

UN MODELLO IBRIDO EULERIANO-LAGRANGIANO PER LA QUALITÀ DELL'ARIA E LA STIMA DEL CONTRIBUTO DELLE SORGENTI IN AMBITO URBANO: CASO STUDIO PER IL CENTRO DI MILANO

Giovanni Lonati^{1,*}, Nicola Pepe^{1,2}, Guido Pirovano², Alessandra Balzarini², Anna Toppetti², Giuseppe Maurizio Riva²

¹ Dipartimento di Ingegneria Civile e Ambientale, Politecnico di Milano, Milano.

² RSE Spa, Milano.

Sommario – Il lavoro discute le potenzialità applicative di un sistema modellistico ibrido, sviluppato combinando un modello di tipo euleriano, applicato alla scala regionale, con un modello lagrangiano, applicato alla scala locale, tanto per la stima dei livelli di concentrazione di inquinanti atmosferici in area urbana quanto del contributo delle diverse sorgenti di emissioni a tali livelli. Nel dettaglio il sistema è costituito dal modello euleriano CAMx e dal modello lagrangiano AUSTAL2000, insieme con i modelli WRF e TALdia per la predisposizione dei relativi dati meteorologici in ingresso, e dal modello SMOKE, per l'elaborazione e la predisposizione dei dati emissivi a partire dagli inventari delle emissioni. L'applicazione presentata si riferisce ad un caso di studio relativo al centro di Milano per le concentrazioni atmosferiche di materiale particolato fine (PM_{2.5}) e di biossido di azoto (NO₂), inquinanti che determinano le principali criticità per il rispetto dei limiti di qualità dell'aria. I risultati mostrano una buona capacità di ricostruzione dei campi di concentrazione ad elevata risoluzione spaziale in ambito urbano, coerentemente con la struttura dell'ambiente costruito che influenza tanto la distribuzione spaziale delle sorgenti, nella fattispecie la struttura del reticolo stradale, quanto le modalità di dispersione delle loro emissioni. Il confronto con i dati osservati mostra tuttavia delle carenze nella corretta ricostruzione dei livelli di concentrazione, soprattutto nel caso delle polveri, non tanto nei valori medi annui quanto piuttosto negli andamenti giornalieri, in particolare nel periodo invernale, quando la componente meteorologica del sistema fatica a riprodurre la persistenza di condizioni di stabilità atmosferica che favoriscono l'accumulo degli inquinanti.

Parole chiave: qualità dell'aria, modelli, aree urbane, contributo sorgenti, PM_{2.5}, NO₂.

A HYBRID EULERIAN-LAGRANGIAN MODEL FOR AIR QUALITY AND SOURCE APPORTIONMENT IN URBAN AREAS: CASE STUDY FOR MILAN CITY CENTRE

Abstract – The work discusses the applicative potential of a hybrid modeling system, developed by combining an Eulerian model, applied to the regional scale, with a Lagrangian model, applied to the local scale, for the

assessment of the concentration levels of atmospheric pollutants in urban areas, as well as of the contribution of the different emission sources to these levels. In detail, the system consists of the Eulerian model CAMx and the Lagrangian model AUSTAL2000, together with the WRF and TALdia meteorological models, and of the SMOKE model for the processing and preparation of emission input data, starting from emissions inventories. The application presented refers to a case study for the center of Milan, focusing on fine particulate matter (PM_{2.5}) and nitrogen dioxide (NO₂), pollutants that determine the main critical issues for compliance with the air quality limits. The results show a good ability in reconstructing concentration fields with high spatial resolution in the urban environment, consistently with the structure of the built environment, which influences both the spatial distribution of the sources, in this case the structure of the road network, as well as the dispersion of their emissions. However, the comparison with the observed data shows limitations in the correct reconstruction of the concentration levels, especially in the case of PM. These limitations do not affect so much the annual average values but rather the daily trends, particularly in the winter period, when the meteorological component of the system hardly reproduces the persistence of atmospheric stability conditions that favor the accumulation of atmospheric pollutants.

Keywords: air quality, models, urban areas, source apportionment, PM_{2.5}, NO₂.

Ricevuto il 19-11-2020. Modifiche sostanziali richieste il 17-12-2020. Accettazione il 29-12-2020.

1. INTRODUZIONE

I modelli di dispersione atmosferica sono strumenti utili per valutare la qualità dell'aria e il contributo delle fonti di emissione ai livelli di concentrazione di inquinanti nelle aree urbane (Ciarelli et al., 2017; Squizzato et al., 2017; Pirovano et al., 2015). La direttiva 2008/50/CE sulla qualità dell'aria (Unione Europea, 2008) definisce una serie di situazioni, per quanto riguarda il rispetto dei limiti di qualità dell'aria, in cui i modelli possono essere applicati per la valutazione in sostituzione o in combinazione con misurazioni fisse. Infatti, le reti di monitoraggio della qualità dell'aria

* Per contatti: P.zza L. da Vinci 32, 20133 Milano. Tel. 02 23996430; fax 02 23996499.
E-mail: giovanni.lonati@polimi.it

forniscono dati accurati di concentrazione nei siti di misurazione che, tuttavia, per il loro numero limitato potrebbero non riuscire a valutare pienamente l'effettiva qualità dell'aria nell'intera area urbana, anche se localizzati in contesti presumibilmente rappresentativi dei diversi microambienti urbani (ad esempio: siti di fondo urbano, siti esposti al traffico urbano, aree residenziali) (Duyzer et al., 2015). In particolare, integrando i dati sulla qualità dell'aria nei siti di misurazione fissi, la modellistica può essere utilizzata in modo redditizio per ottenere informazioni ad elevata risoluzione spaziale, soprattutto nel caso di studi di tipo epidemiologico (Zou et al., 2019). Inoltre, i risultati delle simulazioni modellistiche possono anche essere utilizzati per effettuare stime del contributo delle sorgenti, il cosiddetto *source apportionment*, solitamente sviluppate con modelli al recettore basati su tecniche statistiche come il *Chemical Mass Balance* (CMB) e la *Positive Matrix Factorization* (PMF) (Hopke, 2016; Belis et al., 2014), specialmente nel caso del materiale particolato.

In generale, l'affidabilità degli approcci modellistici dipende fortemente dall'accuratezza degli inventari delle emissioni, a sua volta dipendente dai fattori di emissione, dai dati di attività e dalla risoluzione spaziale (López-Aparicio et al., 2017; van der Gon et al., 2015; Guevara et al., 2014). Inoltre, essi richiedono ampie basi di dati meteorologici, derivabili da modelli meteorologici sia diagnostici sia prognostici, necessari per una corretta ricostruzione del movimento delle masse d'aria da cui dipendono il trasporto e la diffusione degli inquinanti (Bessagnet et al., 2016; Pernigotti et al., 2012). Nello specifico, la modellistica della qualità dell'aria nelle aree urbane incontra una serie di ulteriori criticità determinate da diversi aspetti:

- gli inquinanti di interesse possono essere di natura secondaria, come O_3 e, parzialmente, NO_2 e particolato fine (PM), richiedendo pertanto l'utilizzo di modelli in grado di trattare le trasformazioni chimico fisiche che portano alla loro formazione a partire dai precursori;
- nel caso di molti inquinanti di interesse, in particolare per quelli di natura secondaria, i livelli di concentrazione non sono solo dovuti alle emissioni locali, ma sono anche determinati dalle emissioni nei dintorni o, in alcune circostanze, nell'intera regione dell'area urbana. In letteratura alcuni approcci descrivono le concentrazioni di inquinanti atmosferici nelle aree urbane

come il risultato di tre contributi sovrapposti: un background regionale, che rappresenta il livello di base nei dintorni dell'area urbana, un background urbano, che rappresenta l'incremento di concentrazione dovuto all'emissione del complesso dell'area urbana stessa ed il contributo su piccola scala spaziale delle fonti di emissione locali (Lenschow et al., 2001);

- la distribuzione spaziale delle due principali fonti di emissione nelle aree urbane, traffico stradale e riscaldamento degli ambienti, dipende dalla struttura urbana dell'ambiente costruito che, a sua volta, può influire negativamente sulla dispersione di tali emissioni locali con modificazioni locali delle condizioni del vento indotte dagli edifici e con strutture di canyon urbani che favoriscono l'accumulo di inquinanti.

I modelli euleriani di chimica e trasporto (*Chemical and Transport models* – CTM), applicati per la modellistica della qualità dell'aria su scala regionale, possono far fronte ai primi due aspetti, stimando i livelli di concentrazione di fondo regionale e urbano per gli inquinanti primari e secondari. Tuttavia, a causa delle dimensioni relativamente ampie delle celle della griglia di calcolo, al minimo di 1-2 km ma solitamente dell'ordine di 4-5 km, che si ripercuotono sia sulla distribuzione spaziale delle sorgenti, assunte uniformemente distribuite nelle celle, sia sui valori di concentrazione stimati come valori medi per ogni singola cella, questi modelli non sono in grado di riprodurre adeguatamente il contributo locale delle fonti urbane.

Al contrario, i modelli di dispersione lagrangiana (*Lagrangian Models* – LM) fanno debitamente fronte al terzo aspetto e possono essere utilizzati con profitto per la valutazione del contributo delle fonti locali, specialmente quando è richiesta una modellazione ad alta risoluzione spaziale su scale spaziali relativamente piccole. Infatti, i LM fanno affidamento su una spazializzazione più realistica delle emissioni urbane, distribuite in modo non uniforme risentendo della conformazione della rete stradale (per le emissioni del traffico) e della struttura dell'ambiente costruito (per le emissioni da riscaldamento degli ambienti), e possono tenere conto delle modifiche del campo di vento indotte dagli edifici. Tuttavia, i LM non riescono ad affrontare in maniera opportuna i primi due aspetti sopra citati: salvo rare eccezioni (Zanini et al., 2002), questi modelli non includono moduli completi di chimica di gas e aerosol per la valutazione degli inquinanti secondari e, in generale, non pos-

sono essere utilizzati per la modellazione su scala regionale ad alta risoluzione a causa del carico computazionale che ne deriverebbe.

Per affrontare il problema sono stati proposti e sviluppati approcci “ibridi” che integrano i risultati dei CTM con altri modelli basati su approcci geostatistici che combinano informazioni sull’uso del suolo (*Land Use Regression models* – LUR) con i risultati della modellizzazione euleriana per concentrazioni a lungo termine di NO₂, O₃ e materiale particolato (Cowie et al., 2019; He et al., 2018; Henning et al., 2016; Wang et al., 2016; Akita et al., 2014). In questo modo è possibile riprodurre meglio la variabilità delle concentrazioni all’interno della celle di calcolo, in particolare per quelle corrispondenti ad aree urbane. In questo lavoro, si presenta invece un modello ibrido di tipo deterministico, sviluppato combinando un modello di tipo euleriano, applicato alla scala regionale, con un modello lagrangiano, applicato alla scala locale, per la stima tanto dei livelli di concentrazione in area urbana quanto del contributo delle diverse sorgenti di emissioni a tali livelli. L’applicazione del modello si riferisce ad un caso di studio relativo al centro di Milano, con riferimento alle concentrazioni atmosferiche di materiale particolato fine (PM_{2.5}) e di ossidi di azoto, inquinanti che determinano le principali criticità per il rispetto dei limiti di qualità dell’aria.

2. MATERIALI E METODI

2.1 Struttura del modello ibrido

Il modello ibrido sviluppato è costituito da tre componenti principali, il modello meteorologico WRF (*Weather Research and Forecasting meteorological model* – WRF v3.4.1; (Skamarock et al., 2008)), il modello euleriano CAMx (*Comprehensive Air Quality Model* – CAMx v6.30; (ENVIRON, 2016)), il modello lagrangiano AUSTAL2000 (AUSTAL2000 v2.6.9; (Janicke consulting 2014)), a cui si aggiungono il modello meteorologico TALdia, per la predisposizione dei dati in ingresso ad AUSTAL2000, ed il modello SMOKE (*Sparse Matrix Operator for Kernel Emissions model* – SMOKE v3.5; (UNC, 2013)) per l’elaborazione e la predisposizione dei dati emissivi a partire dagli inventari delle emissioni. (Figura 1).

Per il caso di studio la ricostruzione dei dati meteorologici con il modello WRF è stata effettuata per quattro domini annidati (Europa, Italia, pianura padana, area metropolitana di Milano), di riso-

luzione spaziale crescente (45 km, 15 km, 5 km, e 1.7 km). Le simulazioni con il modello CAMx condotte per i due domini più interni (pianura padana, area metropolitana di Milano) hanno adottato la medesima risoluzione spaziale del modello meteorologico. La simulazione con il modello AUSTAL2000 ha riguardato una cella (1.7x1.7 km²) del dominio dell’area metropolitana di Milano, localizzata nel centro della città, con risoluzione spaziale di 20 m. Tale cella, che comprende Piazza del Duomo e le sue immediate vicinanze, è caratterizzata da una articolata struttura urbanistica, con aree densamente edificate ed un fitto reticolo stradale. In pratica, il modello ibrido stima distintamente una serie di contributi additivi relativi alle sorgenti presenti in determinate regioni emissive del dominio di calcolo, nella fattispecie di questa applicazione la cella di Piazza del Duomo (LOCAL), il comune di Milano (MIL), la provincia di Milano (PRO), la Lombardia (LOM), la pianura padana (POV), e determina quindi i livelli complessivi di concentrazione, considerando anche i contributi delle sorgenti situate al di fuori della pianura padana (trasporto *long range*). Nelle valutazioni condotte attraverso il modello CAMx, l’additività è garantita dall’algoritmo di *source apportionment*, denominato PSAT (Yarwood et al., 2004) che permette di ripartire i contributi delle diverse fonti sia agli inquinanti primari che secondari, preservando la congruenza con la concentrazione totale e senza alterare il carico complessivo emissivo, come avviene invece con l’approccio cosiddetto “*brute force*”, che consiste nel rimuovere la sorgente d’interesse e valutarne il contributo per differenza (Mircea et al., 2020). Nel caso del modello lagrangiano vengono valutati solo contributi di origine primaria e quindi additivi in virtù del loro comportamento lineare (Thunis et al., 2019). Inoltre, per evitare doppi conteggi, ciascuna regione emissiva considera le sorgenti situate entro i suoi confini ad eccezione di quelle situate nelle regioni annidate al suo interno. In particolare, l’area LOCAL viene tracciata sia dal modello CAMx sia dal modello lagrangiano. In questo modo il modello CAMx è in grado di valutare il contributo di tutte le regioni emissive senza introdurre alterazioni nel carico complessivo. Successivamente, nella logica dell’approccio ibrido, il contributo “LOCAL” calcolato dal modello euleriano viene sostituito dal corrispondente contributo valutato dal modello lagrangiano. Potendo tenere traccia delle aree di origine dei contributi stimati e delle sorgenti che li generano, il modello

consente di sviluppare stime di *source apportionment* che, oltre ad individuare la fonte, come fanno i modelli al recettore, forniscono anche indicazioni di natura territoriale sulla localizzazione di tali fonti.

I dati di emissione in ingresso ai modelli sono stati derivati dai dati di inventario a tre diversi livelli di risoluzione spaziale: dati del programma europeo di monitoraggio e valutazione (EMEP, <https://www.ceip.at/webdab-emission-database>) disponibili su una griglia regolare di 50x50 km²; dati dell'inventario nazionale italiano ISPRA (<http://www.sinanet.isprambiente.it/it/sia-ispra/inventaria/disaggregazione-dellinventario-nazionale-2015/view>) che fornisce una disaggregazione a livello provinciale; dati degli inventari regionali basati sulla metodologia INEMAR (ARPA Lombardia, 2015) per le regioni Lombardia, Veneto e Piemonte, che forniscono dati dettagliati sulle emissioni a livello di singolo comune. Le simulazioni, sviluppate per l'anno di riferimento 2010, hanno riguardato le emissioni di ossidi di azoto e di materiale particolato PM_{2.5}. Ulteriori dettagli sull'approccio modellistico ibrido e sulle configurazioni dei modelli WRF, CAMx e AUSTAL2000, sui dati meteorologici ed emissivi, e sugli schemi chimici adottati, sono riportati in Pepe et al., 2016, insieme con la validazione del modello per l'anno solare 2010 attraverso il confronto tra i risultati del modello e le misurazioni presso le stazioni meteorologiche e di qualità dell'aria.

3. RISULTATI

3.1. Stima delle concentrazioni

Le modalità di esecuzione della simulazione con la componente euleriana del modello ibrido portano alla stima di contributi ai livelli di concentrazione generati dalle regioni emissive inizialmente definite. A titolo di esempio, nella Figura 2 (a pagina seguente) si riportano i valori di tali contributi alla concentrazione media annua di PM_{2.5} per le quattro regioni POV, LOM, PRO e MIL. Per la cella dell'area di studio, che coincide con la regione emissiva LOCAL, i quattro contributi così stimati ed il trasporto *long range* determinano il livello di fondo, complessivamente pari a 16,9 µg m⁻³ come media annuale, a cui si aggiunge il contributo delle sorgenti locali, stimato attraverso la componente lagrangiana del modello (Figura 3 a pagina seguente).

Come appare evidente dalla Figura 3, il modello AUSTAL2000 ricostruisce la distribuzione spaziale delle concentrazioni rispecchiando la struttura della rete stradale, con valori medi annui generalmente compresi tra 0,5 µg m⁻³ e 4 µg m⁻³. La concentrazione totale stimata nell'area di studio risulta pertanto dell'ordine di 17,5-21 µg m⁻³. Non disponendo di un modulo per le trasformazioni chimiche, il risultato del modello lagrangiano rappresenta il solo PM_{2.5} di tipo primario, ovvero direttamente imputabile alle emissioni della re-

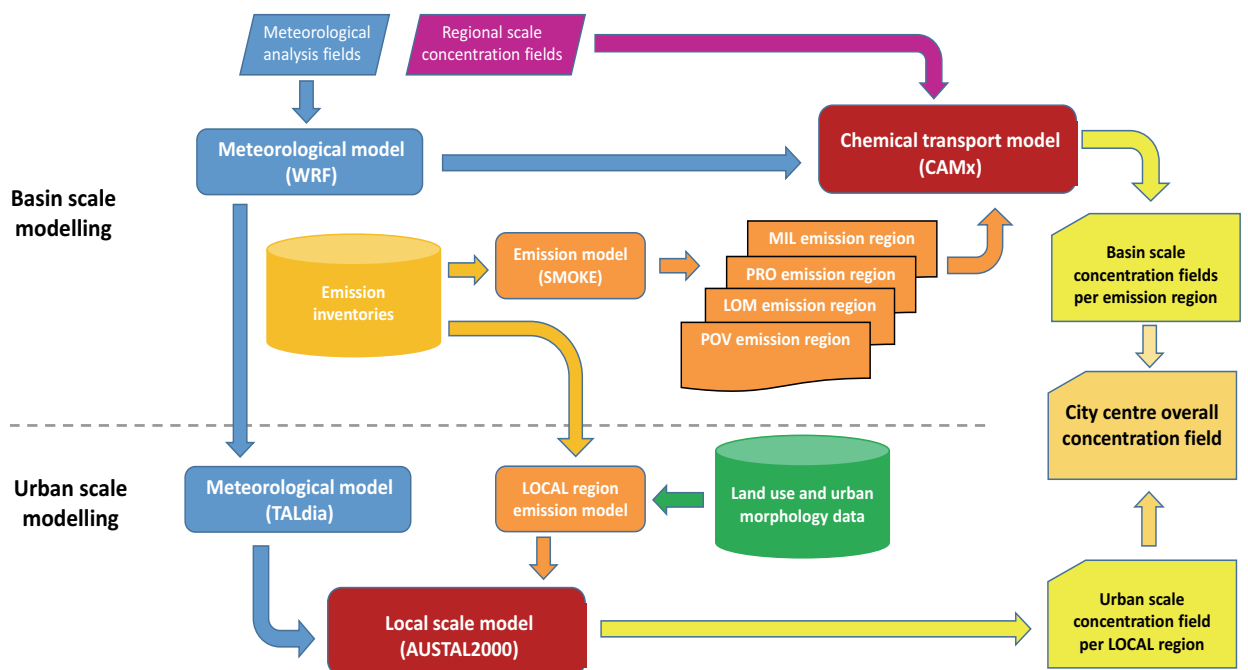


Figura 1 – Struttura del modello ibrido

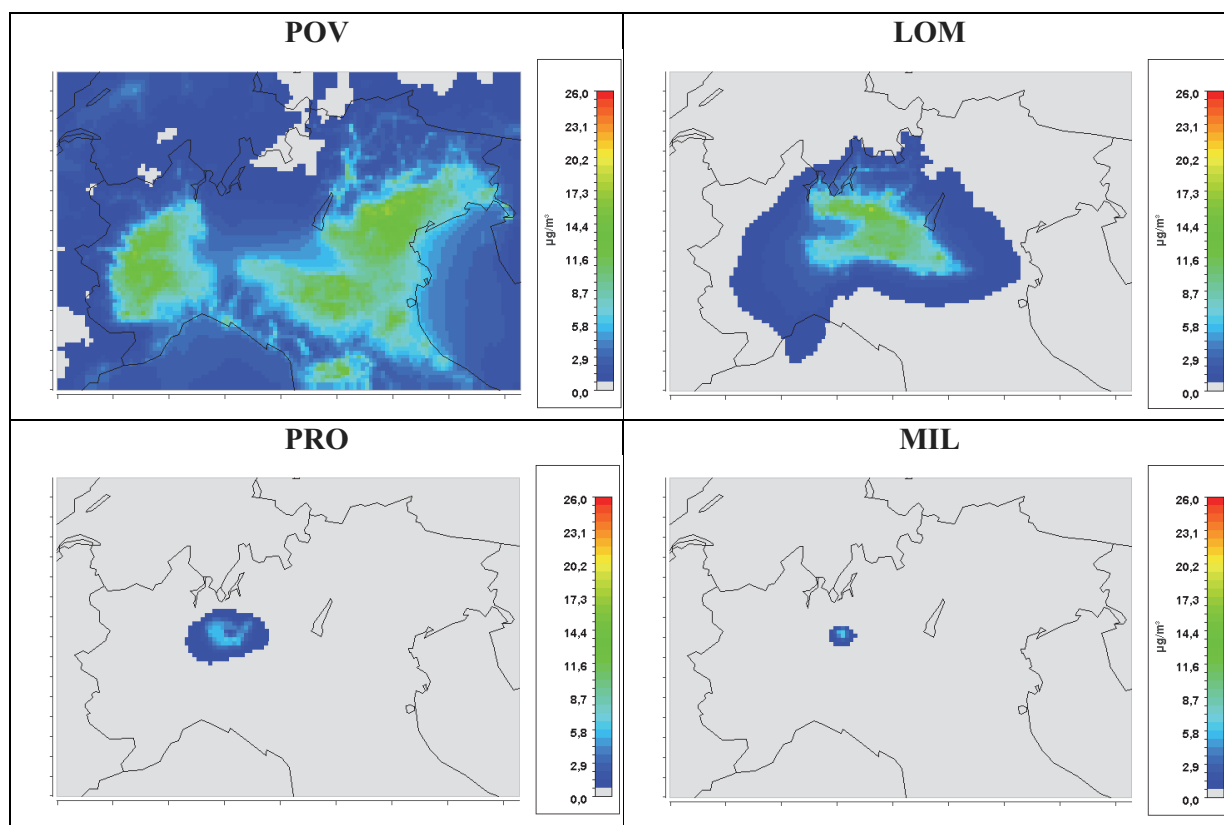


Figura 2 – Contributi alla concentrazione media annuale di PM_{2.5} (µg m⁻³) delle quattro regioni emissive: pianura padana (POV), Lombardia (LOM), provincia di Milano (PRO), comune di Milano (MIL)

gione LOCAL, e trascura la sua componente secondaria formata a partire da precursori gassosi emessi dalla regione stessa; quest'ultima componente, anche secondo indicazioni di letteratura (Amann et al., 2011), potrebbe comunque essere considerata trascurabile. In ogni caso, l'approccio ibrido proposto non trascura il contributo di questa componente secondaria: infatti, l'algoritmo PSAT del modello CAMx permette di tracciare separatamente il contributo al PM_{2.5} secondario dei soli precursori emessi nella regione LOCAL, fornendone una stima come termine medio, ben inferiore a 1 µg m⁻³, uniformemente distribuito, nell'area LOCAL stessa. È opportuno ricordare che la sola simulazione con il modello euleriano terrebbe conto di entrambe le componenti (primaria e secondaria) ma fornirebbe un valore di concentrazione uniforme all'interno di tutta la regione LOCAL, senza così riprodurre gli effetti localizzati, a ristretta scala spaziale, delle emissioni del traffico, in particolare lungo gli assi principali della viabilità, sulla componente primaria del PM_{2.5}. Per l'anno 2010 non sono disponibili misure di PM_{2.5} nell'area di studio con cui validare il risultato della simulazione modellistica. Dati di una stazione di fondo urbano si-

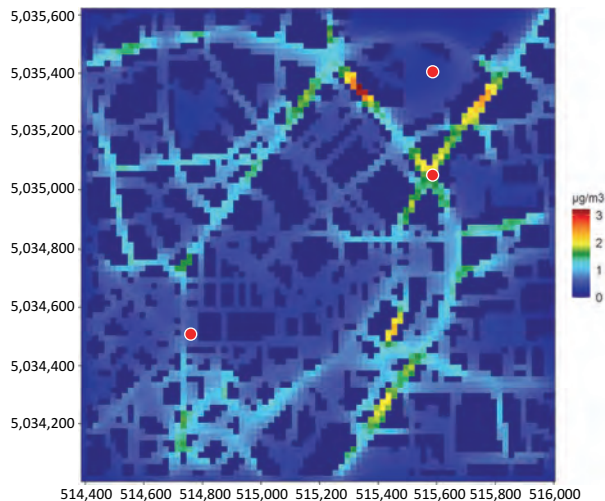


Figura 3 – Distribuzione spaziale nell'area di studio del contributo alla concentrazione media annuale di PM_{2.5} (µg m⁻³) della regione emissiva LOCAL

tuata in posizione più periferica rispetto al centro di Milano indicano una concentrazione media annuale di 25 µg m⁻³, lasciando intendere una potenziale tendenza del modello verso la sottostima dei reali livelli di concentrazione.

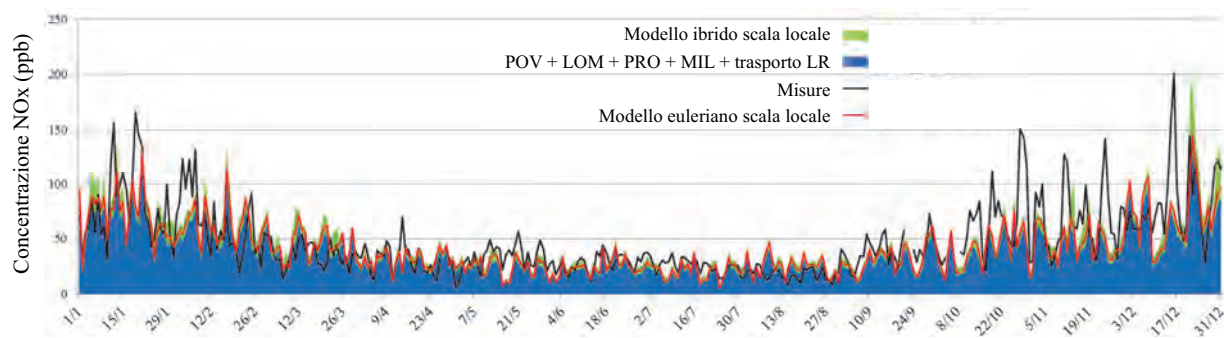


Figura 4 – Andamento temporale delle concentrazioni medie giornaliere di NOx osservate e stimate nella stazione di Milano-Verziere nel 2010.

Per gli NOx sono disponibili i dati misurati in due stazioni di monitoraggio (Milano-Senato e Milano Verziere) situate nell'area di studio del centro di Milano. In Figura 4 sono rappresentati gli andamenti temporali delle concentrazioni medie giornaliere osservate nella stazione di Milano-Verziere insieme con quelli stimati per il livello di fondo (determinato dalle regioni POV, LOM, PRO, MIL e dal trasporto *long range*) e, separatamente, per il contributo dovuto alle sorgenti della regione LOCAL, stimato dal modello euleriano e dal modello lagrangiano. Il primo elemento che emerge dalla Figura 4 è che, nella maggior parte dei casi, la concentrazione totale stimata è principalmente costituita dal contributo di fondo, ovvero è generata dalle fonti situate al di fuori dell'area LOCAL. Ciò conferma che, anche in un'area ad alta emissione come il centro di Milano, la ricostruzione dei livelli di qualità dell'aria necessita di un approccio modellistico in grado di tener conto dell'influenza delle sorgenti in una scala spaziale più ampia del semplice contesto urbano locale. In secondo luogo si nota che anche il modello ibrido non riesce a riprodurre gli episodi acuti di concentrazione tipici del periodo invernale e che, nonostante i risultati presentino un minore scarto medio rispetto alle misure, le sue prestazioni non forniscano miglioramenti notevoli rispetto al solo modello euleriano. Anzi, la correlazione con i valori osservati tende leggermente a diminuire a causa dei picchi di concentrazione prodotti da AUSTAL2000 durante condizioni stabili serali e notturne, evidenziati dall'analisi dell'andamento giornaliero delle concentrazioni orarie. La sovrastima sistematica in tali ore può essere determinata tanto da una non corretta modulazione temporale dell'emissione quanto da una diminuzione troppo forte della turbolenza verticale, soprattutto nel tardo pomeriggio, unita alla diffi-

coltà del modello meteorologico di tenere conto del contributo del riscaldamento antropogenico al bilancio energetico all'interno dell'area urbana. Una discussione più approfondita dei risultati del modello ibrido e della loro comparazione con osservazioni e stime del modello euleriano è riportata in Pepe et al., 2019.

3.2 Stima del contributo delle sorgenti

L'approccio modellistico ibrido consente di sviluppare la stima del contributo delle sorgenti ai livelli di materiale particolato in atmosfera sia tramite stime della composizione chimica nei punti di interesse sia tramite il tracciamento delle emissioni, distinte per settore di attività, a partire dalla localizzazione delle relative sorgenti. Se la prima modalità è analoga a quella dei modelli al recettore, che individuano le sorgenti e ne quantificano il contributo a partire da misure di composizione chimica, la seconda è una peculiarità dei modelli deterministici alla fonte che, in aggiunta, si estende anche agli inquinanti gassosi convenzionali, opportunità invece preclusa ai modelli al recettore. Per la prima modalità i risultati di stima della composizione chimica di PM2.5 e del contributo delle sorgenti sono riassunti nelle Tabelle 1 e 2, in cui sono posti in confronto con risultati di analisi sperimentali e di modelli al recettore. Il confronto ha un valore puramente indicativo, perché le misure si riferiscono ad una campagna sperimentale (Amato et al., 2016) condotta nel 2013 a Milano-Torre Sarcia, sito di fondo urbano a 5 km di distanza in linea d'aria da Piazza del Duomo, area alla quale invece si riferiscono i risultati del modello. La grande differenza (Tabella 1) nella concentrazione annua di PM2.5 ($29,6 \mu\text{g m}^{-3}$ contro $18,8 \mu\text{g m}^{-3}$) non è giustificabile solo dal diverso regime di emissione annuale o dai limiti nella modellazione

Tabella 1 – Composizione chimica del PM_{2.5} osservata (campagna di misura AIRUSE, Amato et al., 2016) e modellata

Specie	Misure		Modello	
	Concentrazione ($\mu\text{g m}^{-3}$)	%	Concentrazione ($\mu\text{g m}^{-3}$)	%
Aerosol organico primario (POA)	4,0	16%	4,6	24%
Aerosol organico secondario (SOA)	8,0	32%	0,5	2%
Carbonio elementare (EC)	1,8	7%	3,4	18%
Solfato	1,8	7%	3,0	16%
Nitrato	5,7	23%	3,2	17%
Ammonio	2,1	8%	2,0	11%
Sale marino	0,6	2%	0,2	1%
Polvere minerale	1,2	5%	0,1	1%
Altre particelle (solo modello)	-		1,8	9%
Totale	25,2	100%	18,8	100%
Massa non determinata (solo misure)	4,4		-	
Totale	29,6			

Tabella 2 – Stima del contributo delle sorgenti al PM_{2.5} con modello al recettore (Amato et al., 2016) e modello deterministico alla fonte

Sorgente	Modello al recettore		Modello alla fonte	
	Concentrazione ($\mu\text{g m}^{-3}$)	%	Concentrazione ($\mu\text{g m}^{-3}$)	%
Emissioni scappamento veicoli (VEX)	1,8	6%	3,6	19%
Emissioni non scappamento veicoli (NEX)	2,5	8%		
Combustione biomassa (BB)	5,1	17%	4,3	23%
Salt (SEA)	0,4	1%	0,2	1%
Sorgenti industriali (IND)	1,3	5%	non tracciato	-
Suolo (MIN)	1,4	5%	non tracciato	-
Nitrato secondario (SNI)	8,9	30%	8,7	46%
Solfato secondario (SSO)	5,6	19%		
Non attribuito/non confrontabile	2,6	9%	2,0	11%
Totale	29,6	100%	18,8	100%

delle condizioni meteorologiche. La sottostima della massa di PM_{2.5}, evidenziata anche da altri studi condotti sull'area in esame (Meroni et al., 2017; Pirovano et al., 2015; Bergstrom et al., 2012), riguarda soprattutto la componente organica (POA + SOA, 5,1 $\mu\text{g m}^{-3}$ contro 12 $\mu\text{g m}^{-3}$) e sottolinea in modo particolare la carenza nella ricostruzione dell'aerosol organico secondario, quasi trascurabile per il modello (0,5 $\mu\text{g m}^{-3}$ contro 8 $\mu\text{g m}^{-3}$) che invece fornisce un rilevante contributo alle concentrazioni di PM a Milano e nella regione padana (Ghermandi et al., 2020; Veratti et al., 2020; Pietrogrande et al., 2016; Sandrini et al., 2014; Perro-

ne et al., 2012; Gilardoni et al., 2011; Lonati et al., 2007). Per contro, il modello tende a sovrastimare la componente organica primaria ed il carbonio elementare, presentando invece un buon accordo per la componente inorganica secondaria nel suo complesso (solfato, nitrato, ammonio) tanto in termini assoluti quanto relativi.

Il confronto in termini di sorgenti (Tabella 2) considera le 7 sorgenti individuate dal modello a recettore PMF, comparandone i contributi alla massa di PM_{2.5} con i corrispondenti valori ricostruiti sommando le singole componenti del PM_{2.5} generate dalle diverse sorgenti; i risultati del model-

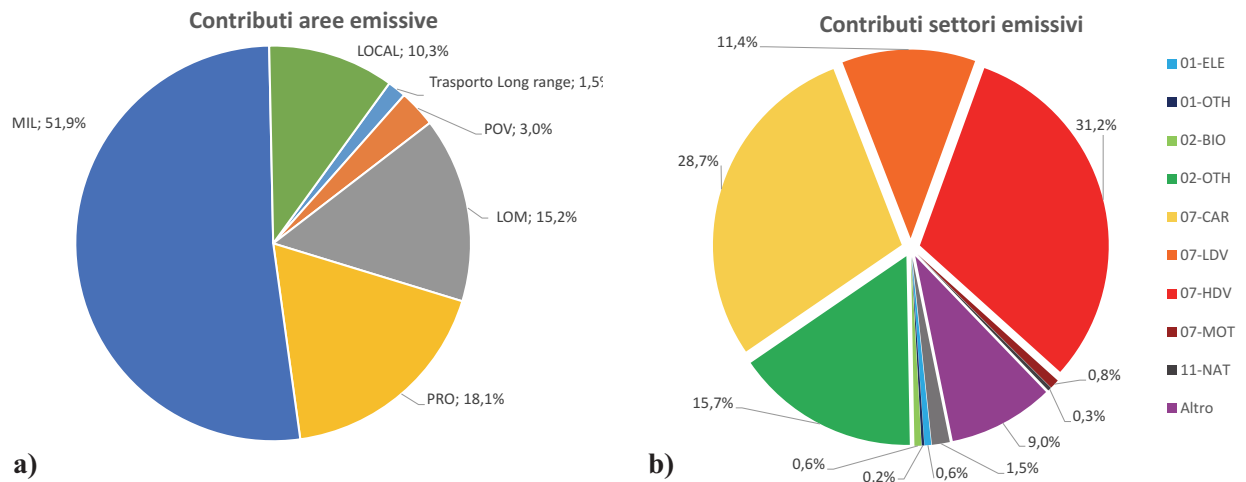


Figura 5 – Contributi percentuali stimati delle aree emissive (a) e delle sorgenti (macrosettori/settori SNAP) alla concentrazione media annua di NO_2 nel recettore in Piazza del Duomo

lo alla fonte sono infatti costituiti dai valori di concentrazione per ciascuna specie e ciascuna tipologia di sorgente di emissione considerata. Nonostante la differenza negli approcci modellistici, nell'anno di riferimento (col conseguente diverso effetto degli eventi meteorologici) e nella posizione del recettore (rispettivamente Torre Sarca e Piazza del Duomo), i risultati del confronto dei contributi delle sorgenti sono abbastanza incoraggianti, soprattutto per le principali fonti primarie in ambito urbano. Il traffico è responsabile di circa il 20% del $\text{PM}_{2.5}$, ovvero circa $4 \mu\text{g m}^{-3}$ ($4,3 \mu\text{g m}^{-3}$ contro $3,6 \mu\text{g m}^{-3}$); la combustione della biomassa di circa il 25%, con una concentrazione media di $4,6 \mu\text{g m}^{-3}$ ($5,1 \mu\text{g m}^{-3}$ contro $4,3 \mu\text{g m}^{-3}$). In entrambi i casi il modello deterministico fornisce tuttavia valori di concentrazione inferiori di circa il 20%. La seconda modalità di stima del contributo delle sorgenti, facendo specifico riferimento al macrosette/settore emissivo ed alla localizzazione delle sorgenti in termini di aree emissive fornisce una informazione non ottenibile con i modelli al recettore e che può pertanto essere utilizzata a complemento delle informazioni fornite da quest'ultimo approccio. Inoltre, come mostrato nella Figura 5 con riferimento all' NO_2 per un recettore situato in Piazza del Duomo, questa modalità consente di stimare il contributo delle sorgenti anche per inquinanti gassosi convenzionali.

Nello specifico, le sorgenti di fondo urbano (MIL+PRO) sono complessivamente responsabili di circa il 70% della concentrazione di NO_2 e prevalgono notevolmente sulle sorgenti di fondo regionali e dal trasporto *long range* (LOM+POV+trasporto *long range*, circa 20%) e

sulle sorgenti locali in prossimità del punto recettore (LOCAL, 10%). Per quanto piccolo in termini relativi, quest'ultimo contributo, visto il numero limitato di sorgenti in quest'area rispetto alle regioni di emissione circostanti, indica che le sorgenti locali hanno comunque un ruolo apprezzabile sulla concentrazione di NO_2 nel punto di recettore e nelle aree urbane in generale. L'insieme delle sorgenti che appartengono alle categorie trasporto su strada (72%), combustione residenziale e commerciale (17%) e impianti industriali (9%) determinano il 98% della concentrazione di NO_2 , mentre le fonti naturali e il trasporto *long range* sono praticamente trascurabili (Figura 5b). Le diverse tipologie di veicoli del trasporto stradale contribuiscono nella misura del 31% per i veicoli pesanti, del 29% per le autovetture, dell'11% per i veicoli leggeri, e solo dell'1% per ciclomotori e motocicli. Il contributo della combustione residenziale e commerciale deriva quasi totalmente dai combustibili fossili (16%). La Figura 6, ottenuta intersecando i risultati ottenuti per regioni emissive e categorie di sorgenti, mostra chiaramente che il traffico veicolare nel comune di Milano è la principale fonte di NO_2 nel punto recettore considerato, contribuendo per quasi il 40% della concentrazione totale di NO_2 , seguito dal traffico associato alle regioni PRO e LOM, rispettivamente con quote del 13% e del 10%.

In maniera del tutto analoga alla Figura 6, stime congiunte del contributo delle sorgenti e delle aree emissive per il $\text{PM}_{2.5}$ sono riassunte nella Figura 7, dove, per meglio evidenziare le capacità di migliore rappresentatività spaziale della componente la-

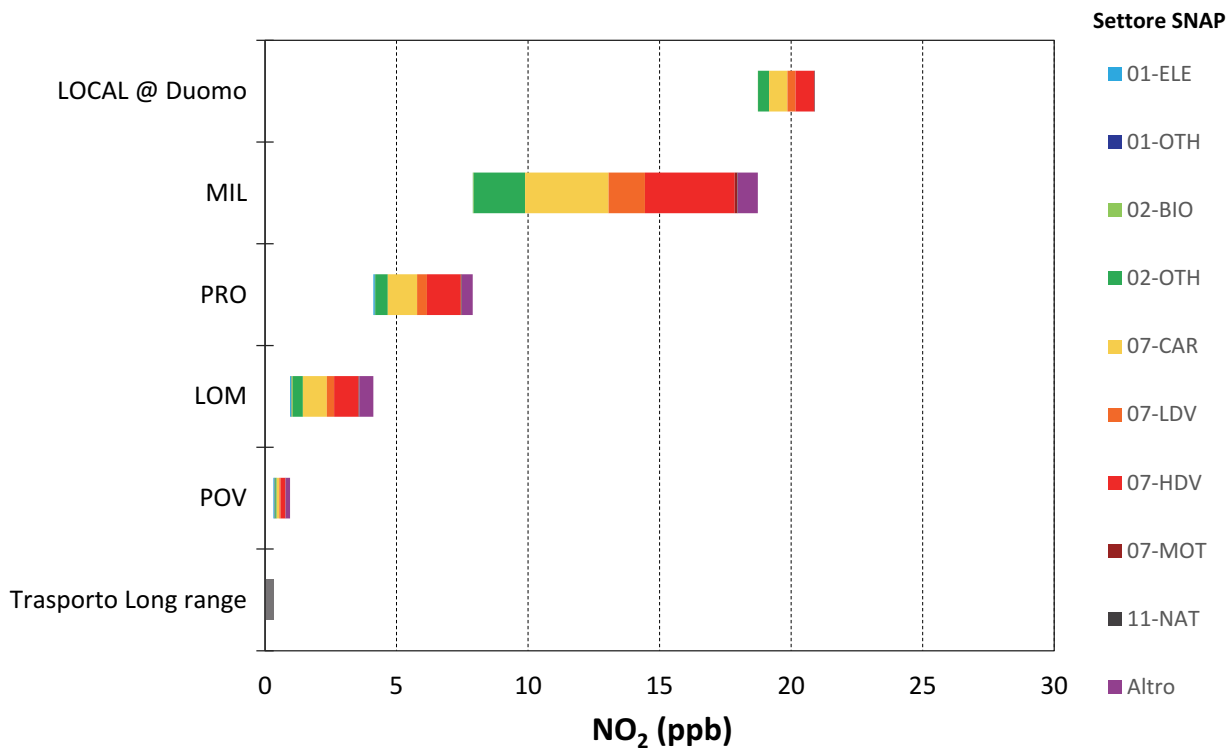


Figura 6 – Contributi stimati delle sorgenti (macrosettori/settori SNAP) e delle aree emissive alla concentrazione media annua di NO₂ nel recettore in Piazza del Duomo

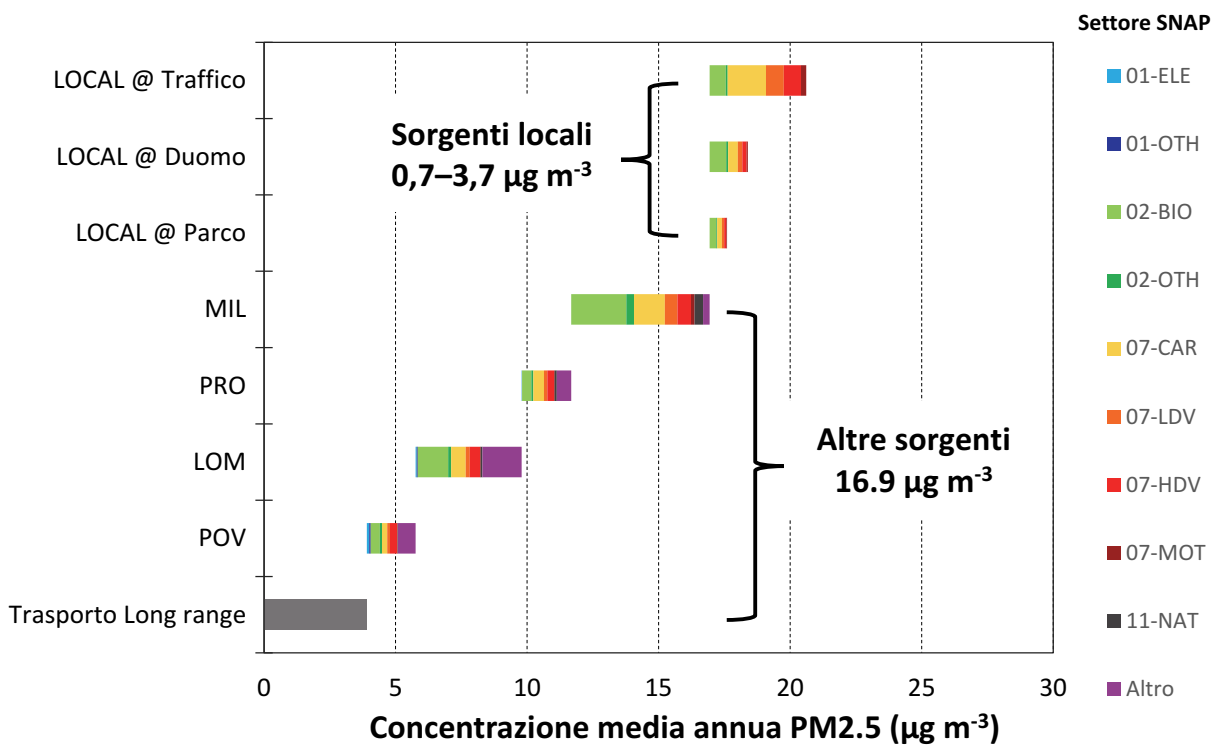


Figura 7 – Contributi stimati delle sorgenti (macrosettori/settori SNAP) e delle aree emissive alla concentrazione media annua di PM_{2.5} nei recettori dell'area di studio

grangiana del modello ibrido, oltre al recettore di Piazza del Duomo sono contemplati anche altri due recettori nell'area di studio, situati in corrispondenza di un parco cittadino (Parco) ed un incrocio stradale sulla circonvallazione interna (Traffico). La rappresentazione grafica evidenzia chiaramente la capacità del modello di differenziare le stime nei recettori dell'area di studio in relazione alla loro esposizione alle emissioni delle sorgenti dell'area locale, pressoché esclusivamente costituite da combustione non industriale (macrosettore SNAP 02) e traffico stradale (macrosettore 07). Infatti, al livello di fondo regionale/urbano di circa $17 \mu\text{g m}^{-3}$ si aggiunge un contributo delle sorgenti locali compreso tra $0,7 \mu\text{g m}^{-3}$, per il recettore meno esposto, e $3,7 \mu\text{g m}^{-3}$, stimato per il recettore più direttamente esposto alle emissioni del traffico. Appare altrettanto evidente il ruolo del traffico nel determinare i diversi livelli di concentrazione nei recettori considerati. È interessante notare come i singoli contributi delle diverse regioni emissive siano diversi rispetto al caso dell' NO_2 : infatti, le sorgenti di fondo regionale (LOM+POV+trasporto *long range*) contribuiscono per circa il 50% (20% nel caso dell' NO_2), quelle di fondo urbano (MIL+PRO) per circa il 40% (70% per l' NO_2), e quelle locali (LOCAL) in misura variabile compresa tra il 5%-18% a seconda del recettore. Differenze si apprezzano anche per quanto riguarda i contributi delle tipologie di sorgenti, che risultano molto più omogenei: su base media annua, il traffico è responsabile di circa il 30%-38%, la combustione non industriale per il 25%-28%, al 90% determinata dalla combustione domestica di biomassa, le emissioni industriali per circa il 15%; un contributo rilevante, dell'ordine del 20%, proviene anche dal trasporto *long range*. Una discussione più dettagliata sul contributo delle aree emissive e delle sorgenti alle concentrazioni di $\text{PM}_{2.5}$, anche su base stagionale, è disponibile in Lonati et al., 2020.

4. CONCLUSIONI

Il modello ibrido ottenuto dalla combinazione di un modello euleriano e di un modello lagrangiano ha dimostrato una buona capacità di ricostruire i campi di concentrazione ad elevata risoluzione spaziale in ambito urbano. Nello specifico, la componente euleriana è in grado di stimare le concentrazioni di fondo regionale e di fondo urbano sia per inquinanti primari sia per quelli secondari, potendo avvalersi di specifici mo-

duli di trasformazione chimico-fisica. La componente lagrangiana valuta invece la dispersione a scala locale degli inquinanti emessi dalle sorgenti dell'area di studio urbana, coerentemente con la struttura dell'ambiente costruito che influenza tanto la distribuzione spaziale delle sorgenti, nella fattispecie la struttura del reticolo stradale, quanto le modalità di dispersione delle loro emissioni. Tuttavia, il confronto con i dati osservati mostra delle carenze nella corretta ricostruzione dei livelli di concentrazione, non tanto nei valori medi annui quanto piuttosto negli andamenti giornalieri, in particolare nel periodo invernale. Il modello, infatti, soprattutto nel caso delle polveri, fatica a riprodurre eventi acuti di concentrazione determinati dalla persistenza di condizioni di stabilità atmosferica che favoriscono l'accumulo degli inquinanti. Le cause di questa sottostima, oltre che ad una intrinseca difficoltà dei modelli nel descrivere i complessi fenomeni di trasporto e trasformazione degli inquinanti, possono anche essere legate ad una imprecisa quantificazione dei regimi emissivi delle sorgenti nell'ambito degli inventari delle emissioni. Si rendono pertanto necessari approfondimenti e studi ulteriori per riconciliare con sempre maggiore accuratezza i risultati delle simulazioni modellistiche con le osservazioni sperimentali.

Il modello ibrido ha mostrato anche la capacità di sviluppare la stima del contributo delle sorgenti con riferimento sia alla tipologia emissiva sia alla loro ubicazione. In particolare, grazie al sistema modellistico ibrido è possibile quantificare il contributo delle regioni emissive che agiscono alle diverse scale spaziali (es. trasporto di lunga distanza, fondo regionale, fondo urbano, scala locale), mettendo inoltre in luce il diverso contributo delle sorgenti locali alla piccola scala urbana (es. aree residenziali rispetto a siti di traffico). Infine grazie al sistema modellistico ibrido è possibile fornire valutazioni su inquinanti d'interesse, ma che non possono essere facilmente esaminati dai modelli a recettore, quali composti gassosi come NO_2 e alcuni componenti secondari del particolato. Il grado di dettaglio di tali stime, del tutto precluso ai tradizionali modelli al recettore, rende particolarmente interessante questa applicazione, con l'obiettivo di sostenere ed estendere spazialmente le informazioni che i modelli al recettore, seppure basati su dati sperimentali dettagliati, non sono in grado di fornire in modo completo ed esaustivo.

5. RIFERIMENTI BIBLIOGRAFICI

- Akita Y., Baldasano J.M., Beelen R., Cirach M., de Hoogh K., Hoek G., Nieuwenhuijsen M., Serre M.L., de Nazelle A., 2014. Large scale air pollution estimation method combining land use regression and chemical transport modeling in a geostatistical framework. *Environ. Sci. Technol.* 48, 4452-4459.
- Amann M., Bertok I., Borcken-Kleefeld J., Cofala J., Heyes C., Höglund-Isaksson L., Klimont Z., Nguyen B., Posch M., Rafaj P., Sandlera R., Schöpp W., Wagner F., Winiwarter W., 2011. Cost-effective control of air quality and greenhouse gases in Europe: modeling and policy applications. *Environ. Modell. Softw.* 26, 1489-1501.
- Amato F., Alastuey A., Karanasiou A., Lucarelli F., Nava S., Calzolari G., Severi M., Becagli S., Gianelle V., Colombi C., Alves C., Custodio D., Nunes T., Cerqueira M., Pio C., Eleftheriadis K., Diapouli E., Reche C., Minguillon M.C., Manousakas M., Maggos T., Vratolis S., Harrison R.M., Querol X., 2016. AIRUSE-LIFE+: a harmonized PM speciation and source apportionment in five southern European cities. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 3289-3309.
- ARPA Lombardia, Settore Monitoraggi Ambientali, 2015. INEMAR, Inventario Emissioni in Atmosfera: Emissioni in Regione Lombardia nell'anno 2012 – revisione pubblica.
- Belis C.A., Larsen B.R., Amato F., El Haddad I., Favez O., Harrison R.M., Hopke P.K., Nava S., Paatero P., Prevot A., Quass U., Vecchi R., Viana M., 2014. European Guide on Air Pollution Source Apportionment with Receptor Models. JRC Reference Report EUR 26080. Luxembourg Publication Office of the European Union, ISBN 978-92-79-32514-4.
- Bergstrom R., van der Gon H.A.C.D., Prevôt A.S.H., Yttri K.E., Simpson D., 2012. Modelling of organic aerosols over Europe (2002-2007) using a volatility basis set (VBS) framework: application of different assumptions regarding the formation of secondary organic aerosol. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 8499-8527.
- Bessagnet B., Pirovano G., Mircea M., Cuvelier C., Aulinger A., Calori G., Ciarelli G., Manders A., Stern R., Tsyro S., García Vivanco M., Thunis P., Pay, M.-T., Colette A., Couvidat F., Meleux F., Rouil L., Ung A., Aksoyoglu S., Baldasano J.M., Bieser J., Briganti G., Cappelletti A., D'Isidoro M., Finardi S., Kranenburg R., Silibello C., Carnevale C., Aas W., Dupont, J.-C., Fagerli H., Gonzalez L., Menut L., Prévôt A.S.H., Roberts P., White L., 2016. Presentation of the EURODELTA III intercomparison exercise – evaluation of the chemistry transport models' performance on criteria pollutants and joint analysis with meteorology. *Atmos. Chem. Phys.* 16, 12667-12701.
- Ciarelli G., Aksoyoglu S., El Haddad I., Bruns E.A., Crippa M., Poulain L., Äijäkä M., Carbone S., Freney E., O'Dowd C., Baltensperger U., Prévôt A.S.H., 2017. Modelling winter organic aerosol at the European scale with CAMx: evaluation and source apportionment with a VBS parameterization based on novel wood burning smog chamber experiments. *Atmos. Chem. Phys.* 17, 7653-7669.
- Cowie C.T., Garden F., Jegasothy E., Knibbs L.D., Hanigan I., Morley D., Hansell A., Hoek G., Marks G.B., 2019. Comparison of model estimates from an intra-city land use regression model with a national satellite-LUR and a regional Bayesian Maximum Entropy model, in estimating NO₂ for a birth cohort in Sydney, Australia. *Environ. Res.* 174, 24-34.
- Duyzer J., van der Hout D., Zandveld P., van Ratigen S., 2015. Representativeness of air quality monitoring networks. *Atmos. Environ.* 104, 88-101.
- ENVIRON, 2016. CAMx (Comprehensive Air Quality Model with extensions) User's Guide Version 6.3. ENVIRON International Corporation, Novato, CA.
- Ghermandi G., Fabbi S., Veratti G., Bigi A., Teggi S., 2020. Estimate of secondary NO₂ levels at two urban traffic sites using observations and modelling. *Sustainability* 2, 12, 7897.
- Gilardoni S., Vignati E., Cavalli F., Putaud J.P., Larsen B.R., Karl M., Stenström K., Genberg J., Henne S., Dentener F., 2011. Better constraints on sources of carbonaceous aerosols using a combined 14C e macro tracer analysis in a European rural background site. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 5685-5700.
- Guevara M., Pay M.T., Martínez F., Soret A., van der Gon H.A.C.D., Baldasano J.M., 2014. Inter-comparison between HERMESv2.0 and TNO-MACC-II emission data using the CALIPE air quality system (Spain). *Atmos. Environ.* 98, 134-145.
- He B., Heal M.R., Reis S., 2018. Land-Use Regression Modelling of Intra-Urban Air Pollution Variation in China: Current Status and Future Needs. *Atmosphere* 9, 134.
- Hennig F., Sugiri D., Tzivian L., Fuks, K. Moebus S., Jöckel, K.-H., Vienneau D., Kuhlbusch T., de Hoogh K., Memmesheimer M., Jakobs H., Quass U., Hoffmann B., 2016. Comparison of Land-Use Regression modeling with dispersion and chemistry transport modeling to assign air pollution concentrations within the Ruhr area. *Atmosphere* 7, 48.
- Hopke P.K., 2016. Review of receptor modeling methods for source apportionment. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 66, 237-259.
- Janicke consulting 2014. AUSTAL2000 Program Documentation of Version 2.6 2014-02-24. Federal Environmental Agency (UBA), Dessau-Roßlau (Germany).
- Lenschow P., Abraham, H.-J., Kutzner K., Lutz M., Preuß, J.-D., Reichenbacher W., 2001. Some ideas about the sources of PM₁₀. *Atmos. Environ.* 35, S23-S33.
- Lonati G., Pepe N., Pirovano G., Balzarini A., Toppetti A., Riva G.M., 2020. Combined Eulerian-Lagrangian hybrid modelling system for PM_{2.5} and elemental carbon source apportionment at the urban scale in Milan. *Atmosphere*, 11, 1078.
- Lonati G., Ozgen S., Giugliano M., 2007. Primary and secondary carbonaceous species in PM_{2.5} samples in Milan (Italy). *Atmos. Environ.*, 41, 4599-4610.
- López-Aparicio S., Guevara M., Thunis P., Cuvelier K., Tarasón L., 2017. Assessment of discrepancies between bottom-up and regional emission inventories in Norwegian urban areas. *Atmos. Environ.* 154, 285-296.

- Meroni A., Pirovano G., Gilardoni S., Lonati G., Colombi C., Gianelle V., Paglione M., Poluzzi V., Riva G.M., Toppetti A., 2017. Investigating the role of the chemical and physical processes on organic aerosol modeling with CAMx in the Po valley during a winter episode. *Atmos. Environ.*, 171, 126-142.
- Mircea M., Calori G., Pirovano G., Belis C.A., 2020. European guide on air pollution source apportionment for particulate matter with source oriented models and their combined use with receptor models, EUR 30082 EN, Publications Office of the European Union, Luxembourg, 2020, ISBN 978-92-76-10698-2, doi:10.2760/470628, JRC119067.
- Pepe N., Pirovano G., Balzarini A., Toppetti A., Riva G.M., Amato F., Lonati G., 2019. Enhanced CAMx source apportionment analysis at an urban receptor in Milan based on source categories and emission regions. *Atmos. Environ. X* 2:100020.
- Pepe N., Pirovano G., Lonati G., Balzarini A., Toppetti A., Riva G.M., Bedogni M., 2016. Development and application of a high resolution hybrid modelling system for the evaluation of urban air quality. *Atmos. Environ.* 141, 297-311.
- Pernigotti D., Thunis P., Cuvelier C., Georgieva E., Gsell A., De Meij A., Pirovano G., Balzarini A., Riva G.M., Carnevale C., Pisoni E., Volta M., Bessagnet B., Kerschbaumer A., Viaene P., De Ridder K., Nyiri A., Wind P., 2013. POMI: a model inter-comparison exercise over the Po valley. *Air Qual. Atmos. Hlth.* 6, 701-715.
- Perrone M.G., Larsen B.R., Ferrero L., Sangiorgi G., De Gennaro G., Udisti R., Zangrando R., Gambaro A., Bolzacchini E., 2012. Sources of high PM2.5 concentrations in Milan, Northern Italy: molecular marker data and CMB modelling. *Science of the Total Environment*, 414, 345-355.
- Pietrogrande M.C., Bacco D., Ferrari S., Ricciardelli I., Scotto F., Trentini A., Visentin M., 2016. Characteristics and major sources of carbonaceous aerosols in PM2.5 in Emilia Romagna Region (Northern Italy) from four-year observations. *Science of the Total Environment*, 553, 172-183.
- Pirovano G., Colombi C., Balzarini A., Riva G.M., Gianelle V., Lonati G., 2015. PM2.5 source apportionment in Lombardy (Italy): comparison of receptor and chemistry transport modelling results. *Atmos. Environ.* 106, 56-70.
- Sandrini S., Fuzzi S., Piazzalunga A., Prati P., Bonasoni P., Cavalli F., Bove M.C., Calvello M., Cappelletti D., Colombi C., Contini D., de Gennaro G., Di Gilio A., Fermo P., Ferrero L., Gianelle V., Giugliano M., Ielpo P., Lonati G., Marinoni A., Massabò D., Molteni U., Moroni B., Pavese G., Perrino C., Perrone M.G., Perrone M.R., Putaud J., Sargolini T., Vecchi R., Gilardoni S., 2014. Spatial and seasonal variability of carbonaceous aerosol across Italy. *Atmos. Environ.*, 99, 587-298.
- Skamarock W.C., Klemp J.B., Dudhia J., Gill D.O., Barker D.M., Duda M.G., Huang X.-Y., Wang W., Powers J.G., 2008. A description of the advanced research WRF Version 3, NCAR Technical Note NCAR/TN-475+STR, Boulder, Colorado.
- Squizzato S., Cazzaro M., Innocente E., Visin F., Hopke P., Rampazzo G., 2017. Urban air quality in a mid-size city – PM2.5 composition, sources and identification of impact areas: from local to long range contributions. *Atmos. Res.* 186, 51-62.
- Thunis P., Clappier A., Tarrason L., Cuvelier C., Monteiro A., Pisoni E., Wesseling J., Belis C.A., Pirovano G., Janssen S., Guerreiro C., Peduzzi E., 2019. Source apportionment to support air quality planning: Strengths and weaknesses of existing approaches, *Environment International*, 130, 104825.
- Unione Europea, 2008. Direttiva 2008/50/EC del Parlamento europeo e del Consiglio del 21 maggio 2008 relativa alla qualità dell'aria ambiente e per un'aria più pulita in Europa. *Gazzetta ufficiale dell'Unione europea*, L 152, 11.6.2008, 1-44.
- University of North Carolina at Chapel Hill (UNC), 2013. SMOKE v3.5 User's manual. Available at: <http://www.smoke-model.org/index.cfm>
- van der Gon H.A.C.D., Bergström R., Fountoukis C., Johansson C., Pandis S.N., Simpson D., Visschedijk A.J.H., 2015. Particulate emissions from residential wood combustion in Europe – revised estimates and an evaluation. *Atmos. Chem. Phys.* 15, 6503-6519.
- Veratti G., Fabbi S., Bigi A., Lupascu A., Tinarelli G., Teggi S., Brusasca G., Butler T.M., Ghermandi G., 2020. Towards the coupling of a chemical transport model with a micro-scale Lagrangian modelling system for evaluation of urban NOx levels in a European hotspot. *Atmos. Environ.*, 223, 117285.
- Yarwood G., Morris R.E., Wilson G.M., 2004. Particulate matter source apportionment technology (PSAT) in the CAMx photochemical grid model. In: *Proceedings of the 27th NATO/CCMS International Technical Meeting on Air Pollution Modeling and Application*. Springer Verlag.
- Wang M., Sampson P.D., Hu J., Kleeman M., Keller J.P., Olives C., Szpiro A.A., Vedal S., Kaufman J.D., 2016. Combining Land-Use regression and chemical transport modeling in a spatiotemporal geostatistical model for ozone and PM2.5. *Environ. Sci. Technol.* 50, 5111-5118.
- Zanini G., Bellasio R., Bianconi R., Delle Monache L., Lorenzini R., Mosca S., Monforti-Ferrario F., Peverieri S., Vitali L., 2002. PLPM (Photochemical Lagrangian Particle Model): Formulation and preliminary Validation. 8th International Conference on Harmonisation within Atmospheric Modelling for Regulatory Purposes. Sofia (Bulgaria), 14-17 October 2002.
- Zou B., Wilson J.G., Zhan F.B., Zeng Y. Air pollution exposure assessment methods utilized in epidemiological studies. *J. Environ. Monitor.* 2009, 11, 475-490.

RINGRAZIAMENTI

Il contributo RSE a questo lavoro è stato finanziato dal Fondo di Ricerca per il Sistema Elettrico in ottemperanza al DM, 16 aprile 2018.



INGEGNERIA DELL'AMBIENTE

per il 2020 è sostenuta da:



better together



INGEGNERIA
DELL'AMBIENTE



N. 4/2020

