanto la loro formazione è favorita nelle combustioni incontrollate di materiale solido di natura eterogenea. Il problema della valutazione dell'impatto sulla qualità dell'aria dei PCDD/DF risulta molto complesso in quanto la concentrazione di questi microinquinanti è molto variabile, dipendendo da numerosi fattori quali, ad esempio, le condizioni meteorologiche e l'orografia della zona, oltre alla tipologia e la quantità dei materiali bruciati. Altri elementi che possono influire sulla dispersione dei fumi e sulle caratteristiche chimico fisiche sono sia le modalità operative attuate dai Vigili del Fuoco per lo spegnimento dell'incendio, sia se l'incendio avviene in campo libero o all'interno di un ambiente chiuso. Inoltre, anche la distanza tra l'incendio e il punto di monitoraggio è un parametro fondamentale ai fini della rilevazione degli inquinanti.

Per effettuare una prima valutazione delle emissioni relative ad un incendio, sono state considerate le concentrazioni di PCDD/DF misurate in 45 incendi avvenuti tra il 2013 ed il 2019. È stata anche considerata

la concentrazione totale dell'insieme dei congeneri, espressa in termini di tossicità equivalente alla 2,3,7,8, TetraCloroDibenzoDiossina tenuto conto dei fattori di tossicità indicati dall'Organizzazione Mondiale della Sanità (OMS) nel 2005. Gli incendi considerati presentano concentrazioni totali equivalenti di PCDD/DF molto diverse tra loro, ovvero nell'intervallo tra 1 e 100000 fgTEQ/m<sup>3</sup>. L'OMS definisce i 300 fgTEQ/m<sup>3</sup>, di presenza continuativa, quale valore indicativo di una situazione di inquinamento in atto. Detto riferimento è fissato per prevenire l'accumulo dei PCDD/F nell'ambiente (matrice suolo) e la loro veicolazione nella catena alimentare. Nel caso di un incendio il valore riscontrato è relativo ad un evento "one shoot" di durata oraria comunque limitata.

Anche le concentrazioni dei singoli PCDD/DF sono risultate molto diverse tra un incendio e l'altro, sia in termini assoluti sia in termini relativi. Sono stati quindi costruiti i profili emissivi degli incendi considerati, ovvero le concentrazioni di PCDD e PCDF relative rispetto alla somma totale di essi, e questi sono stati suddivisi in più gruppi, simili per concentrazioni assolute rilevate, nel tentativo di associare tali classi alle caratteristiche principali di un incendio.

Cercando un approccio complementare, gli incendi sono stati divisi per categorie a partire dalle loro caratteristiche principali sia per valutare eventuali similitudini tra i profili emissivi, sia per poter effettuare uno studio delle caratteristiche che più influiscono sulla concentrazione totale equivalente.

Allo scopo di tenere in considerazione tutte le fasi di un incendio, sono state valutate le concentrazioni rilevate durante tutti i giorni interessati dall'incendio, fino al completo spegnimento. Per confronto i dati raccolti durante le emergenze sono stati confrontati con quelli

raccolti in alcune campagne effettuate in assenza di incendi rilevanti.

## ABSTRACT

In the frame of the emergency activities, Arpa Lombardia monitors the air quality during and after fires that last more than six hours, with the aim of analysing the impact on inhabited areas affected by the fallout of the fumes.

The choice to sample only fires longer than six hours is determined by the fact that only in this situation it is possible to find levels of pollutants greater than the background level. Different pollutants have been monitored, including dioxins (PCDD) and furans (PCDF), through high volume samplers. These micropollutants can be considered as tracers of fire fumes because their formation is favoured in the uncontrolled combustion of heterogeneous solid material. In general, the problem of assessing the impact on the air quality of PCDD / DF is very complex as the concentrations of these micropollutants is highly variable, depending on numerous factors such as, for example, the weather conditions and the orography of the area, in addition to the type and quantity of burnt materials. Other elements that can influence the dispersion of the fumes and their quality are the operating procedures implemented by the fire fighters and whether the fire occurs in a free field or inside a closed environment. Furthermore, the distance between the fire and the monitoring point is also a fundamental parameter for dispersing pollutants.

To carry out a first assessment of the fire emissions, we considered the concentrations of PCDD/DF measured in 45 fires occurred between 2013 and 2019. The total concentration of all congeners was also considered, expressed in terms of toxicity equivalent to that of 2,3,7,8, TetraCloroDibenzoDioxin, taking the toxicity equivalency factors indicated by the World Health Organization (OMS) in 2005 into account. The fumes of the fires considered presented erratic total equivalent concentrations of PCDD/DF, i.e. in the range between 1 and 100000 fgTEQ/m<sup>3</sup>. This reference is set to prevent the accumulation of PCDD/DF in the environment (soil) and their transmission on food chain. During a fire the

values found are related to “a one shot” event of hourly duration, however limited.

The concentrations of the individual PCDD/DFs were also very different between different fires, both in absolute and in relative terms. To assess the presence or otherwise of common characteristics between the fires from the point of view of the dioxins and furans emitted, the fire profiles were constructed, i.e. the concentrations of PCDD and PCDF relative to the total sum of them. The profiles obtained were divided into several categories, similar in terms of measured absolute concentrations, in view of associating these categories with the main characteristics of a fire.

As a complementary approach, we chose to divide the fires into groups based on the fires' behaviour characteristics to evaluate any equality between the emission profiles and to analyse the characteristics that most influence the total equivalent concentration.

In order to take all the phases of a fire into account, the concentrations detected during all the days affected by the fire, until the complete extinction, were evaluated. For comparison, the data collected during emergencies were related with those collected in other campaigns in the absence of significant fires.

**Parole chiave:** diossine, furani, incendi, emergenze

## Introduzione

Da diversi anni ARPA Lombardia effettua, in occasione di incendi di diversa natura e durata, campionamenti in aria di sostanze che possono essere considerate “traccianti” dell'incendio in esame.

Le sostanze ricercate nel corso degli anni con regolarità sono diossine, furani e IPA; tali sostanze necessitano lunghi tempi di campionamento e soprattutto di analisi, incompatibili con la gestione immediata dell'emergenza in corso, ma sono in grado di consentire valutazioni a posteriori in merito alla dinamica e alla evoluzione dell'incendio. Diossine, furani e IPA sono sostanze che si accumulano nei tessuti degli organismi viventi (fenomeno di bioaccumulo) e sono note per i loro effetti

tossici e per la loro cancerogenicità sull'uomo e gli animali. Arpa Lombardia dispone di un archivio contenente dati raccolti in situazioni di emergenza, che seppur non pienamente omogenei tra loro, costituiscono un'utile base conoscitiva per il monitoraggio dei microinquinanti durante eventi emergenziali, quali gli incendi.

Lo scopo del presente lavoro è quello di valutare in maniera organica i dati storici relativi alle misure effettuate durante gli incendi nei quali ARPA ha eseguito tali valutazioni, per pervenire alla definizione di scenari tipo o di qualche forma di correlazione "predittiva" che possa essere utilizzata per avere indicazione già durante le fasi acute dell'emergenza, senza dover necessariamente attendere l'esito delle lunghe analisi dei microinquinanti sui campioni che si andranno a raccogliere e per fornire indicazioni di massima circa la possibile evoluzione dell'evento.

Sulla base di tutte le considerazioni precedenti sono stati scelti quali inquinanti "traccianti" tipici di un incendio, così da distinguere il suo impatto da altre fonti di inquinamento, la classe delle diossine e dei furani (PCDD-DF). Ciò non esclude ovviamente, in casi specifici, l'opportunità di monitoraggio anche di altre sostanze.

## Metodi

I campionamenti di diossine in aria vengono effettuati in occasione di incendi presso attività produttive e/o depositi di rifiuti per i quali è prevista una durata approssimativa dell'evento superiore alle 6 h. L'individuazione di tale durata minima di riferimento deriva principalmente dal fatto che solo incendi di lunga durata generalmente consentono il campionamento di un sufficiente quantitativo di particolato da sottoporre all'analisi, anche considerando i tempi di spostamento e di installazione del campionatore. Durate inferiori dell'incendio non consentirebbero invece alcuna rilevazione utile.

Il campionamento viene effettuato mediante campionatori ad alto volume, con flussi dell'ordine di 200

litri/minuto o maggiori, ovvero dell'ordine di 10 m<sup>3</sup>/h o più. Si tratta quindi di flussi di prelievo di un ordine di grandezza superiore a quelli impiegati dai più tradizionali sistemi di prelievo utilizzati nelle Reti di Rilevamento della Qualità dell'Aria (RRQA) per il monitoraggio del particolato aerodisperso. Inoltre, durante il campionamento non viene effettuata alcuna particolare selezione del particolato aerodisperso, cioè i campionatori ad alto volume utilizzati non sono dotati di selettore per la frazione PM<sub>10</sub> o PM<sub>2,5</sub>. Tali sistemi di prelievo permettono di raccogliere quantità di particolato dell'ordine della decina di milligrammi sufficiente, con le tecniche analitiche in uso, a superarne i limiti di rilevabilità (dell'ordine di 10 fg/m<sup>3</sup> per i vari congeneri dei PCDD-DF). Il campione di polvere è raccolto su filtri a membrana (in microfibre di vetro o in fibre di quarzo) che presentano, per la loro microstruttura, adeguata capacità e basse perdite di carico rispetto ad altre matrici comuni.

In serie al filtro a membrana, i sistemi ad alto volume utilizzati sono dotati di un alloggiamento ove viene posta una spugna cilindrica di poliuretano (PUF) che assorbe i PCDD-DF che sfuggono al filtro poiché non presenti in fase solida o liquida; le analisi dei PCDD-DF sono state effettuate in questo lavoro sul campione complessivo (filtro e PUF) così da avere i PCDD-DF aerodispersi totali, cioè la somma dei PCDD/DF in fase particolata e in fase gassosa. Nella maggior parte delle situazioni trattate il primo campionamento ha una durata di circa 12 ore, con volumi campionati di circa 150 m<sup>3</sup>, mentre i campionamenti successivi sono realizzati con durata di 24 ore.

La scelta del sito di prelievo è stata effettuata laddove possibile, secondo i seguenti criteri: in area abitata, prevalentemente sottovento ai fumi, in un'area corrispondente ad un recettore sensibile (es. scuola, ospedale, casa di riposo, etc.), in una proprietà pubblica (scuola pubblica, area di proprietà comunale, caserma dei carabinieri, etc.) con disponibilità di alimentazione elettrica, in un sito sicuro sia per gli operatori che per la strumentazione. L'ordine di priorità è conseguenza degli obiettivi del monitoraggio precedentemente esposti.

Il fatto di non poter disporre a priori di siti di campionamento confrontabili non permette sempre un confronto diretto delle concentrazioni assolute rilevate nelle diverse situazioni indagate; di questo aspetto si è tenuto conto nelle elaborazioni successive. Tuttavia, i dati consentono un confronto delle concentrazioni relative osservate, allo scopo di poter “pesare” il singolo evento in relazione agli altri.

Nella Tabella 14.1.1 sono riportati i singoli composti appartenenti alla famiglia PCDD/DF con i relativi fattori di tossicità equivalente, così come rispettivamente desunti da I-TEF NATO/CCMS “International Toxicity Equivalency Factor (I-TEF) method of risk assessment for complex mixtures of dioxin and related compounds, 186, 1988” e da “The 2005 World Health Organization

Re-evaluation of Human and Mammalian Toxic Equivalency Factors for Dioxins and Dioxin-like Compounds”.

In questo modo è possibile esprimere la concentrazione totale dei PCDD-DF come sommatoria delle concentrazioni assolute dei diversi congeneri, ciascuna moltiplicata per il relativo TEF:

$$C_{TEQ} = \sum_i C_i \cdot TEF_i$$

dove  $C_j$  è la concentrazione rilevata dell'i-esimo congenere e  $TEF_j$  il relativo fattore di tossicità equivalente.

Tabella 14.1. 1 – Composti appartenenti alla famiglia PCDD/DF con i relativi fattori di tossicità equivalente.

CAS NR <sup>6</sup>	PCCD/DF	IUPAC NAME	I-TEF	TEF OMS
1746-01-6	2,3,7,8 TCDD	2,3,7,8-Tetrachlorodibenzo-p-dioxin	1	1
40321-76-	1,2,3,7,8 PeCDD	1,2,3,7,8-Pentachlorodibenzo-p-dioxin	0.5	1
39227-28-	1,2,3,4,7,8 HxCDD	1,2,3,4,7,8-Hexachlorodibenzodioxin	0.1	0.1
57653-85-	1,2,3,6,7,8 HxCDD	1,2,3,6,7,8-Hexachlorodibenzo-p-dioxin	0.1	0.1
19408-74-	1,2,3,7,8,9 HxCDD	1,2,3,7,8,9- Hexachlorodibenzo-p-dioxin	0.1	0.1
35822-46-	1,2,3,4,6,7,8	1,2,3,4,6,7,8-Heptadichlorodibenzo-p-	0.01	0.01
3268-87-9	OCDD	1,2,3,4,6,7,8,9-Octachlorodibenzo-p-dioxin	0.001	0.0003
51207-31-	2,3,7,8 TCDF	2,3,7,8-Tetrachlorodibenzofuran	0.1	0.1
57117-41-	1,2,3,7,8 PeCDF	1,2,3,7,8-Pentadichlorodibenzofuran	0.05	0.03
57117-31-	2,3,4,7,8 PeCDF	2,3,4,7,8-Pentachlorodibenzofuran	0.5	0.3
70648-26-	1,2,3,4,7,8 HxCDF	1,2,3,4,7,8-Hexachlorodibenzofuran	0.1	0.1
57117-44-	1,2,3,6,7,8 HxCDF	1,2,3,6,7,8- Hexachlorodibenzofuran	0.1	0.1
60851-34-	2,3,4,6,7,8 HxCDF	2,3,4,6,7,8- Hexachlorodibenzofuran	0.1	0.1
72918-21-	1,2,3,7,8,9 HxCDF	1,2,3,7,8,9- Hexachlorodibenzofuran	0.1	0.1
67562-39-	1,2,3,4,6,7,8	1,2,3,4,6,7,8- Hexachlorodibenzofuran	0.01	0.01
55673-89-	1,2,3,4,7,8,9	1,2,3,4,7,8,9-Heptadichlorodibenzofuran	0.01	0.01
39001-02-	OCDF	1,2,3,4,6,7,8,9-Octachlorodibenzofuran	0.001	0.0003

<sup>6</sup> Il CAS NR è il numero identificativo univoco di ogni sostanza attribuito dal Chemical Abstract Service, divisione della American Chemical Society

## Discussione

Poiché per i PCDD-DF non è previsto un limite di legge, quale primo riferimento si possono considerare le concentrazioni di PCDD-DF di fondo ovvero determinate in condizioni non alterate; data la complessità e l'onerosità delle analisi di PCDD-DF, i dati storici per questa classe di inquinanti non sono molto numerosi,

ovvero non sono estesi a tutto il territorio lombardo né fanno riferimento a serie temporali lunghe. Tuttavia, dai dati presenti negli archivi si ritiene si possano comunque trarre alcune utili considerazioni; nella Tabella 14.1.2 sottostante si riportano le concentrazioni di PCDD-DF rilevate nel tempo in alcune località lombarde in occasione di specifici progetti di monitoraggio della qualità dell'aria.

Tabella 14.1.2 – Concentrazioni di PCDD-DF rilevate nel tempo in alcune località lombarde in occasione di specifici progetti di monitoraggio della qualità dell'aria.

Località	Provincia	Periodo		PCDD-DF media (pgTEQ/m <sup>3</sup> )
		dal	al	
Bottanuco	BG	20 dicembre 2016	28 febbraio 2017	0.075
Filago	BG	20 dicembre 2016	28 febbraio 2017	0.030
Madone	BG	20 dicembre 2016	28 febbraio 2017	0.046
Bergamo	BG	20 dicembre 2016	28 febbraio 2017	0.029
Brescia Via Cantore	BS	2 dicembre 2013	24 marzo 2014	0.021
Brescia Via Cantore	BS	28 dicembre 2015	24 febbraio 2016	0.117
Brescia Circoscrizione	BS	2 dicembre 2013	24 marzo 2014	0.035
Brescia Villaggio Sereno	BS	2 dicembre 2013	24 marzo 2014	0.028
Milano Via Pascal	MI	27 luglio 2013	16 agosto 2013	0.010
Milano Via Pascal	MI	10 febbraio 2014	10 marzo 2014	0.034
Dorno	PV	22 dicembre 2016	7 febbraio 2017	0.035
Gallivola	PV	2 dicembre 2017	7 febbraio 2017	0.012
Parona	PV	22 luglio 2013	16 agosto 2013	0.056
Parona	PV	10 febbraio 2014	10 marzo 2014	< 0.060
Pieve Albignola	PV	22 dicembre 2016	31 dicembre 2016	0.027
Pieve Albignola	PV	5 febbraio 2017	25 febbraio 2017	0.014

Dalla Tabella 14.1.2 risulta che, in condizioni di qualità dell'aria non alterata da eventi emissivi straordinari, la concentrazione di PCDD-DF è generalmente inferiore 0,10 pgTEQ/m<sup>3</sup>, valore che possiamo quindi considerare come concentrazione di riferimento tipica in ambito urbano.

L'OMS nel suo documento "Air Quality Guide Lines for Europe" non suggerisce alcun valore limite per l'aria ambiente, dal momento che l'esposizione della popolazione a PCDD-DF per inalazione diretta

costituisce solo una piccola percentuale - generalmente inferiore al 5% - di quanto l'uomo assume normalmente ogni giorno attraverso il cibo. L'OMS individua solo un valore di 0,30 pgTEQ/m<sup>3</sup> (300 fgTEQ/m<sup>3</sup>) come indicativo della presenza di una sorgente locale che necessita di essere individuata e controllata; tale valore non è quindi rilevante ai fini degli effetti sanitari diretti da inalazione, ma al fine di evitare la dispersione prolungata di questi inquinanti nell'ambiente e da qui, nel tempo, attraverso il meccanismo del bio-accumulo che va ad alterare la catena alimentare, l'esposizione dell'uomo. Nel caso

degli incendi la sorgente è nota e, generalmente, superata la fase acuta, nell'arco delle 24/48 ore successive, i valori dei contaminanti atmosferici rientrano nei livelli normalmente registrati nelle zone monitorate nel medesimo periodo dell'anno.

Pertanto, una concentrazione di PCDD-DF inferiore a  $0,30 \text{ pgTEQ/m}^3$  ( $300 \text{ fgTEQ/m}^3$ ) è stata considerata quale riferimento per il rientro ad una condizione indicativa di un impatto non significativo sulla qualità dell'aria di un incendio, fatto salvo ovviamente eventuali altri specifici indicatori.

In questo lavoro sono stati analizzati 45 incendi verificatisi tra il 2013 ed il 2019 in Lombardia. Sono state dunque prese in considerazione le concentrazioni delle diverse diossine (PCDD) e furani (PCDF) rilevati, espressi come concentrazione totale tra la fase gassosa e le fasi solida e liquida. Per ogni incendio è stata anche calcolata la concentrazione totale dell'insieme dei

congeneri, espressa in termini di tossicità equivalente alla 2,3,7,8, TetraCloroDibenzoDiossina (2,3,7,8 TCDD – detta anche “diossina di Seveso”) tenuto conto dei fattori di tossicità indicati dall'Organizzazione Mondiale della Sanità nel 2005 (TEF OMS 2005). Per il calcolo della tossicità equivalente, in presenza di valori inferiori al limite di rilevabilità, è stata utilizzata la metà di tale valore. Gli incendi presentano concentrazioni totali espresse in termini di tossicità equivalente di PCDD/DF molto diverse tra loro (tra 1 e  $100000 \text{ fgTEQ/m}^3$ ) (Figura 14.1.1). Sono emersi 19 incendi con un valore di concentrazione di diossine e furani totali maggiore del valore di riferimento di  $0,30 \text{ pgTEQ/m}^3$  ( $300 \text{ fgTEQ/m}^3$ ) individuato dall'OMS quale indicativo di una situazione di inquinamento in atto e quindi meritorio di approfondimento.

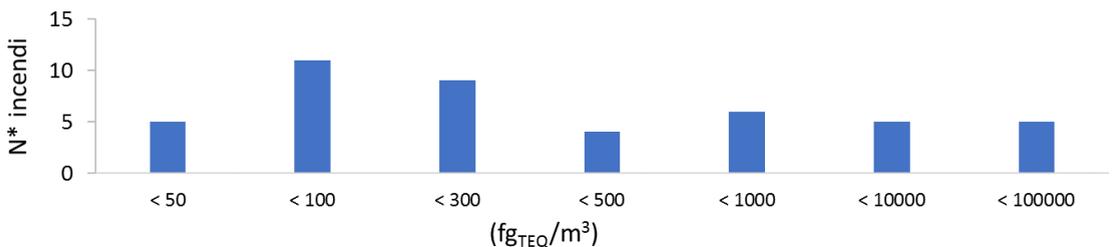


Figura 14.1.1. Distribuzione del numero degli incendi considerati in 7 classi di concentrazione.

Anche le concentrazioni dei singoli composti di diossine e furani sono molto diverse tra gli incendi, sia in termini di concentrazioni assolute, sia in termini di concentrazioni relative. Per valutare la presenza o meno di caratteristiche comuni tra gli incendi dal punto di vista delle diossine e furani emessi, sono stati costruiti i profili degli incendi considerati, ovvero le concentrazioni relative di PCDD e PCDF rispetto alla somma totale di essi. Nella costruzione dei profili sono stati considerati solo le diossine ed i furani presenti con concentrazione maggiori del limite di rilevabilità.

Sono stati esaminati inizialmente solo i dati raccolti durante il primo giorno dell'incendio e, come prima analisi, gli incendi sono stati divisi per categorie a partire dalla tipologia di materiale combusto.

Sono state individuate 5 classi di materiale combusto denominate Carta e Imballaggi, Plastica, Materiale vario, Attività e Materiali Ferrosi (Figura 14.1.2). Purtroppo, non è sempre stato possibile essere precisi nell'individuazione esatta del materiale bruciato durante gli incendi, soprattutto perché nella maggior parte dei casi non brucia una sola tipologia di materiale. Nella

categoria “Attività” rientrano gli incendi che non coinvolgono rifiuti o altra specifica tipologia di materiale.

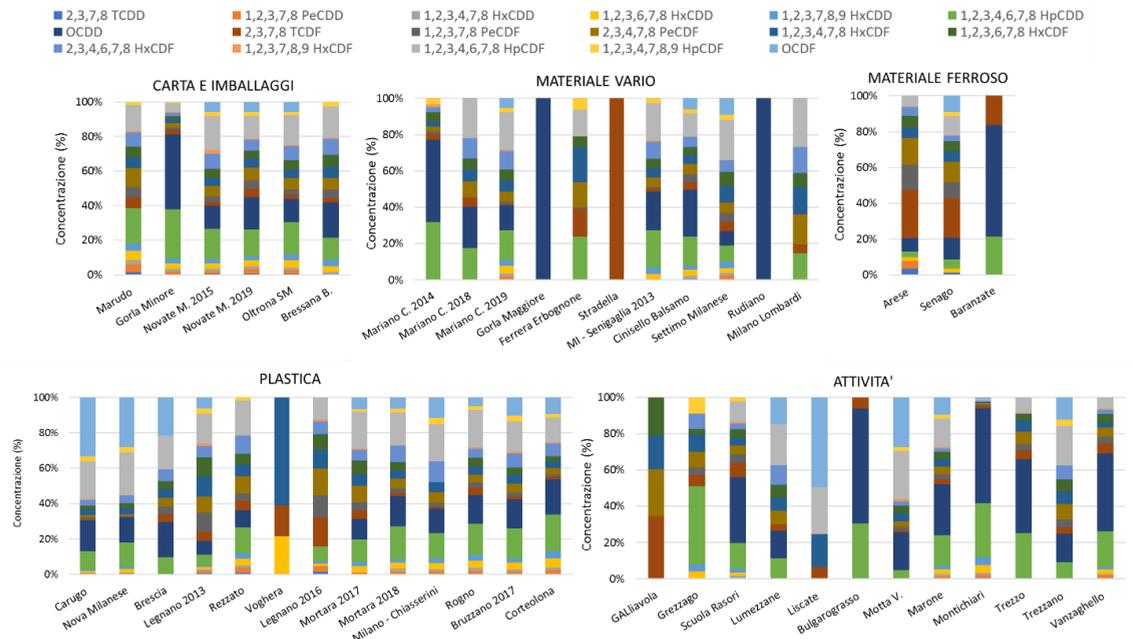


Figura 14.1.2. Profili degli incendi divisi in base al combustibile prevalente (calcolati per ogni diossina e furano come percentuale sulla somma).

Non sembra essere presente uno specifico profilo comune all'interno delle categorie di materiale combusto, tuttavia si osservano alcune caratteristiche simili. La categoria che racchiude gli incendi che coinvolgono materiale plastico mostra principalmente profili che contengono tutte le diossine ed i furani ed in particolare sembra presente costantemente l'OCDF.

Nelle combustioni della carta sembrano invece dominanti le diossine 1,2,3,4,6,7,8 HpCDD e OCDD. Si nota inoltre che quando si ha materiale ferroso o metallico, la presenza di oli lubrificanti insieme all'effetto catalizzatore dei metalli produce specifiche diossine, in particolare la 2,3,7,8, TCDF.

La presenza del furano 2,3,7,8 TCDF è riscontrabile anche nei profili di alcuni incendi inseriti in altre categorie. Questo suggerisce la presenza di materiale ferroso anche in incendi dove il materiale combusto prevalente era di altra natura.

Sulla base di queste considerazioni gli incendi considerati sono stati riclassificati in categorie simili a partire dai loro profili piuttosto che dalle informazioni raccolte a priori. In questo modo sono state identificate 6 categorie di profili simili tra loro (Figura 14.1.3).

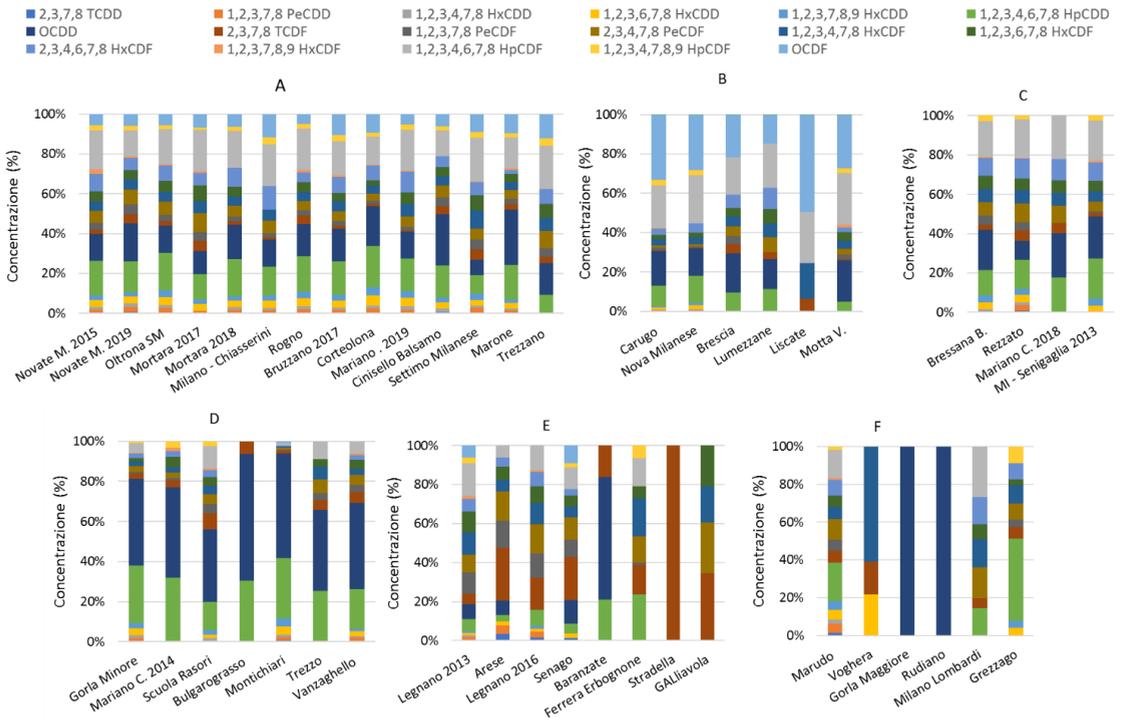


Figura 14.1.3. Profili degli incendi divisi in base alle similitudini dei rapporti tra le singole diossine e furani (calcolati per ogni diossina e furano come percentuale sulla somma).

La classe denominata A raccoglie gli incendi durante i quali si ha emissione della maggior parte delle diossine e furani, in particolare 1,2,3,4,6,7,8 HpCDD e OCDD come diossine e 1,2,3,4,6,7,8 HpCDF come furano. La categoria B sembra caratterizzata dal furano OCDF, insieme a OCDD e 1,2,3,4,6,7,8 HpCDF. La terza classe C è caratterizzata dall'emissione di 1,2,3,4,6,7,8 HpCDD e OCDD come diossine e 1,2,3,4,6,7,8 HpCDF, mentre la classe D è caratterizzata dall'emissione di quasi solo diossine (in particolare 1,2,3,4,6,7,8 HpCDD e OCDD). La categoria E è caratterizzata dalla presenza del furano 2,3,7,8, TCDF, mentre la categoria F raccoglie gli incendi che non rientrano nelle categorie precedenti. Quello che emerge è che nel profilo della categoria A sono presenti

tutte le diossine ed i furani, mentre nei profili delle categorie successive queste spariscono ad una ad una fino alla classe F che contiene in prevalenza incendi con profili caratterizzati da una o poche diossine o furani. Nei profili delle classi A, B e C sono presenti sia le diossine che i furani, mentre nei profili delle successive classi sono presenti quasi esclusivamente diossine.

I profili dei 45 incendi sono stati sottoposti ad analisi a cluster gerarchica (indice di similarità  $R^2$  e rappresentante del cluster centroide) ed il dendrogramma ottenuto è mostrato in Figura 14.1.4. Si noti come la suddivisione degli incendi in gruppi caratterizzati da profili simili effettuata in precedenza sia confermata dall'analisi a cluster.

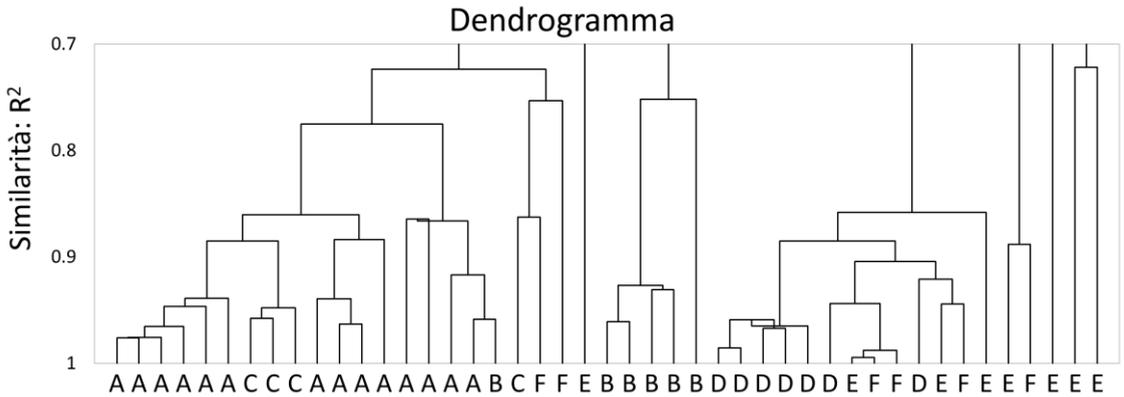


Figura 14.1.4. Dendrogramma ottenuto attraverso analisi a cluster di tipo gerarchico.

Allo scopo di valutare non solo i profili degli incendi ma anche la concentrazione totale equivalente di PCDD/DF, in Figura 14.1.5 è mostrata la distribuzione in numero degli incendi in 7 diverse classi di concentrazione totale equivalente di PCDD/DF per le diverse categorie di materiale combusto individuate. Si nota come gli incendi in cui sono coinvolti materiali in plastica ed in carta sono distribuiti nelle classi di concentrazione superiori a 300 fgTEQ/m<sup>3</sup>, mentre gli incendi appartenenti alla categoria "Attività" presentano in prevalenza concentrazioni totali inferiori a 300 fgTEQ/m<sup>3</sup>, fatto salvo per due incendi molto rilevanti quali Marudo (filati) e Montichiari ( falegnameria) nei quali sono andate a fuoco diverse decine di m<sup>3</sup> di materiale. In particolare, si nota come

questi due incendi abbiamo valori di TEQ elevati e confrontabili con gli incendi in cui è bruciata prevalentemente plastica, ma i loro profili sono rispettivamente nelle categorie D ed F e quindi confrontabili con quelli di incendi aventi la stessa tipologia di materiale bruciato.

Anche gli incendi categorizzati come materiale vario presentano in prevalenza concentrazioni totali inferiori a 300 fgTEQ/m<sup>3</sup>, fatto salvo alcuni casi dove è possibile che fosse presente materiale plastico.

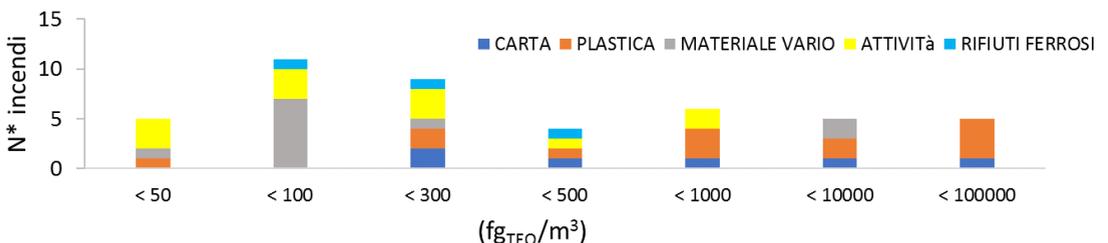


Figura 14.1.5. Distribuzione del numero degli incendi considerati in 7 classi di concentrazione, divisi per materiale combusto.

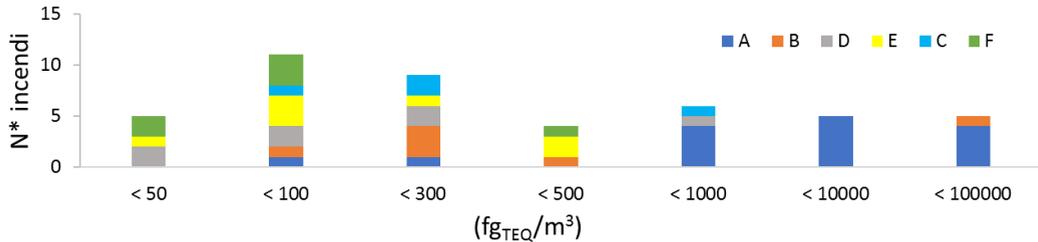


Figura 14.1.6. Distribuzione del numero degli incendi considerati in 7 classi di concentrazione divisi per categorie di profili.

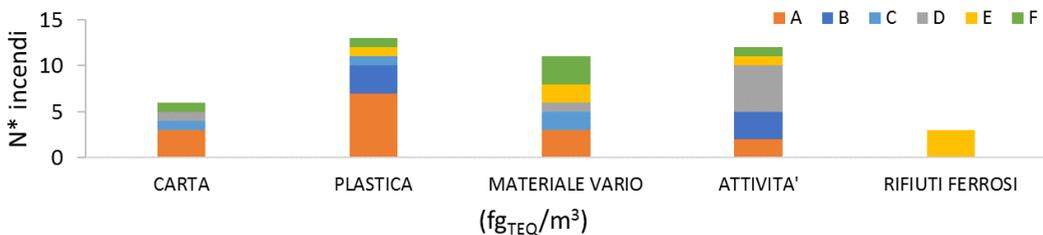


Figura 14.1.7. Confronto tra le classi di profili simili e le tipologie di materiale combustibile.

Nuovamente è stata costruita la distribuzione in numero delle concentrazioni totali equivalenti separata per categorie di profili simili (Figura 14.1.6); si nota come gli incendi della categoria A, ovvero la categoria che presenta tutte le diossine e furani, sia quella che presenta le maggiori concentrazioni totali equivalenti. In Figura 14.1.7 sono mostrate le classi di profili simili che riscontriamo nelle diverse categorie di combustibile allo scopo di evidenziare una possibile associazione tra categorie di profili simili ai gruppi di incendi accomunati dal materiale combusto. Non sembra esserci evidenza di un'associazione diretta tra le due categorie; la tipologia di materiale combusto non è quindi l'unico parametro da cui dipende la concentrazione delle diossine e dei furani emessi.

Non sono purtroppo note esattamente le caratteristiche dei luoghi in cui si sono sviluppati gli incendi (campo aperto, campo chiuso), ma sulla base degli elementi raccolti è emerso che non sembra esserci un legame tra le categorie di profili e la configurazione del luogo dell'incendio.

In Figura 14.1.8 è mostrata la distribuzione del numero degli incendi considerati in 7 classi di concentrazione, espressa in fgTEQ/m<sup>3</sup>, suddivisi per numero di campioni raccolti in successione quale indicatore della durata dell'incendio. Si osserva che le concentrazioni maggiori corrispondono tendenzialmente a incendi nei quali si sono raccolti più campioni, ovvero a eventi di maggior durata.

Questo porta a pensare ad una possibile correlazione tra la massa di materiale bruciato e la concentrazione totale equivalente prodotta, come già avevano portato ad ipotizzare gli incendi Marudo e Montichiari. La correlazione tuttavia viene alterata dalle condizioni meteorologiche e in particolare dalla presenza di precipitazioni o di un differente regime anemologico

durante l'incendio. Essendo il numero degli eventi fortunatamente limitato, con la base di dati a disposizione la disaggregazione ulteriore degli eventi sulla base delle condizioni meteorologiche non consentirebbe ulteriori considerazioni solide.

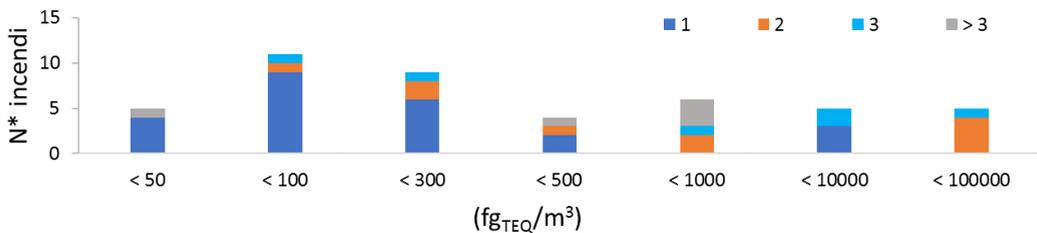


Figura 14.1.8. Distribuzione del numero degli incendi considerati in 7 classi di concentrazione divisi per numero di campioni raccolti.

In seguito, in Tabella 14.1. 3 si mostra l'intervallo di concentrazioni riscontrate in base al materiale combusto. In tale Tabella 14.1. sono riportate le concentrazioni relative a tutti i giorni di misura.

Tabella 14.1. 3 – Range di concentrazioni riscontrate in base al materiale combusto. Concentrazioni relative a tutti i giorni di misura. Tra parentesi è riportato il numero di incendi sui quali è calcolato l'intervallo di concentrazioni.

Materiale combusto	Numero di giorni di campionamento	Concentrazione TEQ misurata durante il	Concentrazione TEQ misurata durante il	Concentrazione TEQ misurata	Concentrazione TEQ misurata durante il
		$fg_{TEQ}/m^3$	$fg_{TEQ}/m^3$	$fg_{TEQ}/m^3$	$fg_{TEQ}/m^3$
Carta	1 gg	268 – 1710 (3)	---	---	---
	> 1 gg	169 – 23901 (3)	72 – 3663 (3)	21 (1)	---
Plastica	1 gg	20 – 1166 (5)	---	---	---
	> 1 gg	506 – 23562 (5)	10 – 307 (5)	9 - 176 (4)	33 - 146 (2)
Rifuti	1 gg	9 – 7281 (7)	---	---	---
	> 1 gg	38 – 74344 (7)	17 - 89669 (7)	37 – 1480 (4)	169 - 1596 (2)
Attività	1 gg	24 – 133 (7)	---	---	---
	> 1 gg	11 – 981 (5)	17 – 445 (5)	53 - 57 (2)	7 (1)
Ferro	1 gg	5 – 117 (2)	---	---	---
	> 1 gg	321 (1)	169 (1)	46 (1)	17 (1)

Dai dati precedenti risulta che la concentrazione maggiore di PCDD-DF si riscontra negli incendi di maggior durata; questo indica che le emissioni di diossine e furani sono maggiori in misura proporzionale al quantitativo di materiale disponibile alla combustione. Tra gli incendi che emergono per concentrazione di PCDD-DF vi sono quelli dove è presente materiale in plastica.

Dalla lettura della Tabella 14.1.3 risulta che anche per incendi di breve durata (1 giorno), se vi è coinvolto materiale plastico (anche in forma non prevalente come ad esempio la carta imballata), le concentrazioni di PCDD-DF superano il valore di riferimento OMS di 0.30 pgTEQ/m<sup>3</sup> (300 fgTEQ/m<sup>3</sup>), indicativo di una situazione di inquinamento di diossine in atto.

Nei grafici seguenti (Figura 14.1.9-10) sono mostrati i profili relativi a due incendi durante i quali sono stati effettuati campionamenti per più giorni consecutivi. È possibile osservare l'evoluzione temporale

dell'emissione dell'incendio, sia in termini di concentrazione totale equivalente che in termini di diossine e furani emessi rispetto alla somma totale di essi (profili). Si nota come durante i primi giorni successivi all'incendio i profili rimangano pressoché costanti, mentre durante gli ultimi giorni di campionamento non siano più presenti tutte le diossine ed i furani ma rimangano solo presenti alcuni di essi. In alcune situazioni le concentrazioni di diossine possono risultare maggiori il secondo giorno dell'evento in relazione all'abbassamento della temperatura di combustione legato alle attività di spegnimento. Come noto, l'abbassamento della temperatura rende la combustione meno efficiente e quindi vi è associata una maggiore emissione di molecole complesse come le diossine.

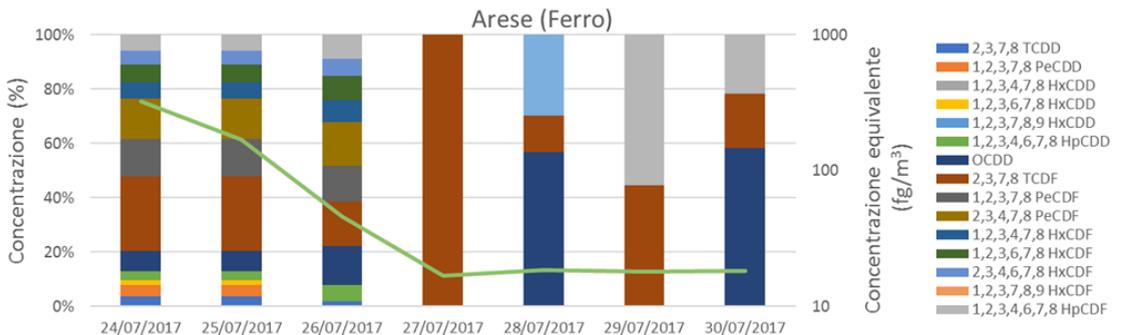


Figura 14.1.9. Profili relativi diversi giorni di campionamento successivi all'incendio avvenuto ad Arese (calcolati per ogni diossina e furano come percentuale sulla somma).

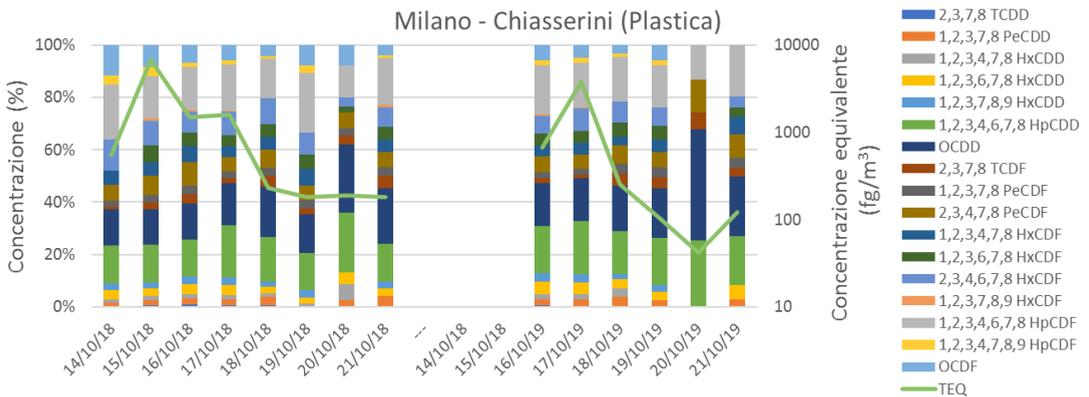


Figura 14.1.10. Profili relativi diversi giorni di campionamento successivi all'incendio avvenuto a Milano Via Chiasserini (calcolati per ogni diossina e furano come percentuale sulla somma).

## Conclusioni

Partendo dall'analisi dei dati di campionamento di diossine nell'aria effettuati in occasione di incendi in Lombardia, si è cercato da una parte di raggruppare gli eventi in macrocategorie merceologiche e dall'altra di stabilire dei possibili raggruppamenti partendo dall'analisi dell'impronta delle diossine. È stata inoltre identificata una matrice in cui indicare, per ogni macrocategoria di incendio, il range storico dei quantitativi di diossine trovati.

Sulla base dei dati raccolti finora e delle analisi effettuate è possibile concludere che sono attese concentrazioni di PCDD/DF superiori al valore di riferimento dell'OMS di  $0,30 \text{ pgTEQ/m}^3$  ( $300 \text{ fgTEQ/m}^3$ ), indicativo di una situazione di inquinamento di diossine in atto, quando si

ha combustione di materiale plastico o cartaceo in presenza di metalli; le concentrazioni attese sono superiori al valore di riferimento anche nel caso in cui la quantità di materiale coinvolto è tale da prolungare l'evento per oltre un giorno, indipendentemente dal materiale combusto prevalente.

## 14.2 VALUTAZIONE DEGLI IMPATTI SULL'ATMOSFERA DI UNA FONDERIA MEDIANTE UTILIZZO DI METODICHE INTEGRATE DI CAMPIONAMENTO, ANALISI IN CAMPO E DEFINIZIONE DI VALORI SOGLIA MEDIANTE TECNICHE STATISTICHE

C. Otta, V. Ameglio, L. Erbetta, C. Littera, G. Mensi, E. Scagliotti, D. Bianchi, S. Buratto

ARPA PIEMONTE

### RIASSUNTO

Le fonderie costituiscono di per sé un fattore di pressione ambientale importante sul territorio, che può determinare impatti significativi soprattutto se inserite in contesti urbanizzati. Lo studio in esame ha voluto approfondire l'impatto locale sulla qualità dell'aria riconducibile alle emissioni di una fonderia di ghisa ubicata in un piccolo comune collinare della provincia di Asti. Il piano di monitoraggio ha previsto una prima fase di modellizzazione meteo-dispersiva delle emissioni inquinanti dell'azienda e loro ricadute sul centro abitato circostante in modo tale da individuare le aree bersaglio e quelle di bianco di confronto. Conseguentemente è stato pianificato un monitoraggio pluriennale di inquinanti gassosi non normati e di polveri PM<sub>10</sub> con determinazione di IPA e metalli pesanti. La quantificazione dell'impatto da polveri diffuse di natura grossolana, provenienti dagli stoccaggi esterni delle terre di fonderia, è stata invece effettuata attraverso un monitoraggio specifico per la determinazione dei tassi di deposizione delle specie metalliche caratteristiche del processo industriale. La valutazione degli impatti locali è stata effettuata mediante la definizione di soglie di riferimento statistiche ad hoc. Un'ulteriore indagine è stata condotta utilizzando uno spettrometro a raggi X portatile, per la misura dell'abbondanza di metalli, direttamente sul materiale pulverulento stoccato sul piazzale della ditta e su campioni di polveri grossolane prelevati presso abitazioni adiacenti. Il confronto tra la distribuzione percentuale dei metalli determinati nei vari campioni ha permesso di riconoscere, attraverso la tecnica delle "finger prints", le impronte delle emissioni diffuse e la loro provenienza. Lo studio condotto ha costituito la base di partenza per la predisposizione, da

parte dell'azienda, di un piano di miglioramento per il contenimento delle emissioni pulverulente.

**Parole chiave:** Fonderie, deposizioni atmosferiche, metalli, soglie statistiche

### ABSTRACT

Foundries are an important environmental pressure factor, as they have significant impacts especially if inserted in urbanized contexts. The study aimed to investigate the local impact on air quality due to the emissions of a cast iron foundry located in a small hill town in the Asti province. First of all, the monitoring plan provided a weather-dispersive modelling of the factory's polluting emissions and their fallout on the surroundings in order to identify the target areas and the white areas for comparison. Consequently, a multi-year monitoring of gaseous not regulated pollutants and PM<sub>10</sub> powders has been set up with determination of PAH and heavy metals. Moreover, the quantification of the impact from diffuse coarse powders, coming from the external storage of the foundry lands, was carried out through specific monitoring for the determination of the deposition rates of the metallic species characteristic of the industrial process. The impact assessment was estimated by defining statistical reference thresholds suitable for indicating the presence of local impacts on specific environmental targets. A further investigation was conducted using a portable XRF analyzer to measure the abundance of metals directly on the powdered material stored on the company's yard and on samples of coarse dust fallen on various surfaces (courtyards, balcony, etc.) of nearby buildings. The comparison made between the percentage distribution of the metals in the various samples using the "finger-prints" technique allowed to

identify the origin of the diffused emissions. This study was the starting point of an improvement plan in order to reduce diffuse dust.

**Keywords:** Foundries, atmospheric depositions, metals, statistical thresholds.

### Introduzione

Le fonderie costituiscono di per sé un fattore di pressione ambientale importante sul territorio, che può determinare impatti significativi soprattutto se inserite in contesti urbanizzati. Lo studio in esame ha voluto approfondire l'impatto locale sulla qualità dell'aria riconducibile alle emissioni di una fonderia di ghisa ubicata in un piccolo comune collinare della provincia di Asti. L'azienda opera nella produzione di componenti in ghisa per veicoli industriali. Il ciclo produttivo comprende numerose fasi che possono essere ricondotte a due principali aree: quella fusoria, nella quale vengono effettuate le attività di preparazione della lega metallica fusa e quella di formatura, nella quale vengono svolte le attività di realizzazione dei getti, fra cui la fase di colata del metallo nella forma. Gli impatti, legati alle emissioni in atmosfera, riguardano essenzialmente composti organici e inorganici volatili, odorigeni e non, microinquinanti e polveri che derivano dalle varie fasi di processo. Le emissioni possono essere distinte in due classi: quelle convogliate, emesse a valle di un impianto di filtrazione,

e quelle diffuse/fuggitive che non vengono captate né trattate da filtri e, nel caso specifico delle polveri, comprendono classi granulometriche anche grossolane.

### Risultati

*Simulazione modellistica e monitoraggio inquinanti atmosferici*

Il piano di monitoraggio ha previsto una prima fase di modellizzazione meteo-dispersiva delle emissioni inquinanti dell'azienda e loro ricadute sul centro abitato circostante, in modo tale da individuare le aree bersaglio e quelle di bianco di confronto. Il software di calcolo utilizzato per lo studio è un modello gaussiano, con trattazione delle calme di vento, idoneo per la valutazione dell'impatto a lungo termine delle emissioni industriali. Le ipotesi su cui è basato il modello sono generalmente conservative e consentono una stima dell'inquinamento sull'anno in domini di dimensione variabile da 1 a 30 Km. Sulle basi delle risultanze ottenute con modello di ricaduta (Figura 14.2.1) sono stati individuati tre punti di monitoraggio (Figura 14.2.2), ove sono stati posizionati campionatori trasportabili di polveri PM<sub>10</sub> (punti B e C) e il laboratorio mobile per la qualità dell'aria per la misura di inquinanti gassosi e polveri PM<sub>10</sub> (punto A).

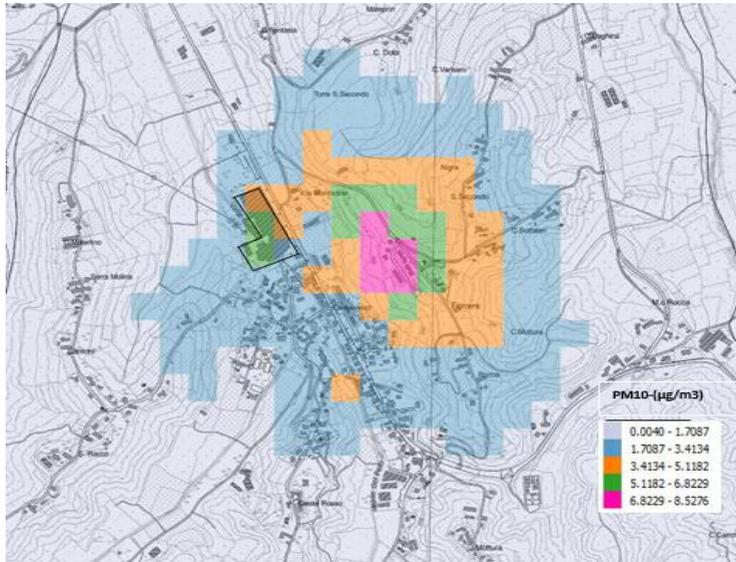


Figura 14.2.1. PM<sub>10</sub>: concentrazioni medie annue dell'impianto industriale ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) -Risultati delle simulazioni modellistiche.

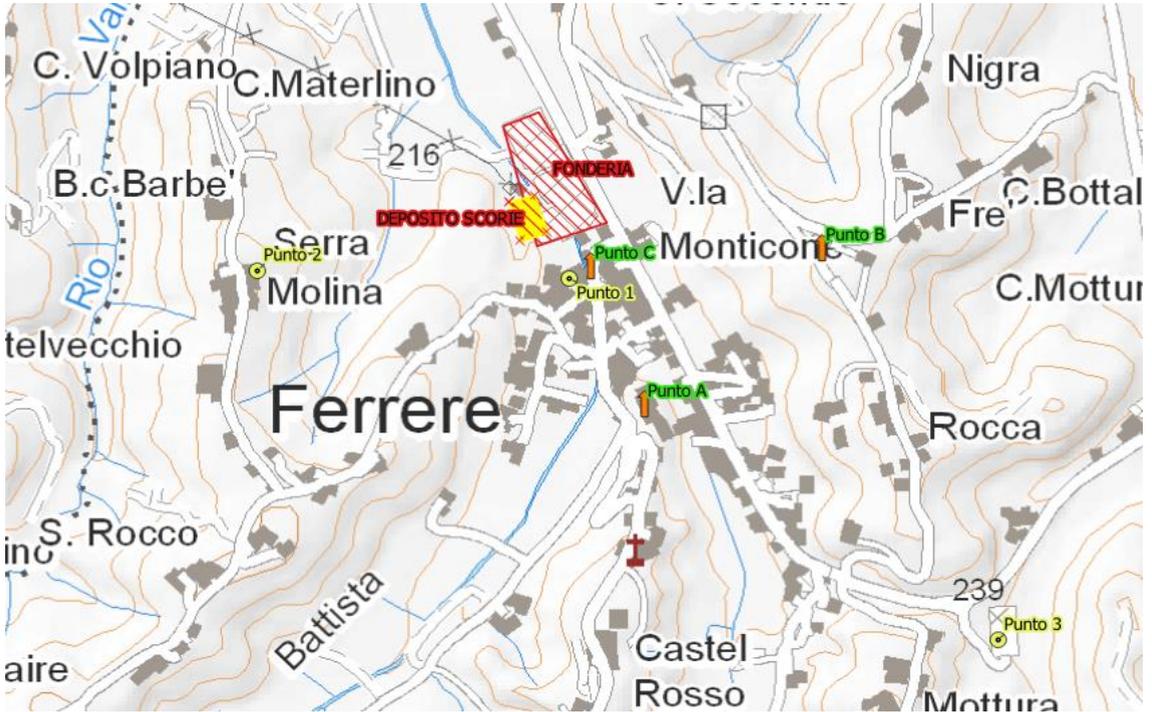


Figura 14.2.2. Punti di monitoraggio deposizioni (pallini gialli), laboratorio mobile e campionatori trasportabili di polveri (frece arancioni)

I monitoraggi, della durata di 30 giorni circa, sono stati eseguiti a dicembre 2016 e a luglio 2017 e sui filtri di polveri  $PM_{10}$  sono stati determinati IPA e metalli pesanti. Contestualmente, sono stati posizionati campionatori passivi per composti organici volatili presso vari punti del centro abitato su cui sono stati determinati idrocarburi aromatici e aldeidi riconducibili al ciclo produttivo. I risultati hanno evidenziato un innalzamento dei livelli di

fondo per benzene (Figura 14.2.3) e formaldeide (Figura 14.2.4) rispetto ai valori massimi e minimi registrati dalla rete regionale della qualità dell'aria del Piemonte, mentre non si sono riscontrate concentrazioni anomale di  $PM_{10}$ , né livelli di metalli e IPA su  $PM_{10}$  superiori ai siti di confronto.

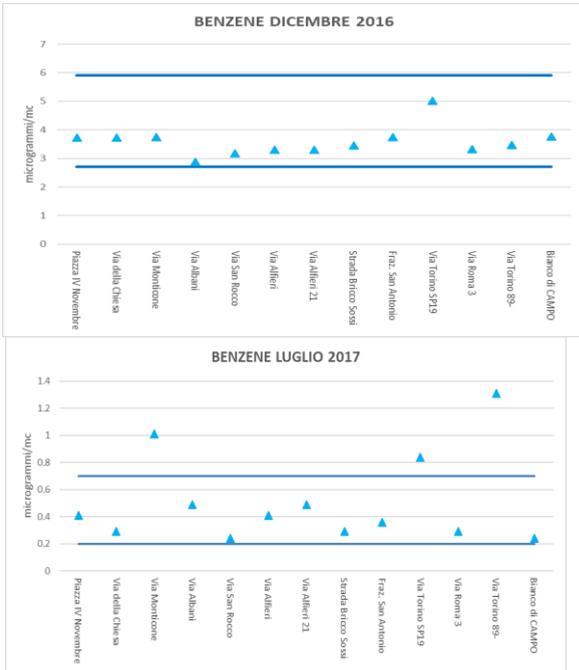
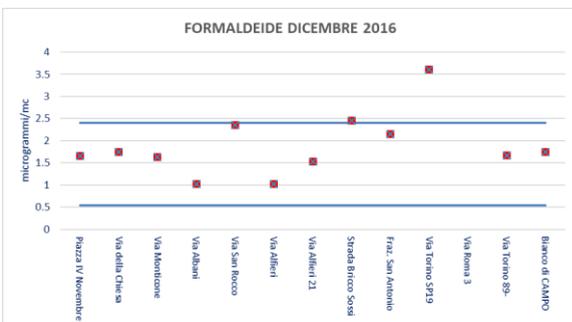


Figura 14.2.3. Risultati misure di BENZENE con campionatori passivi campagne di monitoraggio estiva e invernale rispetto a valori MIN/MAX registrati dalla rete regionale piemontese.



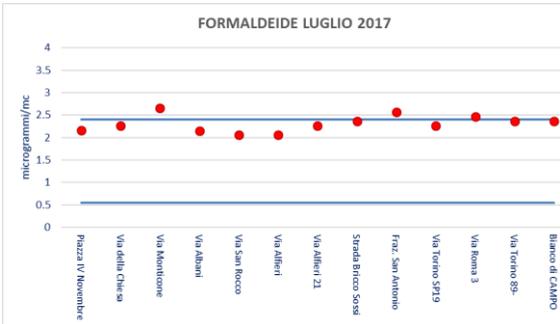


Figura 14.2.4. Risultati misure di FORMALDEIDE con campionatori passivi (campagne di monitoraggio estiva e invernale) rispetto a valori MIN/MAX registrati a livello piemontese.

#### *Determinazione delle emissioni diffuse tramite misura delle deposizioni atmosferiche totali di metalli*

Per poter quantificare l'impatto da polveri diffuse provenienti dalla fonderia sul centro urbano circostante, costituito prevalentemente da particelle di natura grossolana, che tendono a sedimentare in prossimità della sorgente di emissione, è stata eseguita la misura dei tassi di deposizione. Le deposizioni atmosferiche rappresentano una delle principali fonti di microelementi per il suolo, le acque e la vegetazione e sono una importante via di rimozione dei vari inquinanti, sia di origine naturale che antropica, presenti nell'atmosfera. Si distinguono due processi di deposizione:

- la deposizione umida (wet deposition): l'insieme di tutti i processi di trasporto degli inquinanti atmosferici al suolo in una delle varie forme di precipitazione (pioggia, neve, nebbia);
- la deposizione secca (dry deposition): l'insieme di tutti i processi di trasporto e rimozione di gas e aerosol dall'atmosfera alla superficie terrestre in assenza di precipitazione. Essa comprende lo scambio dinamico di gas in tracce e aerosol e la sedimentazione per effetto della gravità delle particelle di dimensioni maggiori. La somma dei due contributi costituisce la deposizione atmosferica totale.

I punti scelti per il campionamento sono stati individuati presso due abitazioni private, una posta in vicinanza del perimetro sud dello stabilimento a distanza di 100m (PUNTO 1) e l'altra, più distante, in zona collinare, 600m a ovest rispetto all'azienda e posta in quota più elevata (PUNTO 2) nella quale è stata installata anche una stazione meteo (Figura 14.2.2). Un terzo punto, cosiddetto di bianco, a 1300m circa dalla sorgente, è stato individuato come rappresentativo dei livelli di fondo ambientale della zona cui fare riferimento come confronto tra zone esposte e non esposte (PUNTO 3). I campioni sono stati raccolti con frequenza mensile secondo la norma UNI EN 15841:2010. Il protocollo analitico è stato arricchito dei seguenti parametri: Cobalto, Cromo, Rame, Zinco e Ferro, alcuni dei quali caratteristici del processo industriale considerato. Sono stati utilizzati deposimetri DEPOBULK® in polietilene, costituiti da un sistema combinato da imbuto più bottiglia aperto, esposto all'atmosfera per tutta la durata del campionamento. Il monitoraggio è iniziato nel mese di aprile 2017 e si è concluso nel mese di aprile 2018, per un totale di 12 campioni mensili per sito. I risultati hanno evidenziato una notevole abbondanza di ferro in tutti i punti e di alcuni altri metalli presso il punto 1 (Figura 14.2.5).

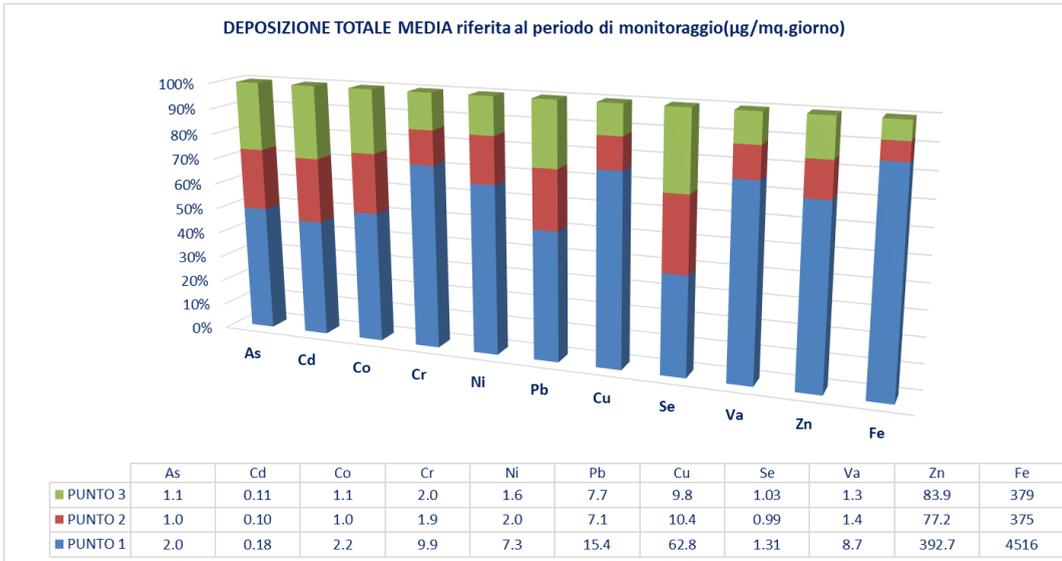


Figura 14.2.5. Risultati del campionamento delle deposizioni su 1 anno.

La norma non prevede limiti o valori obiettivo per le deposizioni, pertanto i risultati del campionamento sono stati confrontati in prima battuta con i valori soglia adottati in alcuni paesi europei (Tabella 14.2.1) in base alle quali si evidenziava presso il punto 1 una deposizione di Zinco

confrontabile con il valore soglia di 400microgrammi/mq.day.

Tabella 14.2.1 – Valori soglia adottati in alcuni paesi (G.Settimo, G. Viviano – Annuali ISS 2015. Vol. 51 N° 4:298-304).

Current limit values (annual average) in some European countries for dust deposition (PM = mg m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>), PCDD/F + DL-PCB (pg WHO-TE m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>) and metals (µg m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>) in atmospheric depositions

Country (reference)	PM	PCDD/F+ DL-PCB	As	Cd	Hg	Ni	Pb	Tl	Zn
Austria [32]	210	-	-	2	-	-	100	-	-
Belgium [13, 33]	350 650*	8.2 21*	-	2	-	-	250	-	-
Croatia [34]	350	-	4	2	1	15	100	2	-
Germany [14, 17, 18]	350	4	4	2	1	15	100	2	-
United Kingdom [35]	200	-	-	-	-	-	-	-	-
Switzerland [36]	200	-	-	2	-	-	100	2	400
Slovenia [37]	200	-	-	2	-	-	100	-	400

Oltre a ciò, allo scopo di quantificare gli impatti dei differenti metalli nelle deposizioni rispetto al fondo locale, sono state definite per ciascun metallo soglie di riferimento statistiche partendo dai dati ottenuti per i punti di misura di fondo. Il metodo statistico prescelto è stato quello di impostare i livelli di guardia pari al 95° e 99° percentile della popolazione statistica di riferimento, calcolando rispettivamente i valori UTL-95 UTL-99 (Upper Tolerance Level - Estremo superiore di tolleranza con i rispettivi fattori di copertura). Nel caso specifico i valori delle soglie sono stati calcolati utilizzando i dati dei monitoraggi relativi ai punti 2 e 3 che risultavano compatibili in media/mediana (test di Wilcoxon-Mann-

Whitney, ipotesi nulla H0: equal mean/median, valori di p-value compresi tra 0,26 e 0,99) e sono stati quindi trattati come provenienti da un'unica popolazione di dati di fondo area non esposti alle deposizioni provenienti dalla fonderia. I risultati delle elaborazioni sono riassunti, suddivisi per metallo, nella Tabella 14.2.2 ove viene altresì indicata la distribuzione statistica di riferimento che si osserva dai dati sperimentali.

Tabella 14.2.2 – Soglie UTL 95% e distribuzione statistica di riferimento calcolati utilizzando i dati relativi ai punti non esposti alle deposizioni provenienti dalla fonderia.

METALLO	SOGLIA UTL 95% (µg/mq*giorno)	Distribuzione statistica di riferimento
ZINCO	254	gamma
FERRO	908	normale
CROMO	4.7	normale
NICHEL	4.8	gamma
RAME	29.9	Nessuna distribuzione
PIOMBO	22.7	gamma

Le concentrazioni di deposizione totale di metalli relative al punto 1 sono state quindi comparate con le corrispondenti soglie statistiche. Il numero di superamenti percentuale delle rispettive soglie viene riassunto nella Tabella 14.2.3.

Tabella 14.2.3 – Superamenti percentuali delle soglie UTL 95% relative al punto esposto alle ricadute della fonderia.

<b>TABELLA RIASSUNTIVA SUPERAMENTI</b>	
METALLO	% DATI SOPRA LA SOGLIA UTL 95% (MAX AMMESSO 5%)
FERRO	<b>82</b>
RAME	<b>73</b>
CROMO	<b>63</b>
ZINCO	<b>36</b>
NICHEL	<b>36</b>
PIOMBO	<b>18</b>

Considerando che si assume una probabilità massima di superamento delle suddette soglie statistiche pari al 5%, ne consegue che i valori riscontrati nel punto 1 sono da considerarsi non compatibili con le misure di fondo area (punti di misura 2 e 3) per tutti i metalli considerati e dunque siamo in presenza di un impatto sull'area circostante la fonderia.

#### *Caratterizzazione della sorgente*

La movimentazione all'aperto del materiale di scarto delle lavorazioni presentava oggettive criticità essendo le

aree di stoccaggio direttamente confinanti con il centro abitato, per cui la movimentazione dei materiali procurava la dispersione di considerevoli quantità di polveri metalliche verso le aree abitate. Allo scopo di individuare da quale sorgente specifica provenissero le polveri diffuse, sono state eseguite analisi in campo per stimare l'abbondanza percentuale dei metalli su campioni prelevati in abitazioni presso le aree limitrofe all'azienda e direttamente sui cumuli di materiali polverulenti (terre e le scorie di fonderia) stoccati sui piazzali esterni della ditta (Figura 14.2.6).



Figura 14.2.6. Trincee di stoccaggio e campionamento presso i cumuli di scorie.

Le indagini sperimentali sono state effettuate mediante lo strumento portatile Olympus DELTA XRF che si basa sulla spettrometria a raggi X. Il materiale colpito dal fascio primario di raggi x emette un segnale secondario la cui lunghezza d'onda, inversamente proporzionale all'energia del fotone emesso, dipende dai livelli energetici

del materiale specifico. I campioni prelevati sono stati opportunamente preparati in laboratorio mediante macinatura e incapsulamento in appositi contenitori di dimensioni standard per la lettura (Figura 14.2. 7).

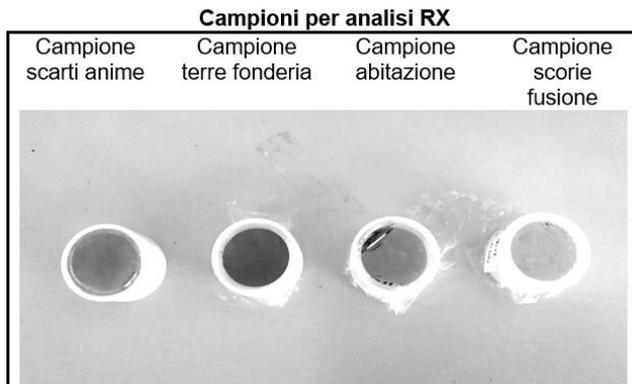


Figura 14.2.7. Campioni di terre preparati per analisi con strumento RX portatile.

Si è potuto così ricostruire uno spettrogramma dei metalli presenti nei vari campioni e stimarne l'abbondanza. I campioni hanno evidenziato tutti una composizione percentuale di metalli simile, con abbondanza nettamente preponderante di Ferro-Fe (40-50%) seguito

da Calcio-Ca (attorno 30%), Zolfo-S (circa 10%), Potassio-K (6-15%) e in misura minore Bario, Stronzio, Manganese, Cromo, Titanio. Il confronto tra la distribuzione percentuale dei metalli determinati nei vari campioni ha permesso di riconoscere, attraverso la

tecnica delle “finger prints”, la provenienza delle emissioni diffuse evidenziando la compatibilità tra la composizione dei materiali stoccati presso i piazzali della

ditta e le polveri prelevate presso le abitazioni (Figura 14.2.8).

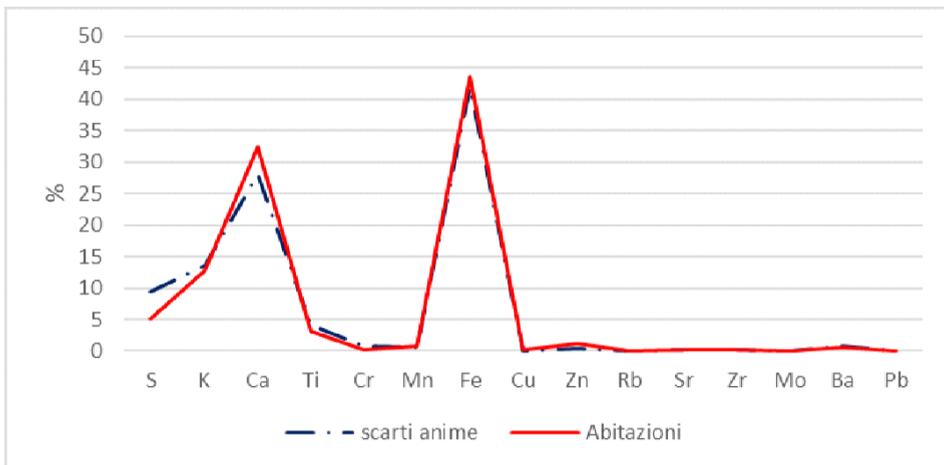


Figura 14.2.8. Risultati a confronto tra l'abbondanza percentuale di metalli nelle terre di fonderia e le polveri campionate presso abitazioni (“finger prints”).

Il calcolo delle correlazioni ha confermato l'esistenza della stretta relazione tra il profilo delle deposizioni relative ai materiali stoccati presso il piazzale aziendale e le deposizioni campionate presso le abitazioni

( $R^2 > 0,95$ ). I risultati ottenuti dalle analisi sul campo sono stati confrontati con quelli acquisiti mediante metodiche ufficiali (Figura 14.2.9-10).

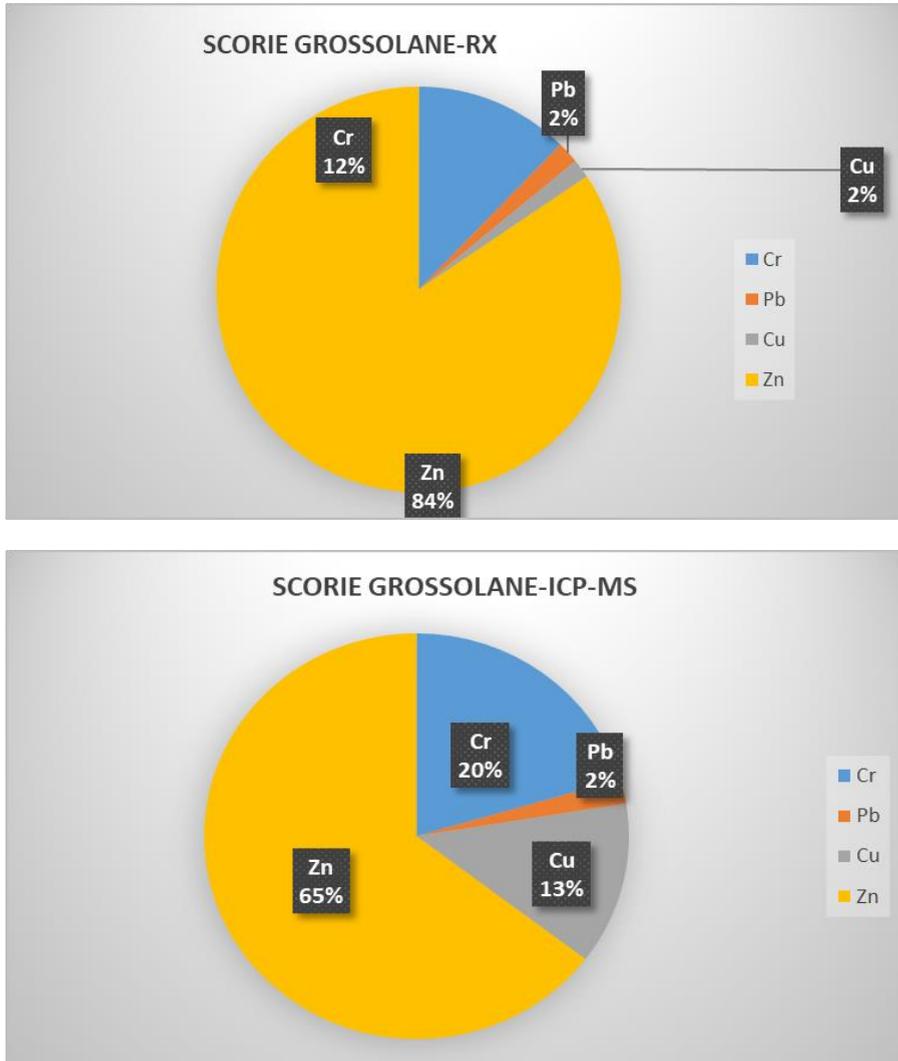


Figura 14.2.9-10. Confronto risultati metodica sperimentale (strumento RX portatile) e metodica ufficiale (mineralizzazione + ICP-MS).

### Azioni di contenimento delle emissioni di polveri e metalli

Alla luce dei risultati ottenuti la ditta ha predisposto un piano di miglioramento per il contenimento delle emissioni diffuse, proponendo una serie di interventi

strutturali relativi allo stoccaggio ed alla movimentazione dei materiali depositati presso il piazzale esterno. Questo prevede, in particolare, la realizzazione di sili stagni, la movimentazione automatica delle sabbie, il miglioramento del sistema di umidificazione automatica

tramite coclea prima del caricamento dei mezzi e l'isolamento del punto di carico.

## Conclusioni

L'uso di tecniche integrate di indagine descritto in questo studio ha permesso di quantificare l'impatto sulla componente atmosfera di una fonderia di ghisa insediata in un piccolo comune collinare. Il monitoraggio secondo le modalità previste dal D.Lgs. 155/2010 non ha evidenziato alterazioni nei livelli di polveri fini PM<sub>10</sub> né nella loro composizione chimica. La ricerca di composti volatili con campionatori di tipo passivo ha evidenziato un innalzamento dei livelli di fondo per benzene e formaldeide rispetto ai dati regionali. Considerate le caratteristiche dell'attività, si sono ricercate anche le polveri metalliche grossolane mediante la misura dei tassi di deposizione, i cui contributi sono risultati significativi in alcune aree abitate adiacenti al polo industriale. In assenza di valori limite per le deposizioni fissati dalla normativa italiana, i livelli misurati sono stati

confrontati con specifiche soglie di riferimento calcolate con metodi statistici a partire dai livelli misurati di fondo area. L'utilizzo inoltre di uno spettrometro portatile a raggi X ha permesso di stimare l'abbondanza percentuale dei metalli su campioni prelevati sia in abitazioni sia sui cumuli di materiali polverulenti stoccati sui piazzali esterni dell'azienda. Il confronto tra la distribuzione percentuale dei metalli determinati nei vari campioni ha permesso di riconoscere, attraverso la tecnica delle "finger prints", la provenienza delle emissioni diffuse evidenziando la compatibilità tra la composizione dei materiali stoccati e le polveri prelevate presso le abitazioni.

Avendo dimostrato impatti significativi dell'impianto produttivo sulle deposizioni e sulla qualità dell'aria locale, è stato chiesto all'azienda di predisporre un piano di miglioramento per il contenimento delle emissioni diffuse nell'ambito della autorizzazione integrata ambientale.

ARIA Impact - vers 1.7 <http://www.aria-net.it/>

Erbetta L., Scagliotti E., Pitasi F., Otta C., Ameglio V., Mensi G., "Monitoraggio di metalli in aria ambiente e loro deposizione al suolo presso un'area soggetta a bonifica", VI Convegno Nazionale Agenti Fisici, Alessandria 6-7-8 giugno 2016

Galletti M., Pileri A., Petrini A., Sebastiani F., Austeri C., Pompei M., "Valutazione dell'impatto sulla qualità dell'aria provocato da uno stabilimento di produzione dell'acciaio nella città di Terni", PM2018-Matera, 23-25 maggio 2018

Mallocci E., Tava M., "Monitoraggio delle deposizioni atmosferiche per la valutazione dell'impatto di una acciaieria", PM2018-Matera, 23-25 maggio 2018

Panont D., Tarricone C., "Impact of channeled and diffuse emissions from a steel mill in the alpine context", Italian Journal of Occupational and Environmental Hygiene, 2013,4(3) 113-121

O. Gilbert Richard, "Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring", Van Nostrand Reinhold, New York, 1987

Otta C., Ameglio V., Erbetta L., Littera C., Mensi G., Scagliotti E., Bianchi D., Buratto S., "Valutazione degli impatti sull'atmosfera di una fonderia mediante utilizzo di metodiche integrate di campionamento, analisi in campo e definizione di valori soglia mediante tecniche statistiche", VII Convegno Nazionale Agenti Fisici, Stresa 5-6-7 giugno 2019

Singh A., Singh A.K., Flatman G., "Estimation of Background Levels of Contaminants", Math Geology, 1994, Vol.26, N°3, 361-388

UNI EN 15841:2010 "Qualità dell'aria ambiente-Metodo normalizzato per la determinazione di Arsenico, Cadmio, Piombo e Nichel nelle deposizioni atmosferiche".

U.S. environmental Protection Agency (EPA), ProUCL Version 5.00.04 Technical Guide (Draft), Publication EPA/600/R-07/041, September 2013

### 14.3 MONITORAGGIO IN CONTINUO DI ACIDO CLORIDRICO E FLUORIDRICO IN ARIA AMBIENTE PER LA VALUTAZIONE DELL'IMPATTO DI UN POLO CHIMICO E LA GESTIONE DI EVENTI INCIDENTALI

Littera C., Otta C., Ameglio V., Erbetta L., Mensi G., Scagliotti E., Bianchi D.

ARPA PIEMONTE

#### RIASSUNTO

L'area di Spinetta Marengo (frazione di Alessandria) vede la presenza di un importante polo chimico a ridosso di un centro abitato da circa 7000 persone. L'attività industriale, classificata a rischio di incidente rilevante ai sensi del D.Lgs.105/2015 ("direttiva SEVESO III"), si caratterizza per emissioni in aria ambiente di inquinanti gassosi peculiari non normati, per lo più composti organici e inorganici a base di cloro e di fluoro ad elevato grado di tossicità per l'ambiente e la salute. Come azione di tutela, l'autorizzazione integrata ambientale provinciale ha previsto la misura in continuo dei composti maggiormente significativi immessi in aria ambiente e riconducibili ai processi industriali. Presso l'area di maggior ricaduta degli inquinanti individuata da uno studio modellistico meteo-dispersivo, è stata collocata la stazione di monitoraggio della qualità dell'aria gestita da Arpa Piemonte dotata, prima in Italia, di un analizzatore in continuo di acido cloridrico e fluoridrico di tipo innovativo. Il principio di misura dell'analizzatore di HCl/HF si basa sulla spettrometria di assorbimento laser ad alta risoluzione per la misura in tempo reale di gas atmosferici. L'assenza di specifici limiti di legge per i composti di interesse, di norma non presenti in aria ambiente, si associa ad una potenziale pericolosità e tossicità degli stessi. È stato dunque necessario definire opportuni valori soglia abbinati ad un protocollo operativo di intervento che permettessero di allertare tempestivamente l'ente di controllo circa possibili fughe di sostanze dallo stabilimento. L'uso infine di strumenti statistici abbinati all'anemologia, quali i Polar-Plot, ha permesso di individuare, gestire e risolvere eventi anomali e i piccoli episodi incidentali che diversamente non sarebbero stati gestiti dall'ente di controllo nell'ambito del piano di emergenza esterno dell'azienda. Nel corso del 2020 la stazione sarà implementata con

strumentazione tecnologicamente avanzata in grado di monitorare tutti i composti organici a base di cloro e di fluoro.

**Parole chiave:** Polo chimico, Acido cloridrico, Acido fluoridrico, valori soglia, inquinanti non normati

#### ABSTRACT

The Spinetta Marengo area (Alessandria suburb) hosts a large chemical plant near a built-up area where around 7000 persons live. The industrial plant, classified as high risk industry pursuant to Legislative Decree 105/2015, has specific emissions of non-regulated gaseous pollutants, mostly chlorinated and fluorinated organic and inorganic compounds with an elevated degree of toxicity for environment and health. It was therefore necessary to install real-time measurement systems in order to continuously monitoring dangerous pollutants coming from the industrial site. Based on the results of model simulations of pollutants fallout, a monitoring station was installed, first time in Italy, with an innovative continuous analyzer of hydrochloric and hydrofluoric acid. The measurement technique is based on high resolution laser absorption spectrometry for real-time measurement of atmospheric gases. The absence of specific limits for these compounds, normally not present in ambient air, is associated with a high potential hazard and toxicity. It was therefore necessary to use statistical methodologies to calculate appropriate thresholds values in order to quickly alert Arpa control system in case of leaks of pollutants from the plant. The use of statistical tools combined with anemology, such as Polar-Plots, has made it possible to identify, manage and resolve anomalous cases and small incidents that otherwise would not have been revealed. In 2020 the station will be implemented with technologically advanced

instrumentation for monitoring all chlorine and fluorine organic compounds.

### Introduzione

L'area oggetto di studio vede la presenza di inquinanti atmosferici peculiari emessi da un importante polo chimico situato a ridosso di un centro abitato, con emissioni in aria ambiente di inquinanti gassosi non normati, alcuni dei quali ad elevato grado di tossicità per l'ambiente e la salute. Si è reso quindi necessario

installare in loco una stazione di monitoraggio della qualità dell'aria gestita da ARPA Piemonte dotata di un innovativo strumento per la misura di acido fluoridrico e acido cloridrico. La sua collocazione, circa 500m in direzione nord-est rispetto al polo chimico, è stata individuata nell'area di massima ricaduta degli inquinanti sulla base delle risultanze di uno studio modellistico meteo-dispersivo delle emissioni dello stabilimento (Figura 14.3.1).



Figura 14.3.1. Ubicazione stazione di misura della qualità dell'aria.

### Funzionamento e messa a punto dell'analizzatore

La tecnica di misura dell'analizzatore di acidi si basa sulla spettrofotometria di assorbimento laser (OA-ICOS).

Cuore dello strumento è una cavità dotata di specchi in cui la sorgente laser a infrarossi emette un segnale di assorbimento specifico per le specie di inquinanti gassosi di interesse (Figura 14.3.2).

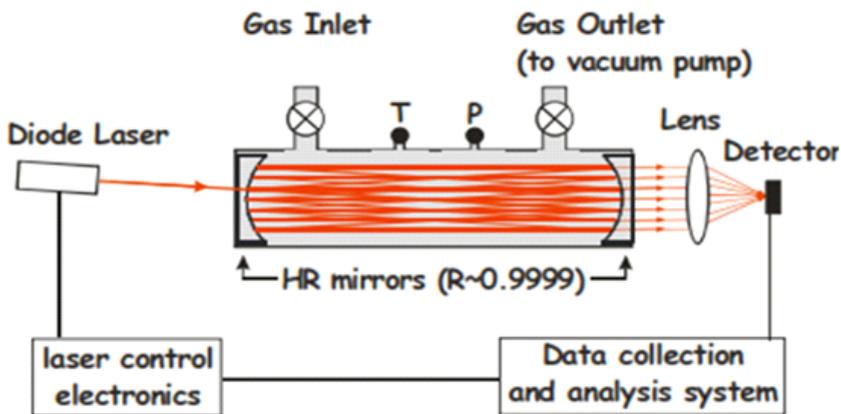


Figura 14.3.2. Schema a blocchi dell'analizzatore.

La variazione di intensità del raggio laser è correlabile e proporzionale alla concentrazione di HCl e HF presenti nella cavità di misura (legge di Beer-Lambert). Il cammino ottico percorso dalla radiazione raggiunge i 25 Km grazie alla presenza nella cella di misura di due specchi ad elevatissima riflettività (>0,9999): grazie a

questo lo strumento è in grado di raggiungere elevata sensibilità e precisione. L'analisi degli spettri di assorbimento, inoltre, permette di controllare la presenza di interferenti (Figura 14.3.3).

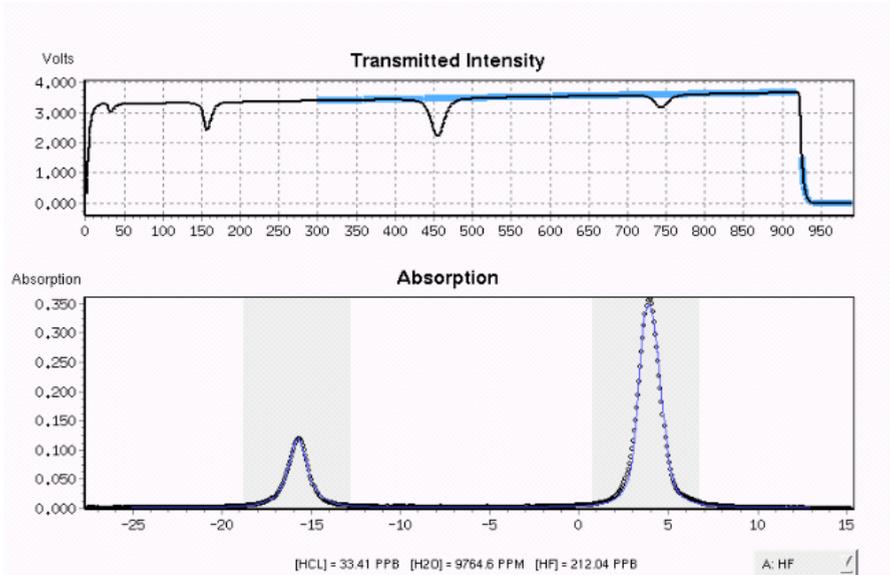


Figura 14.3.3. Spettro di assorbimento dell'HF.

### Collaudo, Calcolo del limite di quantificazione, verifiche annuali di accuratezza e valutazione dell'incertezza di misura.

I parametri tecnici considerati nelle prove di collaudo strumentale hanno riguardato la verifica della lettura di zero, la verifica della linearità della risposta strumentale su tre punti e la verifica dell'esattezza-recupero. La verifica della linearità della retta di taratura e dell'esattezza/recupero sono state eseguite tramite l'utilizzo di tubi a permeazione certificati. I tubi a permeazione sono piccoli cilindri che contengono l'inquinante da misurare allo stato solido, liquido o gas liquefabile, dotati di un'apertura chiusa da una membrana in teflon permeabile ai gas. Il gas permea lentamente attraverso la membrana con una portata dell'ordine di nanogrammi al minuto. Il tubo a permeazione viene perciò immerso in una corrente di gas di trascinamento che si arricchisce della sostanza

permeata. La velocità di permeazione (quantità di sostanza permeata nell'unità di tempo) dell'inquinante attraverso le pareti del tubo, dipende dalla natura dell'inquinante, dalla natura del materiale costituente il tubo, dalla superficie della parete permeabile, dalla temperatura e dalla differenza della pressione parziale della sostanza permeata all'interno e all'esterno del tubo. I tubi a permeazione vengono inseriti in una camera a temperatura controllata di 44,9-45°C in cui la regolazione del flusso d'aria, attraverso un mass-flow controller, modifica la portata del gas di diluizione che lambisce il tubo a permeazione variando la concentrazione standard di riferimento per l'inquinante. Tramite la valutazione dei risultati ottenuti nelle prove di esattezza/recupero è stato possibile definire, come criterio di accettabilità per i recuperi, uno scostamento massimo del  $\pm 25\%$  per HCL e del  $\pm 30\%$  per il parametro HF. Le prove di esattezza/recupero vengono eseguite annualmente (Tabella 14.3.1).

Tabella 14.3.1 – Risultati prove esattezza/recupero

Concentrazione teorica HCl ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	HCl LGR ARPA ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	LGR ARPA Recupero %
14.09	12.27	<b>87</b>
14.09	12.40	<b>88</b>
14.09	12.22	<b>87</b>
14.09	12.31	<b>87</b>
7.83	6.63	<b>85</b>
7.83	6.41	<b>82</b>
7.83	6.55	<b>84</b>
7.83	6.42	<b>82</b>
5.88	4.45	<b>76</b>
5.88	4.35	<b>75</b>
5.88	4.34	<b>75</b>
5.88	4.45	<b>76</b>
Concentrazione teorica HF ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	HF LGR ARPA ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	LGR ARPA Recupero %
13.66	13.67	<b>100</b>
13.66	13.69	<b>100</b>
13.66	13.65	<b>100</b>
13.66	13.58	<b>99</b>
7.59	8.14	<b>107</b>
7.59	8.12	<b>107</b>
7.59	8.10	<b>107</b>
7.59	8.10	<b>107</b>
5.69	6.27	<b>110</b>
5.69	6.29	<b>110</b>
5.69	6.28	<b>110</b>
5.69	6.29	<b>110</b>

Per il calcolo del limite di quantificazione (D.L.) inteso come la concentrazione minima rilevabile attraverso uno specifico processo di misura è stata applicata, in analogia con quanto previsto dalle norme tecniche per gli analizzatori in continuo di inquinanti gassosi, la formula di calcolo:

$$\text{D.L.} = 3,3 * (\text{Sz}/\text{B})$$

dove

Sz= deviazione standard della risposta alla concentrazione di zero

B=pendenza della retta delle prove di linearità ed esattezza-recupero

I valori di D.L. ottenuti sono risultati confrontabili con quelli certificati dalla casa madre; si è quindi deciso di adottare questi ultimi (Tabella 14.3.2).

Tabella 14.3.2 – Calcolo del limite di quantificazione

	<i>HCl</i>	<i>HF</i>
Sz deviazione stand allo zero	0.0899	0.1967
Pendenza retta	0.9796	1.0458
D.L. calcolato in ppb	0.30	0.62
D.L. calcolato in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.4	0.5
D.L. certificato LGR in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.4	0.7

Una prima stima dell'incertezza associata alle misure di HCl e HF è stata effettuata utilizzando le misure in condizioni controllate con i tubi a permeazione ed è risultata pari a  $U(\text{HCl}) = 30\%$ ,  $U(\text{HF}) = 42\%$ . Tale incertezza è riferita al range di concentrazioni indagato con le prove con tubi a permeazione (5 - 15  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

### La validazione dei dati acquisiti

I parametri HCl (ppm /  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) e HF (ppm /  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ), acquisiti ogni minuto dallo strumento, vengono aggregati ogni 10 e 60 minuti, registrati dal pc di stazione, trasmessi al centro operativo regionale e archiviati. I dati acquisiti dallo strumento sono validati giornalmente dai tecnici abilitati ARPA. La validazione è eseguita sulle concentrazioni misurate nel giorno precedente a quello di validazione, i criteri di validazione utilizzati sono analoghi a quelli degli altri inquinanti normati determinati nelle stazioni della rete regionale di qualità dell'aria gestita da Arpa Piemonte.

### Definizione del valore soglia di intervento e procedura di intervento

L'assenza di specifici limiti di legge per composti peculiari, di norma non presenti in aria ambiente, si associa ad una potenziale pericolosità e tossicità degli stessi. È stato dunque necessario definire opportuni valori soglia abbinati ad un protocollo operativo di intervento che permettessero di allertare tempestivamente l'ente di controllo circa possibili fughe di sostanze dallo stabilimento e intraprendere azioni di verifica controllo in sito. Il valore soglia di intervento fissato è pari a 5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  per HCl e HF è stato determinato

sulla scorta dello storico dei dati acquisiti oltre che per confronto rispetto ai valori di riferimento indicati da US-EPA (EPA-IRIS) per l'esposizione cronica della popolazione pari a 20  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  per HCl e a 14  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  per HF. Attraverso un sistema di invio 24h/24 di messaggi di allerta, la stazione è in grado di avvisare i tecnici Arpa ogni volta che le concentrazioni di inquinanti superano i valori soglia. Secondo quanto definito nel protocollo operativo adottato da Arpa, a seguito di registrazione di dati superiori a 5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in successivi tre intervalli temporali di 10 minuti si attiva l'intervento in campo dei tecnici che prevede di effettuare ulteriori campioni di aria ambiente in postazioni esposte rispetto alla direzione del vento.

### Eventi anomali e loro gestione

L'allertamento tempestivo dei tecnici di qualità dell'aria per indagini e campionamenti in sito, ha inoltre permesso negli anni di individuare e monitorare eventi incidentali di piccola entità che possono accadere presso l'impianto chimico e che diversamente non sarebbero stati gestiti dall'ente di controllo nell'ambito. Dal 2016, anno di inizio del protocollo operativo, sono state registrate 23 anomalie per HF e 374 per HCl intese come superamenti della soglia di intervento fissata a cui hanno fatto seguito approfondimenti e prelievi puntuali di aeriformi volti a ricercare una più ampia gamma di composti provenienti dal polo chimico: acidi inorganici, composti volatili clorurati e fluorurati. Contestualmente agli interventi è stato chiesto alla ditta di fornire un report di descrizione di quanto accaduto internamente. Per ogni episodio incidentale è stata successivamente eseguita una post-elaborazione statistica delle concentrazioni degli

inquinanti in relazione alle condizioni anemologiche in modo da ricondurre in maniera precisa l'origine dei picchi di inquinamento alle specifiche sorgenti di provenienza. A tale scopo è stata utilizzata la funzione Polar-Plot fornita nel pacchetto Openair del software R Project, specifico per la trattazione dei dati di qualità dell'aria. Si tratta di un grafico in coordinate polari in cui ogni punto del piano è identificato da un angolo, che individua la direzione di provenienza del vento, da una distanza dal

centro, che indica la velocità del vento, e da un colore che rappresenta una funzione di probabilità (conditional probability function) che si verifichino valori di picco, superiori ad un dato percentile della concentrazione dell'inquinante in corrispondenza di determinati valori di direzione e velocità del vento (Figura 14.3.4).

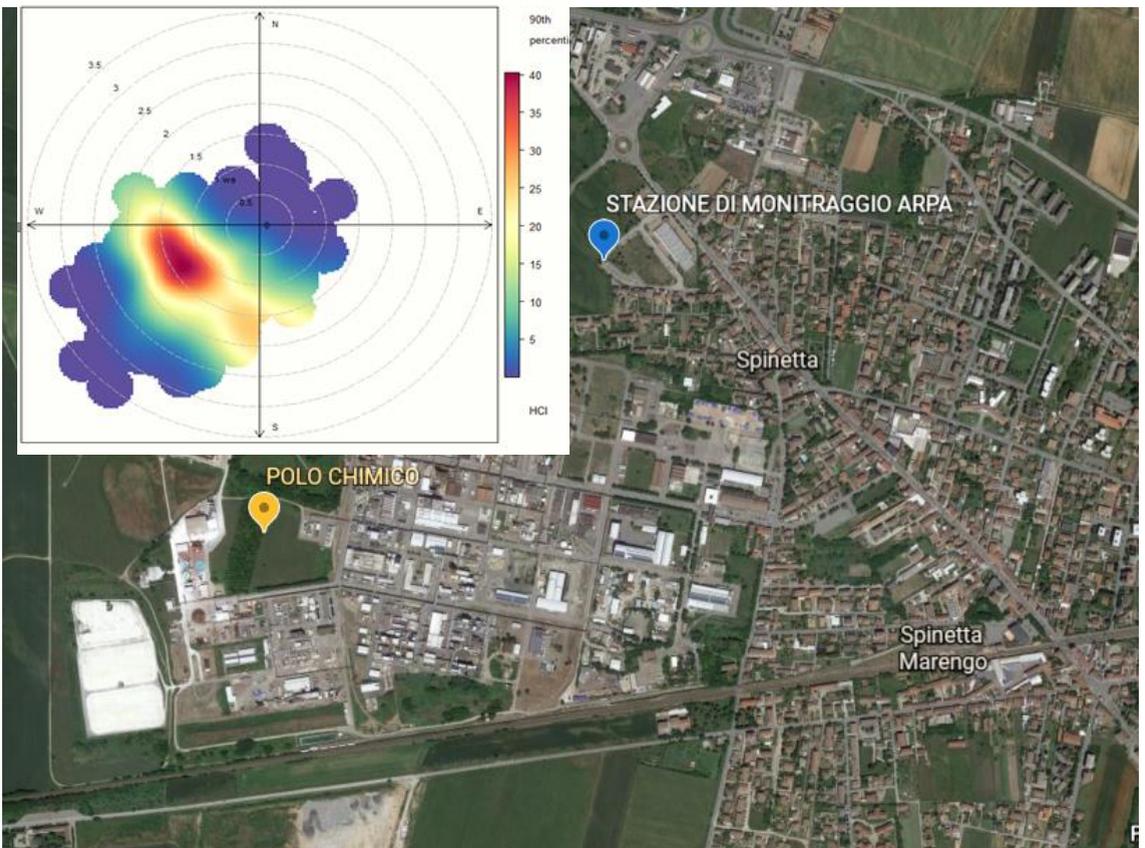


Figura 14.3.4. Grafico PolarPlot per HCl riferito ad un evento incidentale del novembre 2018.

Questa ulteriore post-elaborazione ha permesso di confermare e contestualizzare 16 episodi incidentali, non sempre confermati dalla azienda, occorsi tra il 2016 e il 2019. Le concentrazioni rilevate sono state confrontate con i valori di riferimento US-EPA AEGL per esposizione acuta di breve durata della popolazione e comunicate alle autorità competenti. In questo modo si è potuto attribuire un certo numero di eventi con certezza alle emissioni del polo chimico e contestualmente ascrivere questi eventi anche nel computo degli eventi incidentali non gravi, ma con rilascio di sostanze all'esterno dello stabilimento come previsto dal piano di emergenza esterna.

## Risultati e conclusioni

La misura in continuo ad elevata frequenza di HCl e HF ha permesso negli anni di ricostruirne nel dettaglio gli andamenti nel tempo e di valutare i livelli di esposizione a lungo termine per la popolazione. Considerando le concentrazioni di acidi misurate negli anni (Tabella 14.3.3), si può osservare come il 95° percentile della popolazione di dati risulti compreso tra 0,2 e 1,4 microgrammi/m<sup>3</sup>, 4-5 volte inferiore al valore soglia di 5 microgrammi/m<sup>3</sup> adottato e 10 volte inferiore ai valori soglia indicati da US-EPA per l'esposizione cronica della popolazione.

Tabella 14.3.3 – Sintesi Risultati per HF e HCl.

PARAMETRO	2016		2017		2018	
	HCl µg/mc	HF µg/mc	HCl µg/mc	HF µg/mc	HCl µg/mc	HF µg/mc
DL	0,4	0,7	0,4	0,7	0,4	0,7
MIN	0,2	0,4	0,2	0,4	0,2	0,4
<b>MEDIA</b>	<b>0,3</b>	<b>0,6</b>	<b>0,3</b>	<b>0,9</b>	<b>0,8</b>	<b>0,4</b>
<b>MEDIA STIMATA MODELLO</b>	<b>0,7</b>	<b>1,9</b>	<b>0,7</b>	<b>1,9</b>	<b>0,7</b>	<b>1,9</b>
MEDIANA	0,2	0,4	0,2	0,9	0,2	0,4
75° PERC	0,2	0,7	0,2	1,1	0,7	0,4
95° PERC	0,2	1,2	1,4	1,3	1,1	0,4
<b>MAX</b>	<b>9,3</b>	<b>15,2</b>	<b>2,7</b>	<b>1,6</b>	<b>70,5</b>	<b>1,5</b>
%DATI VALIDATI	78	78	31,7	31,8	74,1	74,1

Questi dati sono stati utilizzati per effettuare una valutazione di impatto sanitario del polo chimico e per indagini epidemiologiche condotte da Arpa sulla popolazione di Spinetta Marengo. La posizione strategica della stazione e le performance della strumentazione di misura installata per acidi alogenidrici rappresentano un punto di forza nella gestione da parte di Arpa di eventi incidentali anche di lieve entità.

L'adozione di un protocollo operativo di intervento e di tecniche statistiche di post-elaborazione hanno inoltre permesso di individuare, come previsto dal piano di emergenza esterna, gestire e risolvere 16 episodi incidentali non gravi ma con rilascio di sostanze all'esterno dello stabilimento che diversamente non sarebbero stati individuati. L'analisi statistica dei dati di HCl/HF registrati nei primi quattro anni di monitoraggio

conferma l'appropriatezza delle soglie d'intervento adottate e la loro efficacia nella gestione tempestiva degli eventi incidentali da parte di Arpa con importanti ricadute sulla tutela dell'ambiente e dei cittadini e sulla gestione del rischio legato alla convivenza tra impianti chimici e territorio a supporto delle amministrazioni locali. Sul sito di Arpa Piemonte è attualmente consultabile una pagina

web dedicata al sito di monitoraggio di Spinetta Marengo con tutti i dati raccolti. La stazione è attualmente in corso di ampliamento con l'installazione di un analizzatore dedicato alla rilevazione in continuo di tutti gli inquinanti organici a base di cloro e di fluoro specifici del polo chimico.

**Bibliografia**

UNI EN14626/2012 Qualità dell'aria ambiente - Metodo normalizzato per la misurazione della concentrazione di monossido di carbonio mediante spettroscopia a raggi infrarossi non dispersiva

UNI EN14211/2012 Qualità dell'aria ambiente - Metodo normalizzato per la misurazione della concentrazione di diossido di azoto e monossido di azoto mediante chemiluminescenza

UNI EN14625/2012 Qualità dell'aria ambiente - Metodo normalizzato per la misurazione della concentrazione di ozono mediante fotometria ultravioletta

UNI EN14212/2012 Qualità dell'aria ambiente - Metodo normalizzato per la misurazione della concentrazione di diossido di zolfo mediante fluorescenza ultravioletta

EPA-IRIS banca dati <https://www.epa.gov/iris/basic-information-about-integrated-risk-information-system>

R project – pacchetto OPENAIR <https://cran.r-project.org/web/packages/openair/index.html>

Soglie EPA-AEGL1 <https://www.epa.gov/aegl>.

## 14.4 LA COMPOSIZIONE DEL PM<sub>2,5</sub> NELLA QUALITÀ DELL'ARIA DELL'EMILIA-ROMAGNA

Bacco D., Scotto F., Trentini A., Lasagni S., Maccone C., Ferrari S., Poluzzi V.

ARPAE

### RIASSUNTO

Il progetto Supersito, gestito e finanziato da Arpae e Regione Emilia-Romagna (DGR 4258/10 e DGR 1971/13), è durato dal 2010 al 2016. Il progetto ha ottenuto diversi risultati, fra i quali vi è anche la realizzazione di una rete di monitoraggio, attualmente attiva, che comprende quattro siti: tre background urbani (Bologna, Parma e Rimini) e un background rurale (San Pietro Capofiume). In queste località vengono misurati dei parametri non abitualmente determinati dalla rete regionale di qualità dell'aria di Arpae Emilia-Romagna. In particolare, da più di 8 anni, vengono quantificati giornalmente (nel sito di Bologna) o bisettimanalmente (negli altri siti) i principali componenti del PM<sub>2,5</sub>. Le analisi riguardano i principali macro-componenti della massa del particolato: gli ioni (i più rilevanti in termini di massa sono nitrato, solfato, ammonio) e la frazione carboniosa formata da Carbonio Organico e Carbonio Elementare (OC ed EC). Oltre a questi, sono analizzati anche gli elementi in traccia, come metalli o levoglucosano: tali sostanze possono essere utili per identificare e, a volte, quantificare le sorgenti che hanno contribuito alla formazione dell'aerosol. Il levoglucosano, ad esempio, è ampiamente riconosciuto per essere un marker specifico della combustione della biomassa e quindi può fornire una informazione circa l'andamento di questa sorgente.

L'analisi delle serie storiche non evidenzia un trend significativo per la maggior parte delle specie principali rispetto all'intera massa del PM<sub>2,5</sub>, ma variazioni casuali. Ciò porta ad ipotizzare che nelle aree di studio le condizioni meteorologiche giochino un ruolo determinante nei cambiamenti, sia sulla quantità di particolato che sulla sua composizione. Le condizioni meteorologiche d'altronde possono essere estremamente influenti sia nel processo di diluizione degli inquinanti primari, sia nei meccanismi di formazione

del particolato secondario che si genera direttamente in atmosfera partendo da sostanze pre-esistenti. Ad esempio, un'atmosfera stagnante ostacola la dispersione degli inquinanti e temperatura, umidità e irraggiamento sono la forza trainante delle reazioni che trasformano le specie emesse. La percentuale media annua di SIA (Secondary Inorganic Aerosol), che è l'insieme dei principali ioni inorganici di origine secondaria presenti sul particolato, negli anni monitorati non è mai scesa sotto al 38% della massa del PM<sub>2,5</sub>, con picchi del 48% nei tre siti urbani. Per conoscere la percentuale dell'aerosol di origine secondaria (SA, Secondary Aerosol), alla percentuale di SIA bisogna aggiungere quella di origine organica (SOA, Secondary Organic Aerosol), di cui però è complicato fornire una quantificazione sicura.

Informazioni utili sull'andamento dell'aerosol organico di origine primaria (POA, Primary Organic Aerosol) e secondaria (SOA) si ottengono dal calcolo del rapporto tra OC ed EC, in quanto quest'ultimo ha sicuramente origine primaria, mentre l'OC ha una componente sia secondaria sia primaria. Questo rapporto mostra una discreta variabilità nel tempo (con valori medi da 3.2 a 5.6), ma non un trend statisticamente significativo con un andamento costante: a seconda del periodo può avere una pendenza positiva o negativa. Ciò rafforza l'ipotesi che i meccanismi meteorologici siano i principali fattori della variabilità dell'aerosol.

I dati discussi sono riportati in report semestrali pubblicati sul sito di Arpae ([www.arpae.it](http://www.arpae.it)).

**Parole chiave:** PM<sub>2,5</sub>, composizione chimica, Emilia-Romagna, trend pluriannuali.

### ABSTRACT

The Supersito project, managed and financed by Arpae and the Emilia-Romagna Region (DGR 4258/10 and DGR 1971/13), took place from 2010 to 2016. The project has achieved several results, among which there is also the creation of a monitoring network, currently active, consisting of four sites: three urban background sites (Bologna, Parma and Rimini) and a rural background site (San Pietro Capofiume). In these locations, the parameters not usually determined by the regional air quality network of Arpae Emilia-Romagna are measured. In particular, the main components of PM<sub>2.5</sub> have been quantified daily (on the Bologna site) or biweekly (on the other sites), for more than 8 years. The analyses concern the main macro-components of the particulate mass: the ions (the most relevant in terms of mass are nitrate, sulphate, ammonium) and the carbonaceous fraction OC and EC (Organic Carbon and Elemental Carbon). In addition to these, trace elements such as metals or levoglucosane are also analyzed: these substances can be useful for identifying and, sometimes, quantifying the sources that contributed to the formation of the aerosol. Levoglucosane, for example, is widely recognized to be a specific marker of biomass combustion and therefore it can provide information about the seasonal trend of this source.

The analysis of the time series does not show a significant trend for most of the main species compared to the entire mass of PM<sub>2.5</sub>, but a random variation: this leads to the hypothesis that in the regions of the study the weather conditions play a decisive role in the changes, both on the quantity of particulate and on its composition. The weather conditions on the other hand can be extremely influential in the mechanisms of formation of the secondary particulate which is generated directly in the atmosphere starting from pre-existing substances. For example, a stagnant atmosphere disadvantages the dispersion of pollutants and temperature, humidity and radiation are the driving forces of the reactions that transform the species emitted. The average annual percentage of SIA (Secondary Inorganic Aerosol), which is the set of the main ions of secondary origin present on the particulate matter, in the monitored years has never fallen below 38% of the mass of PM<sub>2.5</sub>,

with peaks of 48% in the three urban sites. In order to know the percentage of the secondary aerosol (SA), we must add to the SIA percentage the one of the organic origin (SOA, Secondary Organic Aerosol), of which, however, it is difficult to provide a safe quantification.

Useful information on the trend of primary (POA, Primary Organic Aerosol) and secondary (SOA) organic aerosol can be obtained from the calculation of the ratio between OC and EC, as the latter has certainly a primary origin, while the OC has both the primary and secondary component. This report shows a fair variability over time (with values from 3.2 to 5.6), but not a statistically significant constant trend: depending on the period, it can have a positive or negative slope. This reinforces the hypothesis that meteorological mechanisms are the main factors of aerosol variability.

The data discussed are reported in six-monthly reports published on the Arpae website ([www.arpae.it](http://www.arpae.it)).

**Keywords:** PM<sub>2.5</sub>, chemical composition, Emilia-Romagna region, multiyear trend.

## Introduzione

La Pianura Padana è una delle aree europee in cui i livelli di inquinamento arrivano ad assumere valori più alti e con episodi frequenti (Air Quality in Europe – 2019 Report; EEA Report, 10/2019; SOER 2020: State of Environment Report 2020). Per ridurre l'impatto delle attività antropiche sulla qualità dell'aria sono stati presi molti provvedimenti mediante leggi nazionali (attualmente in vigore: D.Lgs 155/2010) e piani regionali (come ad esempio il PAIR2020 dell'Emilia-Romagna – DAL 115/2017, il PRIA della Lombardia – DGR 593/2013, o il PRTRA del Veneto – DCR 90/2016) che hanno permesso di registrare dagli anni '90 una riduzione significativa di PM<sub>10</sub> e PM<sub>2.5</sub> (Bigi e Ghermandi, 2014; Bigi e Ghermandi, 2016). E' pertanto interessante verificare se tale tendenza si sia mantenuta anche in anni recenti. Le caratteristiche orografiche della Pianura Padana giocano un ruolo molto importante nei meccanismi di dispersione e rimescolamento delle specie inquinanti, e questo rende più facile la formazione

e l'accumulo della componente secondaria del particolato, quella cioè che si forma direttamente in atmosfera (Rinaldi et al., 2015; Sandrini et al., 2016; Gilardoni et al., 2016; Ricciardelli et al., 2017). Ne consegue che la concentrazione del PM sia fortemente legata alle condizioni meteorologiche che potrebbero avere un ruolo predominante rispetto agli interventi che possono essere intrapresi per una riduzione degli inquinanti alle sorgenti.

Diventa quindi particolarmente importante, date queste premesse, capire quali sorgenti impattino maggiormente sulla concentrazione dell'aerosol in atmosfera, in modo da poter ottimizzare gli interventi e poterli concentrare su fonti specifiche. L'analisi della composizione chimica del particolato e del trend delle principali specie che le compongono potrebbe permettere di ottenere informazioni in questo senso (Pietrogrande et al., 2016; Scotto et al., 2015), monitorando cioè i cambiamenti nel tempo delle caratteristiche chimiche dell'aerosol, che possono riflettere comportamenti non evidenti dalla sola osservazione nel tempo dell'andamento della massa.

## Metodi

### *Siti di monitoraggio*

Il progetto Supersito prevedeva il campionamento in diversi punti della regione Emilia-Romagna, rappresentativi delle diverse aree in cui può essere suddiviso il territorio studiato. I tre siti urbani sono posti uno nell'area metropolitana di Bologna, al centro della regione, uno a Parma nell'area più interna della pianura padana, e uno a Rimini, nell'area costiera. A questi si aggiunge un fondo rurale, San Pietro Capofiume (BO), facente parte della rete di qualità dell'aria di Arpae ([https://www.arpae.it/mappa\\_qa.asp?idlivello=1682&te ma=stazioni](https://www.arpae.it/mappa_qa.asp?idlivello=1682&te ma=stazioni), Long. 44,65, Lat. 11,62 WGS84) e già sede della base meteorologica "Giorgio Fea", sito scelto per la misura della qualità dell'aria in pianura padana da numerosi studi internazionali (Gilardoni et al., 2014; Gilardoni et al., 2016; Pietrogrande et al., 2014a; Pietrogrande et al., 2014b; Pietrogrande et al., 2015; Paglione et al., 2020).

I siti di Parma e Rimini, anch'essi facenti parte della rete regionale di qualità dell'aria, sono posti all'interno di parchi cittadini (PR: Parco Cittadella, Long. 44.79, Lat. 10.33 WGS84; RN: Parco XXV Aprile, Long. 44.06, Lat. 12.55 WGS84), mentre il sito di Bologna, collocato nell'area della ricerca del CNR (Long. 44.52, Lat. 11.34 WGS84), è stato appositamente selezionato come riferimento per un maggior approfondimento.

A partire dal 2011 in tutti i siti è stato campionato il PM<sub>2,5</sub>, la cui composizione chimica è stata caratterizzata con frequenza giornaliera a Bologna, e bisettimanale negli altri siti. In particolare sono state quantificate le concentrazioni dei principali ioni inorganici (Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, Cl<sup>-</sup>), della frazione carboniosa (Carbonio Organico, Carbonio Elementare e Carbonio Totale), dei metalli (Al, Sb, As, Ba, Cd, Cr, Fe, La, Pb, Mg, Mn, Ni, Sn, V, Zn) e del levoglucosano. La presenza di più strumenti in ogni sito da inizio 2013 ha permesso la misura contemporanea di queste specie.

### *Analisi chimiche*

I dettagli su campionamenti ed analisi sono stati descritti altrove (Ricciardelli et al., 2017, Ottone et al., 2020). Brevemente, il particolato è stato raccolto su filtri in fibra di quarzo di 47 mm di diametro (Whatman filters, GE Healthcare Life Sciences, USA) tramite analizzatori a basso volume (Swam, FAI Instruments, Roma, Italia) da 2,3 m<sup>3</sup>/h (EN 12341) che hanno anche permesso di ottenere i dati di massa del PM<sub>2,5</sub> tramite misure di beta attenuazione. I campioni raccolti ai fini delle analisi del carbonio organico ed elementare sono stati raccolti su filtri in quarzo da 47 mm (PALL Tissu Quartz) portati ad alta temperatura (800° C) per 5h prima dell'uso in modo da diminuire il valore dei bianchi, cioè la quantità di sostanza organica già presente sul supporto filtrante. Inoltre i campionatori (Skypost PM, TCR Tecora Instruments, Milano, Italia) hanno funzionato a 2,3 m<sup>3</sup>/h durante il periodo estivo (aprile – settembre) e a 1 m<sup>3</sup>/h durante il periodo freddo (ottobre - marzo) per evitare effetti di sovraccarico dei filtri che impedirebbero la corretta distinzione tra carbonio organico ed elementare (Costa et al., 2016).

I filtri raccolti sono stati analizzati, dopo estrazione in 10 ml di acqua MilliQ, con cromatografia ionica con un rivelatore di conducibilità (DIONEX, California, USA) per la determinazione dei principali ioni inorganici (UNI EN 16913\_2017). In particolare nitrato, solfato e cloruro con ICS 1000 con colonna anionica (IonPac™ AS9-HC), ammonio, sodio, potassio, magnesio e calcio con ICS 1100 con colonna cationica (IonPac™ CS12A). I metalli in tracce sono stati dosati tramite analisi ICP-MS (7700 ICP-MS Agilent Technologies Inc. USA), estendendo il metodo UNI EN ISO 14902:2005 creato per la misura di Cd, As, Ni e Pb nel particolato atmosferico. La quantificazione di OC, EC e TC è stata ottenuta tramite analisi termo-ottiche di trasmittanza (Sunset Laboratory Inc. Oregon, Oregon, USA) eseguite secondo il protocollo EUSAAR2 (Cavalli et al., 2010, Costa et al., 2016).

L'analisi del levoglucosano viene fatta estraendo i filtri in 10 ml di acqua MilliQ ed iniettando la soluzione, dopo essere stata sonicata per 15 minuti e filtrata (filtri in acetato di cellulosa con pori di 0,45 µm), in un cromatografo liquido (Agilent 1200 series HPLC) equipaggiato con una colonna amminica ZORBAX (lunghezza 250 mm, diametro interno 4,6 mm, impaccata con particelle di 5 µm di diametro) e usando come eluente una miscela 92,5% acetonitrile / 7,2% H<sub>2</sub>O / 0,3% acido acetico (flusso 0,8 ml/min). Come sistema di rilevazione è stato utilizzato uno Spettrometro di Massa (6410 Agilent Triple Quadrupole con ionizzazione elettrospray, ESI) che individua l'addotto tra l'anidrozucchero e l'acetato ([M+CH<sub>3</sub>COO]).

### *Analisi statistiche*

Tutte le analisi statistiche sono state eseguite con il software RStudio su dataset che vanno dal 14/11/2011 al 29/02/2020. Avendo a disposizione dati giornalieri per quanto riguarda il sito di Bologna e bisettimanali per quanto riguarda gli altri tre siti, si è deciso di calcolare la media mensile delle concentrazioni per tutti i siti in modo

da rendere possibile un'analisi che li mettesse a confronto. Per il sito di Bologna si è considerato un limite del 75% delle osservazioni giornaliere nel mese come valore minimo sotto al quale non viene calcolata la media mensile, per gli altri tre siti non è stato invece impostato alcun valore di soglia.

Per ogni componente e rapporto tra i componenti preso in esame è stata valutata la presenza di un trend tramite un test Mann-Kendall stagionale. Si tratta di un test non parametrico derivato dal test di Mann-Kendall molto utilizzato su dati ambientali per la rilevazione di trend monotoni. Avendo a che fare con concentrazioni di inquinanti fortemente influenzate dal variare della meteorologia stagionale si è deciso di usare la variante stagionale del test (Hirsch et al., 1982) che valuta il test Mann-Kendall singolarmente per ognuno dei gruppi di stagioni (in questo caso come "stagione" è stato considerato il mese) aggregando poi i risultati di questi test.

A fini illustrativi è stata anche aggiunta la decomposizione grafica della serie storica di ciascuna concentrazione presa in esame. Con il metodo STL – Seasonal and Trend decomposition using Loess – (Cleveland et al., 1990) la serie storica viene decomposta in componente stagionale, trend di lungo periodo e residuo. La decomposizione STL è basata sul metodo di regressione polinomiale locale LOESS (Locally Estimated Scatterplot Smoothing).

Nel caso il test Mann-Kendall stagionale abbia dato un valore significativo, portando a rifiutare l'ipotesi di assenza di un trend monotono, si è anche proceduto alla stima del coefficiente angolare Theil-Sen (Theil, 1950, Sen, 1968). Lo stimatore non parametrico Theil-Sen fornisce una stima lineare del trend basandosi sulla mediana dei coefficienti angolari delle rette passanti per ogni coppia di punti della serie storica. I dati sono stati prima destagionalizzati tramite metodologia STL. Il p-value e gli intervalli di confidenza associati al coefficiente Theil-Sen sono stati stimati con metodo bootstrap.

Per ogni concentrazione e rapporto di concentrazioni preso in esame la serie storica effettiva è stata divisa in

tre sotto-periodi di lunghezza equivalente nel tentativo di evidenziare la presenza di trend di durata più breve. La serie storica delle diverse concentrazioni ha una durata che non coincide necessariamente con quella delle altre concentrazioni, quindi anche i tre sotto-periodi possono variare da concentrazione a concentrazione. Per ogni sotto-periodo è stato calcolato il test Mann-Kendall stagionale ed eventualmente è stato stimato il coefficiente Theil-Sen. Va tuttavia sottolineato che questi test e queste stime sono stati eseguiti su periodi più brevi, quindi con meno dati. La componente stagionale avrà una stima diversa rispetto a quella della serie storica iniziale, poiché verrà stimata su periodi più brevi, rendendo quindi le valutazioni meno accurate e rendendo più difficile un confronto tra le rette di Theil-Sen stimate nei vari periodi.

## Risultati

Il particolato atmosferico ( $PM_{2.5}$ ) analizzato dal 2011 nei quattro siti della regione Emilia-Romagna ha mostrato, nell'insieme delle specie organiche (OC) e nei principali ioni inorganici (nitrato, solfato e ammonio), le principali componenti della massa, seguite dal carbonio elementare (EC), da alcuni altri importanti ioni inorganici (potassio, calcio, cloruro e sodio) e da alcuni metalli in tracce. La composizione chimica dell'aerosol ha andamenti con una chiara stagionalità, in quanto sono presenti specie prevalentemente invernali o estive ed altre specie con concentrazione quasi costante durante l'anno, il che porta ad andamenti ciclici per la massa totale sia del particolato che delle singole specie, in senso assoluto o percentuale (Figura 14.4.1).

La percentuale di  $PM_{2.5}$  formato dall'aerosol secondario inorganico (Secondary Inorganic Aerosol – SIA) resta predominante rispetto alle altre specie durante tutto l'anno grazie all'importanza che assumono nelle diverse stagioni due suoi componenti: in inverno il nitrato e in estate il solfato (Tabella 14.4.1).

La frazione carboniosa mantiene un apporto percentuale sostanzialmente costante durante l'anno (Tabella 1). In inverno la presenza di sorgenti stagionali, come il riscaldamento domestico con combustione di biomassa (Gilardoni et al., 2016; Paglione et al., 2020; Pietrogrande et al., 2015), porta un incremento sia della componente organica (OC) che di quella elementare (EC). Durante l'estate la mancanza di questa sorgente porta ad una riduzione in senso assoluto di queste componenti accompagnata però anche da una riduzione della massa totale del particolato. Inoltre il calo della frazione organica primaria in estate è compensato da un incremento delle specie organiche secondarie (Secondary Organic Aerosol – SOA) permesso dal maggiore irraggiamento estivo (Pietrogrande et al., 2014; Pietrogrande et al., 2016; Rinaldi et al., 2015). Queste osservazioni portano ad ipotizzare che il rapporto tra aerosol organico primario (Primary Organic Aerosol – POA) e secondario (SOA) vari durante l'anno: più a favore del POA in inverno e del SOA in estate. Dall'osservazione dei soli dati di concentrazione assoluta o relativa di OC ed EC non è, però, verificabile o quantificabile il rapporto POA:SOA. Servirebbero specifiche analisi di Source Apportionment (SA) che sono oggetto di altri studi (Scotto et al., 2015).

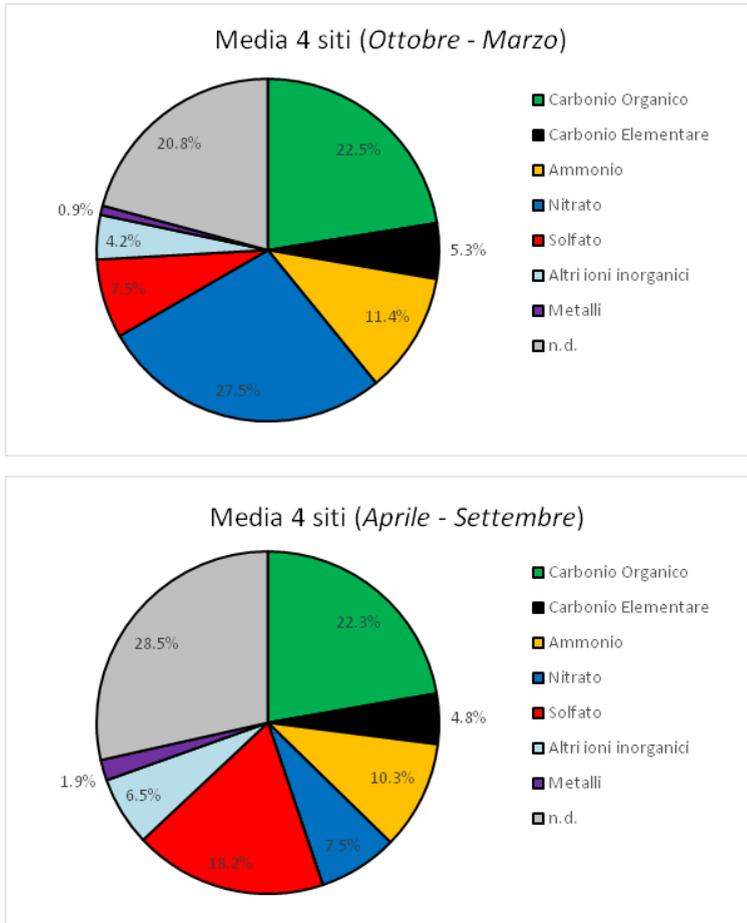


Figura 14.4.1. Composizione media del  $PM_{2.5}$  nei quattro siti considerati. Sopra: periodo freddo (Ottobre – Marzo). Sotto: periodo caldo (Aprile – Settembre).

Tabella 14.4.1 – Valori medi di PM<sub>2.5</sub> nei quattro siti e percentuale di massa attribuibile alle diverse specie chimiche nella media dei periodi freddi (Ottobre – Marzo) e dei periodi caldi (Aprile – Settembre). La percentuale non determinata (n.d.) dipende da tutto ciò che non è direttamente quantificato dalle analisi chimiche (come l'acqua o la materia organica).

Periodo di riferimento	BOLOGNA		PARMA		RIMINI		S. PIETRO C.	
	Ott-Mar	Apr-Set	Ott-Mar	Apr-Set	Ott-Mar	Apr-Set	Ott-Mar	Apr-Set
PM <sub>2.5</sub>	29 µg/m <sup>3</sup>	13 µg/m <sup>3</sup>	35 µg/m <sup>3</sup>	15 µg/m <sup>3</sup>	28 µg/m <sup>3</sup>	11 µg/m <sup>3</sup>	24 µg/m <sup>3</sup>	12 µg/m <sup>3</sup>
Carbonio Organico	21.5%	23.0%	17.1%	19.1%	25.6%	24.9%	25.6%	22.1%
Carbonio Elementare	5.9%	6.0%	4.3%	3.7%	5.8%	5.8%	5.0%	3.5%
Ammonio	10,8%	9,7%	11,1%	9,6%	10,6%	10,5%	13,2%	11,3%
Nitrato	25,3%	6,2%	28,1%	9,0%	24,4%	5,9%	32,2%	8,9%
Solfato	7,2%	17,3%	6,4%	15,4%	8,0%	20,9%	8,4%	19,2%
Altri ioni inorganici	3,0%	4,4%	3,1%	6,8%	5,6%	7,7%	5,1%	7,3%
Metalli	0,9%	1,8%	0,7%	1,6%	0,9%	2,2%	1,0%	2,1%
n.d.	25,2%	31,5%	29,2%	34,8%	19,3%	22,1%	9,5%	25,7%

L'analisi della serie storica del PM<sub>2.5</sub> (Tabella 14.4.2) ha mostrato un trend decrescente significativo in due dei tre siti urbani (non a Parma), ma non nel sito rurale. Questo è in buon accordo con quanto trovato da Bigi et al. (2016) che individuarono un trend negativo in diversi siti della regione Emilia-Romagna nella decade 2005-2015. Una sostanziale differenza con il lavoro citato è che gli autori trovarono un trend significativo per Parma ma non per Rimini, esattamente all'opposto con quanto qui riportato, ma questo può essere legato alla diversa serie storica considerata.

Ci si è chiesti se la diminuzione ha riguardato l'intero periodo o è imputabile ad un limitato lasso temporale. Si è pertanto deciso di suddividere il periodo iniziale in 3 sottoperiodi e di verificare la significatività dei trend in questi sottoinsiemi. Questo ha comportato l'analisi di serie storiche di lunghezza molto ridotta e ciò comporta un aumento importante delle incertezze legate alla stima dei trend. Di questo bisogna tener conto nelle analisi di risultati, che forniscono delle indicazioni che dovranno essere approfondite e verificate negli anni futuri.

Altre informazioni sul comportamento del PM<sub>2.5</sub> possono essere ottenute analizzando i componenti del particolato.

I principali ioni inorganici secondari (nitrato, solfato e ammonio) non mostrano trend significativi (Tabella 14.4.2).

La frazione organica (Tabella 14.4.2) mostra un comportamento del tutto simile a quello del Secondary Inorganic Aerosol (SIA): nessun calo significativo della concentrazione in nessun sito.

Il Carbonio Elementare, al contrario, ha mostrato un trend negativo in tutti i siti urbani, ma non nel sito rurale (Tabella 14.4.2). In altri termini a S. Pietro Capofiume, il sito meno interessato in modo diretto dalle principali sorgenti di particolato primario, né la massa del  $PM_{2,5}$  né le sue principali componenti inorganiche o carboniose mostrano una diminuzione significativa. Invece nei siti di fondo urbano il Carbonio Elementare, che è direttamente collegato alle sorgenti da combustione, mostra un calo delle concentrazioni significativamente diverso da zero. Questo si rileva anche a Parma seppure in questo sito altrettanto non fosse emerso dall'analisi dei valori della massa di  $PM_{2,5}$ . Analizzando l'andamento di questa variabile suddividendo l'intervallo temporale in tre parti, risulta interessante osservare che in tutti i siti, compreso il sito rurale, il primo periodo mostra un trend negativo

significativo, analogamente a quanto visto per il particolato, che mostra significatività solo nel primo periodo (ca. 2012-2014). A Bologna e Parma questo si verifica anche per il terzo intervallo temporale (ca. 2017-2019).

L'assenza di un trend significativo per il Carbonio Organico e la presenza di una tendenza alla diminuzione della concentrazione del Carbonio Elementare si riflette nell'andamento del rapporto OC/EC nei siti analizzati. Il trend risulta significativo e positivo in tutti i siti urbani. Dividendo la serie temporale in tre intervalli, il comportamento di questo rapporto varia molto sia in termini di significatività che di pendenza delle variazioni. Probabilmente gli intervalli risultano troppo brevi per questo rapporto che dipende da molti fattori come l'importanza relativa di sorgenti antropiche che producono quantità molto diverse di OC ed EC (come il traffico o la combustione della biomassa) oppure il peso della componente secondaria che incide solo sulla concentrazione della frazione organica (SOA).

Tabella 14.4.2 – Significatività del trend di  $PM_{2,5}$ , OC, EC,  $NH_4^+$ ,  $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$  e del rapporto OC/EC sull'intero periodo considerato, e su tre sottoinsiemi di tale intervallo temporale, calcolate con test Mann-Kendall stagionale (MKS p-value, in nero quando significativo:  $< 0.05$ ). La variazione lineare annua (b) è calcolata tramite stima del coefficiente Theil-Sen.

SPECIE	PERIODO	BOLOGNA	PARMA	RIMINI	S. PIETRO C.
$PM_{2,5}$	Intero periodo: 11/11 – 02/20	<b>MKS p-value = 0.03</b> <b>b = -0.35</b> ( $\mu g/m^3$ )/y	MKS p-value = 0.2 b = -0.36 ( $\mu g/m^3$ )/y	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.70</b> ( $\mu g/m^3$ )/y	MKS p-value = 0.9 b = 0.05 ( $\mu g/m^3$ )/y
	11/11 – 08/14	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -3.13</b> ( $\mu g/m^3$ )/y	MKS p-value = 0.3 b = -2.22 ( $\mu g/m^3$ )/y	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -3.29</b> ( $\mu g/m^3$ )/y	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -2.87</b> ( $\mu g/m^3$ )/y
	09/14 – 05/17	MKS p-value = 0.7	MKS p-value > 0.99	MKS p-value = 0.4	MKS p-value = 0.6

SPECIE	PERIODO	BOLOGNA	PARMA	RIMINI	S. PIETRO C.
		b = 0.18 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	b = 0.27 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	b = -0.76 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	b = -0.24 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	06/17 – 02/20	MKS p-value = 0.1 b = -1.77 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.1 b = -1.84 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = -0.72 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = 0.44 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
OC	Intero periodo: 03/12 – 09/19 03/12 – 10/19 SPC	MKS p-value = 0.1 b = -0.04 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.1 b = -0.05 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.8 b = -0.01 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.5 b = -0.02 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	03/12 – 09/14	MKS p-value = 0.1 b = -0.31 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.9 b = -0.20 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.4 b = -0.26 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.2 b = -0.26 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	10/14 – 03/17	MKS p-value = 0.3 b = -0.10 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.2 b = -0.24 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.2 b = -0.20 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	<b>MKS p-value = 0.01</b> <b>b = -0.50</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>
	04/17 – 09/19 04/17 – 10/19 SPC	MKS p-value = 0.6 b = -0.16 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.9 b = -0.02 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = 0.28 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value > 0.99 b = 0.01 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
EC	Intero periodo: 03/12 – 09/19 03/12 – 10/19 SPC	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.06</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.04</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.05</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>	MKS p-value = 0.08 b = -0.01 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	03/12 – 09/14	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.21</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.15</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.25</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y]</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.08</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>
	10/14 – 03/17	MKS p-value > 0.99 b = 0.10 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value > 0.99 b = -0.03 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.9 b = 0.03 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value > 0.99 b = -0.04 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y

SPECIE	PERIODO	BOLOGNA	PARMA	RIMINI	S. PIETRO C.
	04/17 – 09/19 04/17 – 10/19 SPC	MKS p-value = 0.09 b = -0.13 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	<b>MKS p-value = 0.04</b> <b>b = -0.07</b> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.3 b = -0.03 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.3 b = -0.04 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
OC/EC	Intero periodo: 03/12 – 09/19 03/12 – 10/19 SPC	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = 0.14 /y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = 0.20 /y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = 0.20 /y</b>	MKS p-value = 0.7 b = 0.00 /y
	03/12 – 09/14	<b>MKS p-value = 0.047</b> <b>b = 0.44 /y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = 0.88 /y</b>	<b>MKS p-value = 0.047</b> <b>b = 0.58 /y</b>	MKS p-value = 0.2 b = 0.36 /y
	10/14 – 03/17	<b>MKS p-value = 0.02</b> <b>b = 0.44 /y</b>	<b>MKS p-value = 0.047</b> <b>b = -0.34 /y</b>	MKS p-value = 0.4 b = -0.06 /y	<b>MKS p-value = 0.02</b> <b>b = -0.65 /y</b>
	04/17 – 09/19 04/17 – 10/19 SPC	MKS p-value = 0.1 b = -0.44 /y	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = 0.78 /y</b>	<b>MKS p-value = 0.02</b> <b>b = 0.59 /y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = 0.51 /y</b>
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Intero periodo: 11/11 – 09/19 12/11 – 09/19 Bologna	MKS p-value = 0.4 b = -0.02 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value > 0.99 b = 0.00 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value > 0.99 b = 0.02 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.3 b = 0.01 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	11/11 – 06/14 12/11 – 07/14 Bologna	MKS p-value = 0.06 b = -0.18 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.9 b = -0.02 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.2 b = -0.24 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.9 b = -0.33 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	07/14 – 01/17 08/14 – 02/17 Bologna	MKS p-value = 0.6 b = 0.13 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.4 b = -0.24 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = -0.20 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = 0.08 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	02/17 – 09/19 03/17 – 09/19 Bologna	MKS p-value = 0.2 b = -0.11 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.1 b = -0.32 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.4 b = -0.12 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.4 b = -0.17 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Intero periodo: 11/11 – 09/19 12/11 – 09/19 Bologna	MKS p-value = 0.2 b = 0.00 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.2 b = -0.01 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.5 b = 0.01 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.4 b = 0.02 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y

SPECIE	PERIODO	BOLOGNA	PARMA	RIMINI	S. PIETRO C.
	11/11 – 06/14 12/11 – 07/14 Bologna	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.30</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>	MKS p-value = 0.6 b = -0.14 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = -0.10 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.2 b = -0.86 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	07/14 – 01/17 08/14 – 02/17 Bologna	MKS p-value = 0.2 b = 0.22 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value > 0.99 b = -0.16 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.9 b = -0.11 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.9 b = 0.16 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	02/17 – 09/19 03/17 – 09/19 Bologna	MKS p-value = 0.4 b = -0.16 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -0.88</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>	MKS p-value = 0.1 b = -0.13 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = 0.01 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Intero periodo: 11/11 – 09/19 12/11 – 09/19 Bologna	MKS p-value = 0.1 b = -0.05 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.1 b = -0.04 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.2 b = -0.03 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.3 b = -0.04 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	11/11 – 06/14 12/11 – 07/14 Bologna	MKS p-value = 0.1 b = -0.37 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.4 b = -0.21 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	<b>MKS p-value = 0.02</b> <b>b = -0.27</b> <b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)/y</b>	MKS p-value = 0.2 b = -0.20 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	07/14 – 01/17 08/14 – 02/17 Bologna	MKS p-value = 0.9 b = 0.03 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = -0.14 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value > 0.99 b = 0.05 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = -0.02 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y
	02/17 – 09/19 03/17 – 09/19 Bologna	MKS p-value = 0.4 b = -0.15 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.1 b = -0.36 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.4 b = -0.10 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y	MKS p-value = 0.6 b = -0.03 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/y

Per i metalli l'analisi è stata fatta per Sb, As, Cd, Pb, Fe, Sn, V e Zn. I primi quattro (Sb, As, Cd, Pb) hanno un trend negativo significativo in tutti i siti, mentre Fe e Sn non hanno mai avuto un andamento costante. Per V e Zn, al contrario che per tutti gli altri metalli, non è stato individuato un comportamento omogeneo in tutti i siti: hanno avuto un calo significativo in tutti i siti tranne che

a RN, il V, e a SPC, lo Zn, per cui non c'è una tendenza significativa (Tabella 14.4.3).

Infine tra i componenti in tracce è stato osservato il levoglucosano, uno zucchero deidratato derivante dalla cellulosa e marker dei processi di combustione della biomassa. Il levoglucosano è stato misurato a partire dal

2015 e in questo periodo, seppur limitato, ha mostrato un trend di concentrazione negativo significativamente diverso da zero in tutti i siti (Tabella 14.4.3).

Tabella 14.4.3 – Significatività del trend delle specie presenti in tracce nel PM<sub>2.5</sub>, sull'intero periodo considerato, calcolata con test Mann-Kendall stagionale (MKS p-value, in nero quando significativo: < 0.05). La variazione lineare annua (b) è calcolata tramite stima del coefficiente Theil-Sen.

	BOLOGNA	PARMA	RIMINI	S. PIETRO C.
Ferro	MKS p-value = 0.5 b = 1e-03 (µg/m <sup>3</sup> )/y	MKS p-value = 0.2 b = 3e-03 (µg/m <sup>3</sup> )/y	MKS p-value = 0.1 b = -3e-3 (µg/m <sup>3</sup> )/y	MKS p-value = 0.8 b = -1e-4 (µg/m <sup>3</sup> )/y
Antimonio	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -7e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -4e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -3e-5 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -4e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>
Stagno	MKS p-value = 0.6 b = -1e-05 (µg/m <sup>3</sup> )/y	MKS p-value = 0.3 b = -2e-05 (µg/m <sup>3</sup> )/y	<b>MKS p-value = 0.08</b> <b>b = -2e-5 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	MKS p-value = 0.2 b = -2e-05 (µg/m <sup>3</sup> )/y
Vanadio	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -5e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value = 0.02</b> <b>b = -3e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	MKS p-value = 0.2 b = -3e-5 (µg/m <sup>3</sup> )/y	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -5e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>
Arsenico	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -3e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -5e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -3e-5 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -4e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>
Cadmio	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -1e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -1e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -1e-5 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -1e-05 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>
Piombo	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -3e-4 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -2e-04 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -2e-4 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -2e-04 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>
Zinco	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -5e-4 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value = 0.03</b> <b>b = -5e-4 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value = 0.04</b> <b>b = -5e-4 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value = 0.2</b> <b>b = -4e-04 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>
Levoglucoosano	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -5e-3 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value = 0.02</b> <b>b = -9e-3 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -8e-3 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>	<b>MKS p-value &lt; 0.01</b> <b>b = -3e-3 (µg/m<sup>3</sup>)/y</b>

## Discussione

L'andamento delle componenti del PM<sub>2.5</sub> potrebbe suggerire che ci sia stata una diminuzione del contributo primario al particolato, ma non di quello secondario.

L'andamento del trend del Carbonio Elementare, componente primario dell'aerosol e originato dalle combustioni, suggerisce una diminuzione dell'impatto di questa tipologia di sorgenti, che potrebbe essere legata sia alla riduzione delle attività che producono emissioni (es. riduzione dei flussi di traffico, etc.) sia al miglioramento delle tecnologie utilizzate (es. rinnovamento del parco veicolare con veicoli a tecnologia meno inquinante, etc.). Il trend individuato potrebbe essere legato alle modifiche della sorgente di traffico veicolare, che secondo le serie storiche (1990-2018) degli inventari delle emissioni di Ispra (<http://www.sinanet.isprambiente.it/it/sia-ispra/serie-storiche-emissioni>), è in costante calo; un parallelo aumento delle sorgenti da combustione di biomassa legate al riscaldamento potrebbe aver contribuito a controbilanciare questo effetto. Il fatto che il levoglucosano dal 2015 mostri un calo significativo in tutti i siti e, analogamente, il Carbonio Elementare in due dei siti urbani lo mostri dal 2017, potrebbe indicare un inizio di diminuzione anche per le sorgenti legate alla combustione di biomassa attribuibile ai miglioramenti tecnologici, o ad una maggiore consapevolezza nella cittadinanza, oppure all'introduzione di provvedimenti anche sull'uso non efficiente di biomassa per il riscaldamento (come ad esempio, per la regione Emilia-Romagna, all'interno del PAIR2020, [https://www.arpae.it/dettaglio\\_generale.asp?id=3890&idlivello=2054](https://www.arpae.it/dettaglio_generale.asp?id=3890&idlivello=2054)).

Il comportamento dei metalli offre lo spunto per un futuro lavoro di approfondimento sulla loro attribuzione, per esempio se si trovano in forma solubile o meno, oppure se sono di origine naturale o antropica. Ciò permetterebbe di capire se i trend che si riscontrano in metalli, come Cd, As e Pb ma non in Fe e Sn, possano essere indice di una trasformazione, ad esempio, della sorgente traffico verso forme più efficienti nei consumi (basse emissioni o elettriche) che però non modificherebbero il numero di veicoli in circolazione e quindi, con ogni probabilità, la componente non-exhaust.

La sostanziale mancanza di trend per la componente secondaria inorganica - e organica, che a sua volta è fortemente dipendente dalla frazione secondaria -

sottolinea l'importanza del particolato che si genera direttamente in atmosfera rispetto alla massa totale di PM<sub>2.5</sub>. Questa frazione secondaria risente, probabilmente, in modo meno efficiente e con una maggiore inerzia temporale dei cambiamenti delle sorgenti di aerosol primario. Sicuramente ci si aspetta che una riduzione dei precursori emessi (COV, SO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub>, ...) abbia un'influenza sulle concentrazioni del particolato secondario, oltre ad essere di per sé auspicabile, essendo alcuni di essi specie normate dalla legge in vigore (D.Lgs. 155/2010). Potrebbero però essere necessarie riduzioni all'emissione piuttosto consistenti e durature per ottenere effetti percepibili sul PM<sub>2.5</sub> in un ambiente stagnante come la Pianura Padana, visto che la formazione del secondario e la sua permanenza in atmosfera non sono direttamente proporzionali alla quantità di gas precursori emessi, ma dipendono in gran parte dalle caratteristiche meteorologiche dell'atmosfera (come temperatura, umidità, capacità dispersiva; Seinfeld e Pandis, 2006). Non a caso le concentrazioni medie annue di PM<sub>2.5</sub>, come anche il numero di superamenti giornalieri di PM<sub>10</sub>, sono fortemente legate ai cosiddetti "giorni favorevoli all'accumulo" (report La qualità dell'aria in Emilia-Romagna, 2018; [https://www.arpae.it/dettaglio\\_documento.asp?id=7361&idlivello=134](https://www.arpae.it/dettaglio_documento.asp?id=7361&idlivello=134)) che si rilevano in un anno.

## Conclusioni

L'analisi del trend del PM<sub>2.5</sub> ha mostrato come negli ultimi anni sia stato molto difficile ottenere un calo significativo di questo inquinante, nonostante la diminuzione delle componenti che derivano più strettamente dalle sorgenti primarie di aerosol come il carbonio elementare e il levoglucosano. La componente secondaria, che ha un peso rilevante sulla concentrazione del PM<sub>2.5</sub>, non mostra però variazioni significative nel tempo: questa frazione risente in modo meno diretto delle variazioni delle sorgenti, a meno che queste siano sostanziali e durature, mentre risente molto delle condizioni geografiche e meteorologiche, che possono incidere in modo sostanziale sulla massa dell'aerosol. Questo porta

a non osservare una diminuzione significativa del particolato totale ( $PM_{2,5}$ ) rilevato in atmosfera.

In regioni caratterizzate da condizioni meteo-climatiche sfavorevoli come quelle della Pianura Padana sono pertanto necessari interventi sulle emissioni consistenti e duraturi nel tempo, tali da incidere non solo sulla componente primaria dell'aerosol, ma da arrivare a contrastare anche la formazione e la stagnazione del particolato secondario.

### **Ringraziamenti**

Gli autori desiderano ringraziare tutti i colleghi di Arpae, delle APA e del Laboratorio Multisito, che hanno collaborato a raccogliere ed analizzare questi dati.

## Bibliografia

Bigi A., Ghermandi G. Long-term trend and variability of atmospheric PM<sub>10</sub> concentration in the Po Valley. *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (2014) 4895-4907;

Bigi A., Ghermandi G. Trends and variability of atmospheric PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10-2.5</sub> concentration in the Po Valley, Italy. *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (2016) 15777-15788;

Cavalli F., Viana M., Yttri K.E., Genberg J., Putaud J.P. Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol. *Atmospheric Measurement Techniques* 3 (2010) 79-89;

Cleveland R.B., Cleveland W.S., McRae J.E., Terpenning I. STL: A Seasonal-Trend Decomposition Procedure Based on Loess. *Journal of official Statistics* 6 (1990) 3-73;

Costa V., Bacco D., Castellazzi S., Ricciardelli I., Vecchietti R., Zigola C., Pietrogrande M.C. Characteristics of carbonaceous aerosol in Emilia-Romagna (Northern Italy) based on two fall/winter field campaigns. *Atmospheric Research* 167 (2016) 100-107;

Gilardoni S., Massoli P., Giulianelli L., Rinaldi M., Paglione M., Pollini F., Lanconelli C., Poluzzi V., Carbone C., Hillamo R., Russell L.M., Facchini M.C., Fuzzi S. Fog scavenging of organic and inorganic aerosol in the Po Valley. *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (2014) 6967-6981;

Gilardoni S., Massoli P., Paglione M., Giulianelli L., Carbone C., Rinaldi M., Decesari S., Sandrini S., Costabile F., Gobbi G.P., Pietrogrande M.C., Visentin M., Scotto F., Fuzzi S., Facchini M.C. Direct observation of aqueous secondary organic aerosol from biomass-burning emissions. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 113 (2016) 10013-10018;

Hirsh R.M., Slack J.R., Smith R.A. Techniques of trend analysis for monthly water quality data. *Water Resources Research* 18 (1982) 107-121;

Ottone M., Broccoli S., Parmagnani F., Giannini S., Scotto F., Bonvicini L., Luberto F., Bacco D., Trentini A., Poluzzi V., Angelini P., Colacci A., Rossi P.G., Ranzi A. Source-related components of fine particulate matter and risk of adverse birth outcomes in Northern Italy. *Environmental Research* 186 (2020) 109564;

Paglione M., Gilrdoni S., Rinaldi M., Decesari S., Zanca N., Sandrini S., Giulianelli L., Bacco D., Ferrari S., Poluzzi V., Scotto F., Trentini A., Poulain L., Herrmann H., Wiedensohler A., Canonaco F., Prevot A.S.H., Massoli P., Carbone C., Facchini M.C., Fuzzi S. The impact of biomass burning and aqueous-phase processing on air quality: a multi-year source apportionment study in the Po Valley, Italy. *Atmospheric Chemistry and Physics* 20 (2020) 1233-1254;

Pietrogrande M.C., Bacco D., Visentin M., Ferrari S., Poluzzi V. Polar organic marker compounds in atmospheric aerosol in the Po Valley during the Supersito campaigns – Part 1: Low molecular weight carboxylic acids in cold seasons. *Atmospheric Environment* 86 (2014) 164-175;

Pietrogrande M.C., Bacco D., Visentin M., Ferrari S., Casali P. Polar organic marker compounds in atmospheric aerosol in the Po Valley during the Supersito campaigns – Part 2: Seasonal variations of sugars. *Atmospheric Environment* 97 (2014) 215-225;

Pietrogrande M.C., Bacco D., Ferrari S., Kaipainen J., Ricciardelli I., Riekkola M.L., Trentini A., Visentin M. Characterization of atmospheric aerosol in the Po Valley during the Supersito campaigns – Part 3: Contribution of wood

combustion to wintertime atmospheric aerosols in Emilia-Romagna region (Northern Italy). *Atmospheric Environment* 122 (2015) 291-305;

Pietrogrande M.C., Bacco D., Ferrari S., Ricciardelli I., Scotto F., Trentini A., Visentin M. Characterization and major sources of carbonaceous aerosols in PM<sub>2.5</sub> in Emilia-Romagna region (Northern Italy) from four-year observations. *Science of the Total Environment* 553 (2016) 172-183;

Ricciardelli I., Bacco D., Rinaldi M., Bonafè G., Scotto F., Trentini A., Bertacci G., Ugolini P., Zigola C., Rovere F., Maccone C., Pironi C., Poluzzi V. A three-year investigation of daily PM<sub>2.5</sub> main chemical components in four sites: the routine measurement program of the Supersito Project (Po Valley, Italy). *Atmospheric Environment* 152 (2017) 418-430;

Rinaldi M., Gilardoni S., Paglione M., Sandrini S., Fuzzi S., Massoli P., Bonasoni P., Cristofanelli P., Marinoni A., Poluzzi V., Decesari S. Organic aerosol evolution and transport observed at Mt. Cimone (2165 m a.s.l.), Italy, during the PEGASOS campaign. *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (2015) 11327-11340;

Sandrini S., van Pinxteren D., Giulianelli L., Herrmann H., Poulain L., Facchini M.C., Gilardoni S., Rinaldi M., Paglione M., Turpin B.J., Pollini F., Bucci S., Zanca N., Decesari S. Size-resolved aerosol composition at an urban and a rural site in the Po Valley in summertime: implications for secondary aerosol formation. *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (2016) 10879-10897;

Scotto F., Ricciardelli I., Bacco D., Vaghegini A., Trentini A., Ferrari S., Poluzzi V., Maccone C., Vecchi R. PM<sub>2.5</sub> source apportionment in the Po Valley: a 4 city study in Emilia-Romagna region. *Comunicazione orale, European Aerosol Conference, Milano (2015)*, [https://www.arpae.it/cms3/documenti/\\_cerca\\_doc/supersito/presentazioni/2015/10-presentazEAC2015\\_sotto.pdf](https://www.arpae.it/cms3/documenti/_cerca_doc/supersito/presentazioni/2015/10-presentazEAC2015_sotto.pdf);

Seinfeld J.H., Pandis S.N. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. 2nd Edition, John Wiley & Sons, New York (2006);

Sen P.K. Estimates of the regression coefficient based on Kendall's tau. *Journal of the American Statistical Association* 63 (1968) 1379-1389;

Theil H. A rank-invariant method of linear and polynomial regression analysis. I, II, III. *Nederl. Akad. Wetensch.* 53 (1950) 386-392, 521-525, 1397-1412.

## 14.5 QUANTIFICAZIONE DELLA PRESENZA DI GRANULI DI TONER COLORATO DI STAMPANTE E VALUTAZIONE DELLA PRESENZA DI MICROPLASTICHE IN ARIA AMBIENTE IN 5 CITTÀ ITALIANE

Verardo P.<sup>1</sup>, Tassan-Mazzocco F.<sup>1</sup>, Flori C.<sup>2</sup>, Della Bella V.<sup>2</sup>, Moretti O.<sup>2</sup>

<sup>1</sup>ARPA FVG

<sup>2</sup>ARPA UMBRIA

### RIASSUNTO

Questa indagine è stata condotta in 4 città del Friuli Venezia Giulia ed una in Umbria. Il metodo per l'analisi dei pollini in aria prevede il campionamento giornaliero in continuo ad un'altezza minima di 15 metri dal suolo. Oltre ai pollini si possono riconoscere, ed eventualmente contare, granuli di particolato atmosferico in base a caratteristiche ottiche quali colore, trasparenza e morfologia. Alcune forme caratteristiche possono essere identificate per confronto con campioni di laboratorio o di letteratura.

Le particelle di toner colorato di stampante si sono dimostrate presenti in aria ambiente nei campioni per la conta pollinica. Il toner nero, sicuramente presente, non è distinguibile dal particolato atmosferico nero derivante da processi di combustione.

In letteratura si trovano studi riguardanti l'impatto sulla salute della polvere di toner, condotti esclusivamente all'interno di aree confinate. La maggior parte di questi lavori tende ad escludere che il toner sia causa di gravi danni alla salute, pur avendo dimensioni compatibili con le PM<sub>10</sub>. Le scarse informazioni sulla fabbricazione e sulla composizione di queste polveri lasciano ancora aperto il problema degli effetti sulla salute umana.

Altre particelle di interesse attuale sono le microplastiche, frammenti di materiale plastico dispersi nell'ambiente esterno. Oltre che nel suolo e nei fondali marini sono state rintracciate anche in aria. Alcune forme sono state fotografate nei vetrini per il monitoraggio pollinico. Gli impatti sulla salute umana sono descritti per ingestione o contatto con l'epitelio respiratorio. Le microplastiche nell'aria ambiente rappresentano una parte del ciclo della plastica che inevitabilmente si conclude o nel suolo o in mare.

**Parole chiave:** toner, monitoraggio aerobiologico, microplastiche, microscopia ottica

### ABSTRACT

This survey was conducted in 4 cities in Friuli Venezia Giulia and one in Umbria. The method for analyzing airborne pollen involves continuous daily sampling at a minimum height of 15 meters above the ground. In addition to pollen, atmospheric particulate granules can be recognized and possibly counted on the basis of optical characteristics such as color, transparency and morphology. Some characteristic shapes can be identified by comparison with laboratory or literature samples.

Colored printer toner particles have been shown to be present in ambient air in pollen count samples. The black toner, certainly present, is indistinguishable from the black atmospheric particulate resulting from combustion processes.

There are literature studies concerning the impact of toner powder on health, conducted exclusively indoor. Most of these works tend to exclude that toner is causing serious harm to health, despite having dimensions compatible with PM<sub>10</sub>. The limited information on the manufacture and composition of these powders still leaves the problem of the effects on human health open.

Other particles of current interest are microplastics, alias fragments of plastic material dispersed in the external environment. In addition to the soil and the seabed, they have also been recognized in ambient air. Some forms were photographed in the pollen monitoring slides. The impacts on human health have been described following ingestion or contact with the respiratory epithelium. Microplastics in ambient air represent a part of the cycle

of plastic that inevitably ends either in the soil or in the sea.

**Keywords:** toner, aerobiological monitoring, microplastics, optical microscopy.

### **Autore di riferimento**

Pierluigi Verardo (ARPA FVG) tel. 0432 191 8224; mail [pierluigi.verardo@arpa.fvg.it](mailto:pierluigi.verardo@arpa.fvg.it)

### **Introduzione**

Il presente lavoro si propone di evidenziare la presenza di granuli liberi di toner colorato di stampante in aria ambiente e quantificarne la presenza attraverso i preparati per la conta dei pollini.

Lo studio si focalizza, inoltre, su un'indagine esplorativa della presenza di particelle di microplastiche nell'aria ambiente, in considerazione del rilevamento sempre più documentato nei campioni di acqua marina e della recente formulazione dell'ipotesi di un vero e proprio "ciclo delle microplastiche", che suppone il passaggio di questo materiale alla matrice acqua dall'aria e dal suolo.

I vetrini per il monitoraggio aerobiologico sono il risultato di un campionamento attivo di particolato atmosferico che utilizza campionatori volumetrici posti sul tetto di un edificio, a circa 15-20 metri di altezza dal suolo (ISPRA 2017).

Durante la conta al microscopio delle particelle di pollini e spore si possono identificare e quantificare vari tipi di particolato, distinguibili per caratteristiche ottiche quali forma, colore e dimensioni.

I granuli di toner colorato hanno caratteristiche fisiche peculiari e tre colori (giallo, ciano e magenta), che li rendono evidenti, distinguibili, e poco confondibili nei preparati. Campioni allestiti in laboratorio con toner di stampante confermano la lettura. Sono ancora poco noti i loro effetti sulla salute (Koller 2015).

Un altro tipo di particolato rinvenuto al microscopio ottico sono i frammenti di microplastiche, materiali che negli ultimi anni sono diventati oggetto di numerosi studi come contaminanti delle acque marine, mentre nella matrice aria sono tuttora scarsamente indagati, sebbene comincino a suscitare un crescente interesse nella comunità scientifica e preoccupazione nei cittadini.

Una ricerca mirata, effettuata sui preparati aerobiologici giornalieri di Pordenone, Tolmezzo (UD), Lignano Sabbiadoro (UD), Trieste e Terni negli anni 2017 e 2018 quantifica i granuli di toner colorato in granuli/m<sup>3</sup> di aria al giorno. Si suppone che la loro abbondanza dipenda dalla presenza in loco di sorgenti quali uffici, università, copisterie, tipografie e abitazioni private.

Sui medesimi preparati è stata pure effettuata una ricerca qualitativa di particelle di microplastiche.

### **Metodi**

Vetrini giornalieri di monitoraggio aerobiologico: il campionamento del particolato atmosferico per la conta dei pollini è disciplinato dalla linea guida "POLLnet - Linee guida per il monitoraggio aerobiologico", (ISPRA 2017). da ISPRA, Manuali e linee guida 151/2017 ISBN: 978-88-448-0820-4.

Sono stati presi in considerazione i vetrini di conta aerobiologica giornaliera:

Pordenone dal 01/08/2017 al 31/12/2018;

Tolmezzo dal 01/08/2017 al 31/12/2018;

Trieste dal 28/08/2017 al 31/12/2018;

Lignano Sabbiadoro dal 21/08/2017 al 31/12/2018;

Terni dal 01/08/2017 al 31/12/2018;

Vetrini di confronto: sono stati preparati in laboratorio vetrini contenenti polvere di toner da stampante laser, per avere un confronto con quelli ritrovati in aria (Figura 14.5.1).



Figura 14.5.1: immagine al microscopio di polvere di toner. Vetrino preparato in laboratorio ARPA Umbria

Sono state inoltre eseguite letture di bianco campione con preparati non esposti al campionamento.

Le particelle di microplastiche (Figura 14.5.2) sono comparate per forma e dimensioni a quelle rinvenute in campioni di acqua di mare nelle indagini in ottemperanza

alla cosiddetta Marine Strategy, la Direttiva quadro 2008/56/CE sulla strategia per l'ambiente marino, successivamente recepita in Italia con il D.Lgs. n. 190 del 13 ottobre 2010.



Figura 14.5.2. Immagine al microscopio ottico stereo di frammenti di microplastiche rinvenuti in campioni di acqua marina, per gentile concessione del dott. Francesco Cumani – ARPA FVG

Microscopio ottico: sono stati usati microscopi ottici normalmente utilizzati per la lettura dei preparati aerobiologici, secondo le Linee Guida POLLnet.

#### Località di campionamento

I vetrini provengono dalle seguenti città italiane: Trieste, Lignano Sabbiadoro, Tolmezzo, Pordenone, Terni (Tabella 14.5.1).

Le località prescelte, facenti parte della rete di monitoraggio pollinico POLLnet, hanno le seguenti caratteristiche:

- Trieste – Castello di San Giusto: in posizione più elevata rispetto al centro cittadino, lontano dall'Università, uffici pubblici e scolastici. La città è affacciata sull'omonimo golfo nella parte più

settentrionale dell'Alto Adriatico; il territorio è occupato prevalentemente da un pendio collinare che cresce di altitudine fino al Carso. La popolazione conta 202 564 abitanti.

- Lignano Sabbiadoro – Municipio: il campionario è posto sul tetto della sede municipale. Al piano sottostante ha sede il centro telematico comunale, e sulla rampa di scale di accesso al tetto, durante il periodo di campionamento, erano stoccate stampanti e computer in disuso. Anche la città di Lignano Sabbiadoro si affaccia sull'Alto Adriatico: si tratta infatti di un comune di 6 837 abitanti in provincia di Udine in Friuli-Venezia Giulia, noto per la sua vocazione turistica, con un flusso di visitatori che raggiunge 5000000 presenze annuali.

- Tolmezzo – Casa di Riposo "Scrosoppi": si trova in centro città, vicino ad uffici pubblici e istituti scolastici.

Tolmezzo è un comune di 10 090 abitanti del Friuli-Venezia Giulia, rappresenta il centro più importante della Carnia di cui è considerato il capoluogo virtuale. Si trova a 323 m s.l.m., tra il Tagliamento e il torrente But, alla confluenza delle sette valli carniche, circondata dalle Alpi Tolmezzine Orientali.

- Pordenone – sede ARPA FVG: l'edificio è situato nelle adiacenze del polo universitario. In zona sono presenti copisterie e tipografie. Principale città del Friuli occidentale, posta lungo le sponde del fiume Noncello, conta 51 714 abitanti. Il territorio di Pordenone si trova nella bassa pianura friulana della Pianura padano-veneta, a Sud delle Prealpi Carniche.

- Terni – sede ARPA UMBRIA: l'edificio sorge in una zona periurbana densamente popolata dove si alternano palazzi e ampie aree coltivate. Vi insistono diverse attività commerciali, ma gli uffici pubblici, università, copisterie e tipografie sono dislocate in aree cittadine distanti dal campionatore. E' un comune di 110 025 abitanti, capoluogo dell'omonima provincia in Umbria. Il territorio comunale è ampio (211,90 km<sup>2</sup>), e si estende intorno alla città di Terni, (conca Ternana) fino alla Valnerina Ternana ad est e alle Terre Arnolfe a nord/nord-ovest. La densità abitativa è abbastanza elevata, per la notevole presenza di aree verdi sparse nel territorio comunale.

Tabella 14.5.1: località di campionamento

	longitudine	latitudine	altezza s.l.m. (m)	altezza dal suolo (m)
<b>Trieste – castello di San Giusto</b>	E 13.462390	N 45.384790	55	17
<b>Lignano Sabbiadoro - Municipio</b>	E 13.129536	N 45.689165	2	15
<b>Tolmezzo – Casa di Riposo “Scrosoppi”</b>	E 13.010574	N 46.405329	323	17
<b>Pordenone – sede ARPA FVG</b>	E 12.681275	N 45.953595	24	18
<b>Terni – sede ARPA Umbria</b>	E 12.374146	N 42.343517	130	21

### Procedimento

Come descritto nelle Linee Guida POLLnet, l'aria viene convogliata da un catturatore volumetrico posto su un terrazzo aperto ad un'altezza compresa tra 15 e 20 metri

dal suolo. L'aria impattata a questa altitudine, pertanto, non corrisponde a quella normalmente respirata dalla popolazione, ma è tuttavia rappresentativa di una vasta area di territorio omogenea per le particelle leggere e

diffuse, come pollini e spore. Il flusso aspirato è di 10 litri/minuto, pari a 14,4 m<sup>3</sup> di aria giornalieri; il particolato solido presente nell'aria campionata rimane adeso su un nastro siliconato trasparente, con una superficie di 672 mm<sup>2</sup>.

In laboratorio il nastro viene ripartito nelle rispettive porzioni giornaliere, ciascuna delle quali montata su un vetrino allestito per la conta aerobiologica, che viene letto al microscopio ottico in campo chiaro. Non viene analizzata la superficie totale del nastro giornaliero, ma una percentuale prefissata, che deve essere superiore al

15% del totale. Mediante un opportuno coefficiente di conversione il numero di granuli letti sulla frazione giornaliera di nastro viene commutato in numero di particelle per m<sup>3</sup> di aria campionata (ISPRA 2017).

Le particelle di toner colorato hanno caratteristiche peculiari ben evidenti alla lettura microscopica, conformemente a quanto riportato in letteratura (Koller 2015): diametro da 2 a 10 µm, forma spigolosa subsferica, colore marcatamente rosso carminio, giallo, blu azzurro (Figura 14.5.3) .

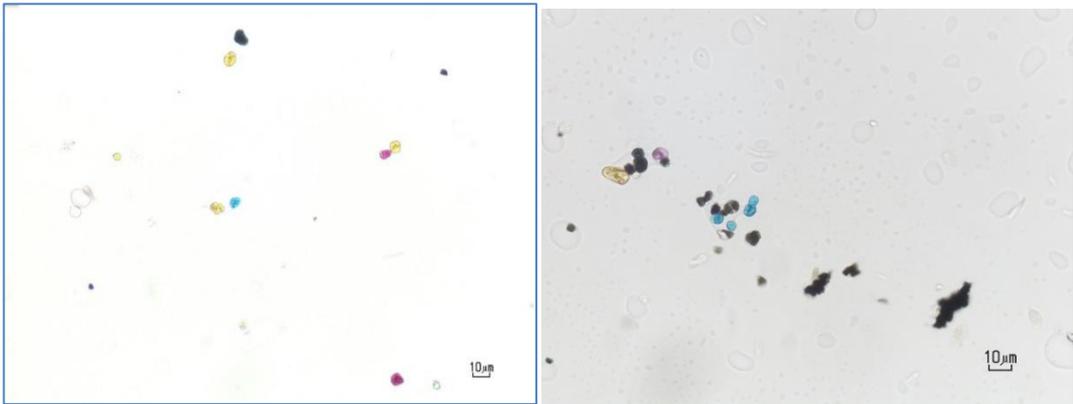


Figure 14.5.3. Granuli di toner in vetrino di campionamento aerobiologico

La possibilità di confusione dei granuli di toner in atmosfera con sali atmosferici, materiale artificiale o con coloranti per microscopia viene ridotta con il confronto con vetrini di toner preparati in laboratorio.

Il toner nero non è tuttavia distinguibile dal particolato atmosferico nero derivante da processi di combustione, molto frequente soprattutto nei mesi invernali, per questo non viene trattato in questo lavoro.

Durante la lettura pollinica vengono annotate le particelle di toner colorato rilevate, che sono poi espresse in granuli di toner/m<sup>3</sup> come dato giornaliero.

Per quanto attiene le microplastiche, il presente studio si propone di verificarne la presenza in aria ambiente, non di quantificarle.

## Risultati

### Quantificazione del toner colorato

Le analisi giornaliere dei vetrini per campionamento aerobiologico hanno rilevato una presenza scarsa di particelle di toner colorato di stampante in tutti i 5 siti esaminati, con abbondanze e frequenze differenti.

Spesso nei vetrini di monitoraggio aerobiologico si rinvencono fibre, filamenti o strutture amorfe colorate, di dimensioni varie, che confrontate con il materiale microplastico rinvenuto nei sedimenti marini, o con immagini varie di monitoraggio di microplastiche, possono essere assimilati ad esse. I frammenti di dimensioni al di sotto dei 10 – 15  $\mu\text{m}$  sono spesso di difficile interpretazione, ma oggetti come le fibre sintetiche si possono riconoscere per forma e colore.

### Rilevazione di microplastiche

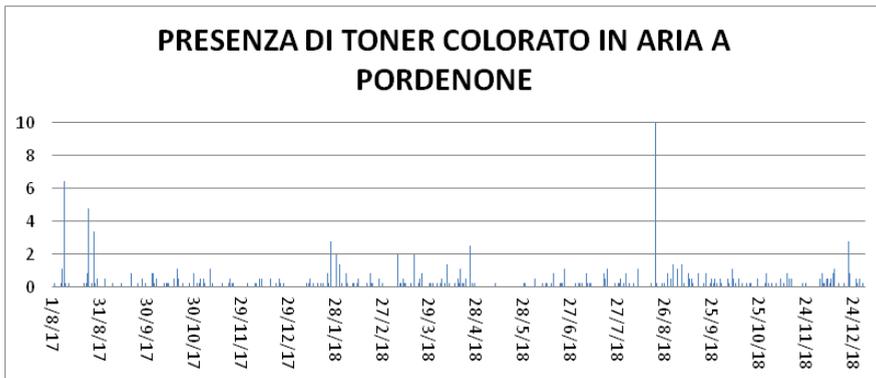


Figure 14.5.4. Pordenone: quantificazione giornaliera di polvere di toner colorato (granuli/m<sup>3</sup>)

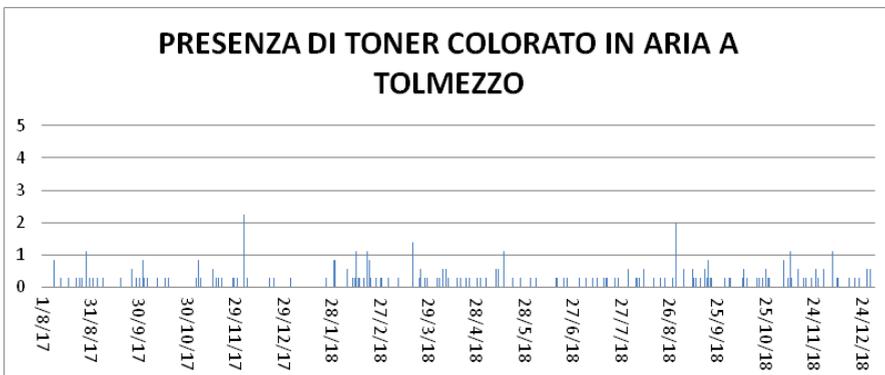


Figure 14.5.5. Tolmezzo: quantificazione giornaliera di polvere di toner colorato (granuli/m<sup>3</sup>)

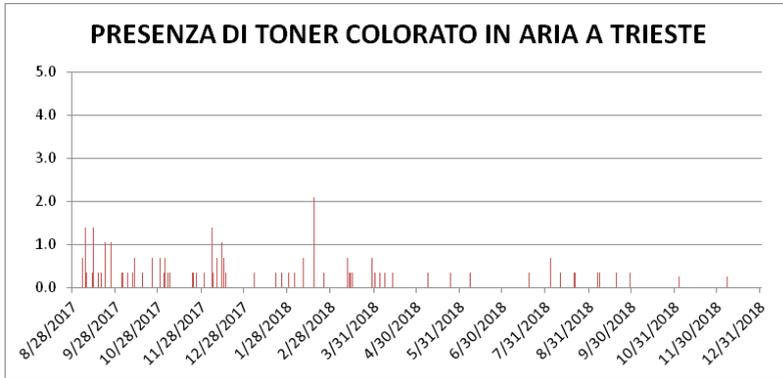


Figure 14.5.6. Trieste: quantificazione giornaliera di polvere di toner colorato (granuli/m<sup>3</sup>)

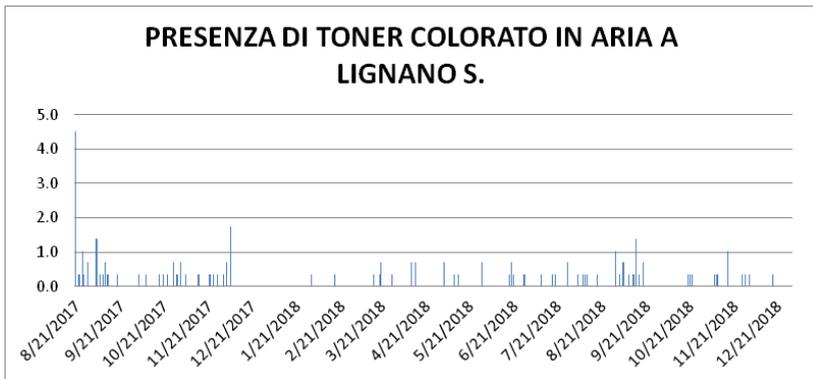


Figure 14.5.7. Lignano Sabbie d'Oro: quantificazione giornaliera di polvere di toner colorato (granuli/m<sup>3</sup>)

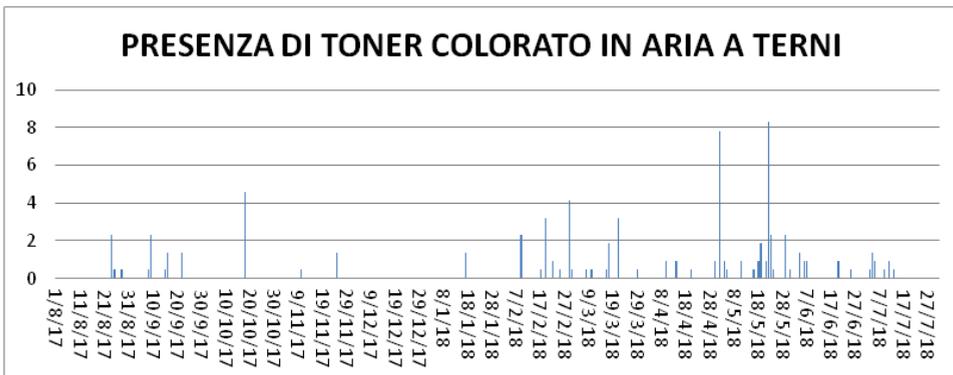


Figura 14.5.8. Terni: quantificazione giornaliera di polvere di toner colorato (granuli/m<sup>3</sup>)

Tabella 14.5.2. Riassunto dei valori di toner colorato misurati nelle 5 località

	Trieste	Pordenone	Tolmezzo	Lignano S.	Terni
<b>media giornaliera (granuli di toner/m<sup>3</sup>)</b>	0.07	0,27	0,12	0.09	0,21
<b>valore massimo giornaliero (granuli di toner/m<sup>3</sup>)</b>	2.09	16,52	2,24	4.53	8,28
<b>giorni di presenza</b>	62	211	142	80	53
<b>Giorni di studio</b>	491	518	518	498	518

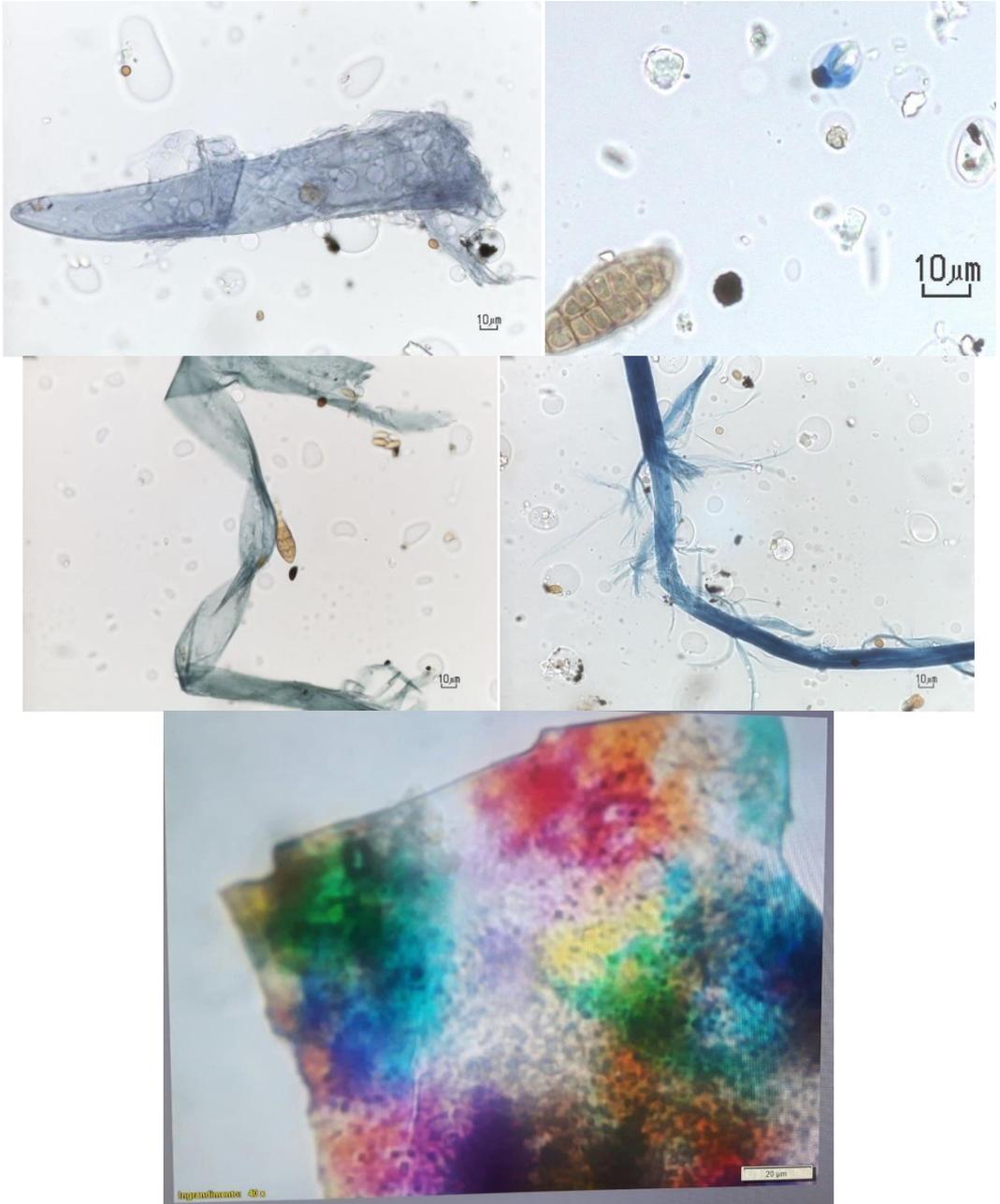


Figura 14.5.9. Frammenti di microplastiche rinvenuti in preparati di campionamento aerobiologico

## Discussione

E' stata accertata la presenza di granuli di toner colorato in aria ambiente ad altezze superiori a 15 metri dal suolo. L'indagine condotta in 4 città del Friuli Venezia Giulia e una dell'Umbria mostrano che le quantità presenti sono dell'ordine di meno di un granulo al metro cubo al giorno (Figure 14.5.4,5,6,7,8 e Tabella 14.5.2).

E' quindi dimostrato che la polvere di toner è presente in aria ambiente. La frazione quantificabile è solo quella colorata; la componente nera è stata notata in alcuni casi come probabile, ma non è possibile valutarla con precisione, per la somiglianza con altre componenti di particolato da combustione.

Questi dati fanno supporre che a livello del suolo la concentrazione sia maggiore, almeno in prossimità di sorgenti quali uffici, copisterie, negozi, eliotecniche, e soprattutto che esistano aree confinate all'interno di edifici dove la concentrazione di polvere di toner sia molto significativa per la presenza di stampanti non adeguatamente isolate e/o di toner esauriti non correttamente stoccati prima dello smaltimento.

In letteratura si trovano molti studi riguardanti l'impatto della polvere di toner sulla salute, condotti esclusivamente all'interno di aree confinate; non si trovano studi sulla presenza di questa polvere all'aria aperta. La maggior parte di questi lavori tende ad escludere che il toner sia causa di gravi danni alla salute,

pur avendo le particelle di inchiostro dimensioni compatibili con le PM<sub>10</sub>. La tecnica di microscopia ottica impiegata, applicando una magnificenza di 200, 250 o 400 ingrandimenti (a seconda del microscopio e dell'obiettivo utilizzato) consente di riconoscere particelle che ricadono nel campo della frazione denominata "coarse" (1-10 µm), essendo il limite inferiore di rilevabilità strumentale pari a circa 1 µm. Le scarse informazioni sulla fabbricazione e sulla composizione di queste polveri lasciano ancora aperto il problema degli effetti sulla salute umana.

Per quanto riguarda la presenza di microplastiche nell'aria ambiente, anche questo materiale è stato riscontrato nei vetrini analizzati (Figura 14.5.9). Le dimensioni, del tutto comparabili con quelle dei frammenti rinvenuti in campioni di acqua marina da parte dei colleghi che svolgono analisi di routine nell'ambito dei piani di monitoraggio stabiliti dalla Marine Strategy, denotano che le microplastiche riconosciute sospese nell'aria ambiente generalmente rientrano in classi dimensionali nettamente superiori a quelle tipiche del PM<sub>10</sub> e, in generale, alle particelle sia biologiche che non biologiche rinvenute nei preparati per la microscopia. La comparabilità di tali frammenti con quelli rinvenuti in campioni di acqua marina è in linea con gli attuali modelli concettuali che suggeriscono una interrelazione tra le microplastiche presenti nelle varie matrici ambientali, aria, acqua, suolo (Figura 14.5.10).

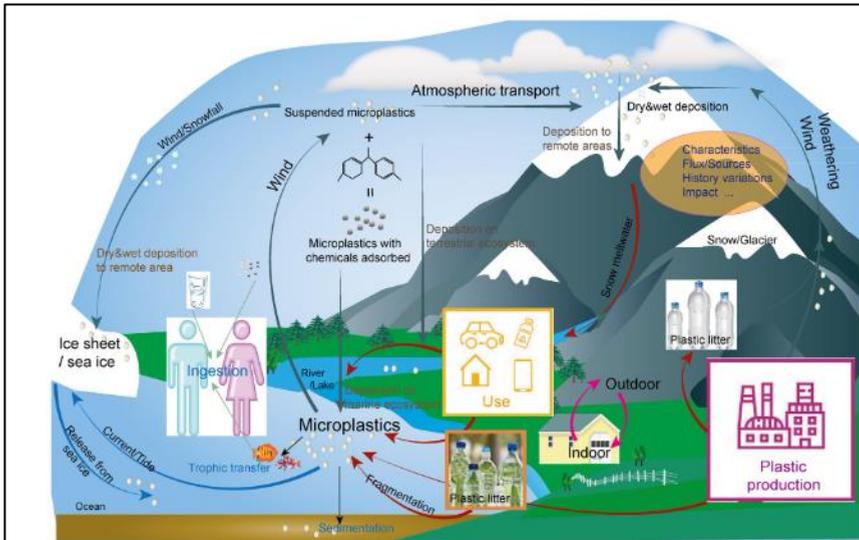


Figura 14.5.10. Modello concettuale del ciclo delle microplastiche atmosferiche nell'ambiente (Zhang Y et al., 2020)

Le microfibre sono inalabili, cioè si depositano lungo il tratto superiore delle vie respiratorie (naso e gola), ma sono anche respirabili e cioè penetrano nelle zone più profonde delle vie aeree.

Le fibre inalate vengono eliminate attraverso il movimento muco-ciliare e finiscono per essere deglutite. Nei soggetti dove la clearance muco-ciliare è scarsa, esse tendono a depositarsi anche nelle vie aeree superiori.

Tale rischio è più rilevante per le maestranze addette alla fabbricazione di tessuti contenenti percentuali di materiali plastici. Inoltre le plastiche, comprese le microfibre volatili, sono costituite da significative percentuali di additivi tra quali metalli, ritardanti di fiamma e coloranti, che possono essere assorbite dalle cellule dell'epitelio.

## Conclusioni

Il metodo consolidato di rilevamento e conta di particelle biologiche quali pollini e spore fungine si è dimostrato idoneo per rilevare e quantificare anche altre particelle non biologiche disperse in aria, che possono essere riconosciute al microscopio ottico in base alle caratteristiche dimensionali ed ottiche. In questo modo è stato possibile rilevare la presenza e la concentrazione in aria ambiente di granuli di toner colorato in tutte e 5 le città italiane considerate nel presente studio.

Analogamente, è stato possibile rinvenire nei medesimi campioni la presenza di microplastiche, in linea con gli studi che attestano una recente ma crescente attenzione rivolta verso questo tipo di inquinante di varie matrici ambientali.

**Bibliografia**

M.Koller et al., (2015). Stampanti laser, fotocopiatrici e toner: pericoli per la salute, SUVA.

POLLnet - Linee guida per il monitoraggio aerobiologico, (2017). Manuali e linee guida 151/2017, ISPRA. ISBN: 978-88-448-0820-4

Zhang Y., Kang S., Allen S., Gao T., Sillanpää M., 2020c. Atmospheric microplastics: A review on current status and perspectives. *Earth-Science Reviews*, Volume 203, April 2020, 103118.

Gasperi J., Wright S.L. , Dris R., Collard F., Mandin C., Guerrouache M., Langlois V., Kelly F.J. , Tassin B. Microplastics in air: Are we breathing it in? *Current Opinion in Environmental Science & Health* 1, 2018 02, 1-5

Plastic dust is blowing into U.S. national parks—more than 1000 tons each year - By Erik Stokstad Jun. 11, 2020 , 5:30 PM

Janice Brahney, Margaret Hallerud, Eric Heim, Maura Hahnenberger, Suja Sukumaran, Plastic rain in protected areas of the United States - *Science* 12 Jun 2020: Vol. 368, Issue 6496, pp. 1257-1260 DOI: 10.1126/science.aaz5819