

Valutazione modellistica dell'esposizione invernale a pm10 in Lombardia

Claudio Carnevale, Marialuisa Volta

La stima dell'esposizione di popolazione e materiali agli inquinanti può essere valutata mediante l'analisi di simulazioni ottenute dall'applicazione di sistemi modellistici in grado di rappresentare i principali fenomeni chimico-fisici riguardanti inquinanti in fase gas e aerosol, caratterizzando in modo dettagliato la chimica e la granulometria delle particelle presenti in atmosfera. Nell'ambito del progetto CityDelta il sistema modellistico Games (Gas Aerosol Modelling System) è stato utilizzato per la realizzazione di simulazioni annuali del trasporto e della chimica degli inquinanti in atmosfera. In particolare in questo studio verrà presentata l'applicazione del modello sul dominio lombardo per il periodo gennaio-febbraio 1999.

Keyword

Simulazioni in fase eterogenea, Sistema di controllo della qualità dell'aria, Sistema modellistico multifase

La valutazione dell'impatto degli inquinanti su popolazione ed ecosistemi richiede la stima dell'esposizione a concentrazioni medio-alte durante periodi di tempo annuali/semestrali. Recentemente l'attenzione si è concentrata sull'inquinamento da particolato e principalmente sulla frazione di particelle con diametro inferiore a $10\mu\text{m}$ (PM10). Vari studi epidemiologici hanno mostrato infatti la dannosità di tali particelle per l'uomo.

La legislazione italiana ha recepito le direttive comunitarie in vigore dal 1999, fissando la soglia di allarme a $50\mu\text{g}/\text{m}^3$ per la media delle concentrazioni giornaliere di PM10 [4].

La stima dell'esposizione di popolazione e materiali può essere valutata mediante l'analisi di simulazioni ottenute dall'applicazione di sistemi modellistici in grado di ricostruire i fenomeni di trasporto e le reazioni chimiche che avvengono in troposfera. Gli stessi strumenti modellistici consentono di valutare a-priori l'efficacia di politiche di riduzione delle emissioni sia nel breve che nel lungo termine.

In letteratura sono presentati diversi modelli a mesoscala per la simulazione dei fenomeni chimico-fisici che avvengono in troposfera. Molti di essi permettono la realizzazione di simulazioni di lungo periodo per quanto riguarda la fase omogenea gassosa, ma solo alcuni di essi considerano i fenomeni in fase eterogenea, rappresentandone per di più in modo semplificato la dinamica [13].

Questo lavoro, realizzato nell'ambito del progetto CityDelta [2], illustra il sistema modellistico Games progettato e implementato per simulazioni multifase a scala regionale.

C. Carnevale, M. Volta - Dipartimento di Elettronica per l'Automazione, Università degli Studi di Brescia

Il sistema di controllo della qualità dell'aria

Un sistema di controllo della qualità dell'aria può essere schematizzato con uno schema in retroazione, nel quale l'atmosfera è il sistema da controllare, le emissioni rappresentano le variabili *manipolabili* e la meteorologia rappresenta l'insieme delle variabili *non manipolabili* (figura 1). La definizione della legge di controllo avviene confrontando le concentrazioni misurate con i valori limite imposti dalla legislazione.

La scelta della legge di controllo non può tuttavia essere realizzata eseguendo una serie di test sul sistema in esame, a causa dell'impatto economico-sociale che tali prove avrebbero sul dominio oggetto di studio. Nasce quindi la necessità di modellizzare i fenomeni che avvengono in atmosfera attraverso opportuni strumenti modellistici.

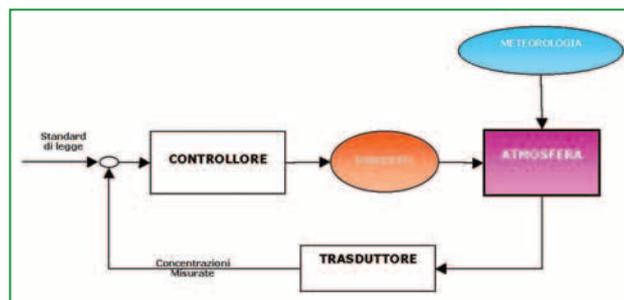


Figura 1 - Schema di controllo per la qualità dell'aria

Il sistema modellistico Games (Gas Aerosol Modelling Evaluation System) [20], è composto da 3 moduli (figura 2): (a) il modello Tcam (Transport Chemical and Aerosol Model) [3], che simula i fenomeni di chimica e trasporto in atmosfera; (b) un pre-processore delle emissioni, e (c) un pre-processore meteorologico.

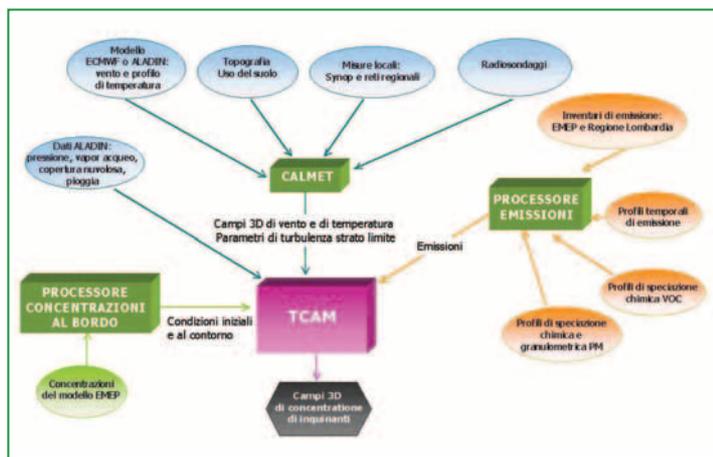


Figura 2 - Il sistema modellistico Games

Il pre-processore emissivo Poem-Cdii

Uno degli aspetti di fondamentale importanza nella messa a punto del sistema modellistico consiste nella predisposizione di campi emissivi secondo la caratterizzazione chimico-fisico e la risoluzione spatio-temporale di cui il modello di chimica e trasporto necessita per realizzare la simulazione. Il modello Poem-Cdii, realizzato nell'ambito del progetto CityDelta, definisce campi orari di emissione per tutta la durata della simulazione per sei specie inorganiche (NO, NO₂, CO, CO₂, SO₂, NH₃), i composti organici volatili (VOC) e le polveri (PM10, PM2.5) sulla base di opportuni profili temporali. Il processore effettua anche la caratterizzazione chimica dei VOC, che vengono suddivisi in 26 classi, e quella chimico-fisica del PM, per il quale vengono considerati sei differenti composti (carbonio elementare, carbonio organico, solfati, nitrati, acqua e una generica classe contenente i metalli pesanti) suddivisi in dieci classi granulometriche (da 0,1 a 11 μm).

Il pre-processore meteorologico Calmet

Calmet [14] è un modello meteorologico diagnostico *mass-consistent* che consente di riprodurre i campi tridimensionali di vento e temperatura e quelli bidimensionali relativi ai parametri di turbolenza a partire dai dati misurati al suolo e in quota nel dominio di indagine.

Il modello Tcam

Il modello di chimica e trasporto Tcam è un modello tridimensionale euleriano a griglia che opera su un sistema di coordinate *terrain-following*. Considera 95 specie gassose e 21 specie chimiche di aerosoli, ciascuna suddivisa in dieci classi granulometriche. Il modello è in grado di descrivere i fenomeni di trasporto e diffusione, deposizione secca e umida, chimica in fase gas e acquosa e i fenomeni di nucleazione, condensazione e evaporazione che coinvolgono gli aerosoli.

La simulazione di questi fenomeni viene realizzata risolvendo

do per ogni cella del dominio di indagine e per ogni specie chimica l'equazione di continuità:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -v_x \frac{\partial C_i}{\partial x} - v_y \frac{\partial C_i}{\partial y} + K_{xx} \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} + K_{yy} \frac{\partial^2 C_i}{\partial y^2} + v_z \frac{\partial C_i}{\partial z} + \frac{\partial C_i}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_{zz} \frac{\partial C_i}{\partial z} \right) + E(x, y, z, t) + D(x, y, z, t) + S(x, y, z, t) + R(x, y, z, t) \quad (1)$$

Dove:

- C_i è la concentrazione della specie i [g m⁻³]
- v_x, v_y, v_z sono le componenti del vento [m s⁻¹]
- K_{xx}, K_{yy}, K_{zz} sono i coefficienti di diffusione turbolenta [m² s⁻¹]
- E(x,y,z,t) contributo delle emissioni
- D(x,y,z,t) rimozione dovuta alla deposizione
- S(x,y,z,t) contributo delle reazioni chimiche
- R(x,y,z,t) rimozione dovuta alle reazioni chimiche

Splitting degli operatori

Sebbene tutti i fenomeni descritti dall'equazione (1) avvengano in atmosfera contemporaneamente, trattarli in modo congiunto risulta troppo oneroso da un punto di vista computazionale. Per risolvere questo problema, Tcam implementa una tecnica di split degli operatori [10] che consente di trattare singolarmente i fenomeni di chimica, trasporto verticale e trasporto orizzontale attraverso la relazione (split degli operatori):

$$c_i^{t+1} = A_{xy} A_z A_c A_z A_{xy} c_i^t \quad (2)$$

Dove A_{xy} è l'operatore che descrive il trasporto e della diffusione orizzontale, (A_z) il trasporto la diffusione verticale e A_c le reazioni chimiche in multifase.

Modulo di Trasporto e Diffusione

Per risolvere l'equazione differenziale alle derivate parziali (PDE) che descrive il trasporto orizzontale Tcam implementa uno schema alle differenze basato sulle *Chapeau function* [11]. Questo metodo, già implementato in altri modelli fotochimici, garantisce positività e conservazione della massa abbinandole a una discreta efficienza computazionale. Per limitare il problema della diffusione numerica nel modulo è stato inoltre implementato un filtro non lineare di Forester [7]. Per quanto riguarda il trasporto verticale, il modello considera sia i moti convettivi, sia la diffusione turbolenta, mentre trascura il moto browniano.

Al contrario di quanto avviene nel trasporto orizzontale, lungo la verticale il contributo di diffusione turbolenta in genere domina rispetto ai moti convettivi, quindi la sua parametrizzazione risulta di particolare importanza. Dal punto di vista dell'integrazione dell'equazione differenziale, Tcam implementa due schemi a seconda dei valori della diffusività verticale: se sono elevati viene utilizzato uno schema completamente implicito, altrimenti si utilizza un classico metodo di Cranck-Nicholson.

Deposizione secca e umida

Deposizione secca e umida rappresentano i più importanti fenomeni di rimozione degli inquinanti in atmosfera.

La deposizione secca è legata soprattutto alle caratteristiche della superficie (natura e rugosità) e della vegetazione eventualmente presente, alle proprietà dell'inquinante e alle condizioni atmosferiche. Il flusso di deposizione secca F_i , per la specie i , è espresso dalla semplice relazione (flusso di deposizione secca):

$$F_i = C_i v_{di} \tag{3}$$

Dove F_i [$g\ m^{-2}\ s^{-1}$] rappresenta il flusso di inquinante rimosso, C_i [$g\ m^{-3}$] è la concentrazione della specie i in prossimità del suolo e v_{di} [$m\ s^{-1}$] è la velocità di deposizione della specie i , che viene calcolata attraverso uno schema a resistenza [21].

La deposizione umida risulta di particolare importanza per inquinanti in fase aerosol e per i gas solubili, e può essere modellizzata dalla formula (variazione di concentrazione dovuto a deposizione umida):

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\Lambda C_i \tag{4}$$

dove il coefficiente di scavenging Λ [s^{-1}] è determinato separatamente per gas e aerosol, secondo [15].

Modulo Chimico per la fase gas

Il modulo che permette la descrizione e la schematizzazione dei fenomeni chimici che avvengono in atmosfera opera sulla base del concetto di meccanismo chimico attraverso il quale vengono definiti (1) gruppi di specie presenti in atmosfera e (2) reazioni chimiche che avvengono tra essi.

Grazie alla sua flessibilità, Tcam permette di realizzare simulazioni utilizzando differenti meccanismi chimici, comprendenti gruppi di specie e reazioni differenti. Nella configurazione per le simulazioni in fase eterogenea viene utilizzato il meccanismo COCOH-97 [5] che comprende 95 gruppi di specie e 187 reazioni.

Una volta definito il meccanismo in termini di specie, reazioni, parametri cinetici e coefficienti stechiometrici, occorre un metodo per realizzare l'integrazione numerica delle equazioni differenziali ordinarie (ODE) di cinetica chimica. Tale problema è reso particolarmente complesso dal fatto che le velocità di reazione delle diverse specie possono differire anche di diversi ordini di grandezza, rendendo il sistema *stiff* [1].

Tcam implementa uno schema ibrido implicito-esplicito (IEH) [18] che tratta separatamente le specie chimiche a seconda dei loro tempi di reazione. Le specie consi-

derate *veloci* vengono integrate con l'integratore implicito Lsode [8], mentre per le specie *lente* viene utilizzato uno schema esplicito di Adams-Bashforth [22]. In questo modo si possono ottenere prestazioni comparabili a algoritmi di integrazione completamente impliciti in termini di convergenza della soluzione, garantendo però un notevole vantaggio in termini di tempi di computazione [1].

Modulo Aerosol

Tcam implementa un modulo per la modellizzazione dei fenomeni chimico-fisici in fase aerosol che descrive l'evoluzione di 210 variabili di stato che rappresentano 21 specie chimiche, di cui 12 inorganiche (H_2O , SO_4^{2-} , NH_4^+ , Cl^- , NO_3^- , Na^+ , H^+ , $SO_2(aq)$, $H_2O_2(aq)$, $O_3(aq)$, carbonio elementare e organico) e nove organiche (una generica specie organica primaria e otto classi di organici secondari), caratterizzate granulometricamente in dieci classi.

Si assume che tutte le particelle di una determinata classe siano sfere perfette il cui volume è dato dall'unione di un nucleo costante (*core*) e di un guscio di dimensioni variabili (*shell*).

Il modello tratta fenomeni di condensazione/evaporazione, nucleazione e reazioni chimiche di SO_2 in fase acquosa.

IL caso studio

Nell'ambito del progetto CityDelta sono state realizzate simulazioni annuali dell'evoluzione di inquinanti in fase gas e aerosol in atmosfera in un dominio di $300 \times 300\ km^2$ centrato sulla città di Milano, comprendente l'intera regione Lombardia e parte delle regioni limitrofe (figura 3). Le simulazioni sono state eseguite suddividendo il dominio in un grigliato di 60×60 celle (risoluzione di $5 \times 5\ km^2$) e 11 livelli verticali (20 m, 45 m, 80 m, 130 m, 230 m, 400 m, 650 m, 1.000 m, 1.700 m, 2.800 m, 3.900 m).

Predisposizione degli input

La caratterizzazione emissiva del dominio è stata realizzata a partire dall'inventario europeo di Emep [19], che ha una risoluzione spaziale di $50 \times 50\ km^2$, disaggregato spazialmente all'interno della regione Lombardia attraverso i dati provenienti dall'inventario Inemar [12] fino a raggiungere la risoluzione di $5 \times 5\ km^2$. La figura 4 mostra le emissioni totali sul dominio di indagine nel bimestre in esame di PM_{10} e di NH_3 , uno dei più importanti precursori degli aerosol.

I campi meteorologici sul dominio di calcolo sono stati messi a punto con il modello Calmet. Per ricostruire le informazioni meteorologiche con la risoluzione di interes-

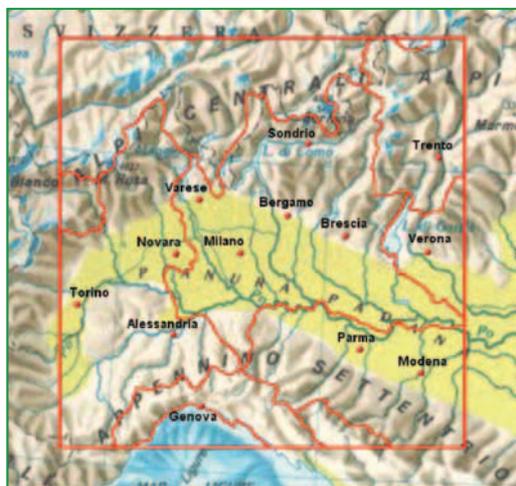


Figura 3 - Dominio di Simulazione

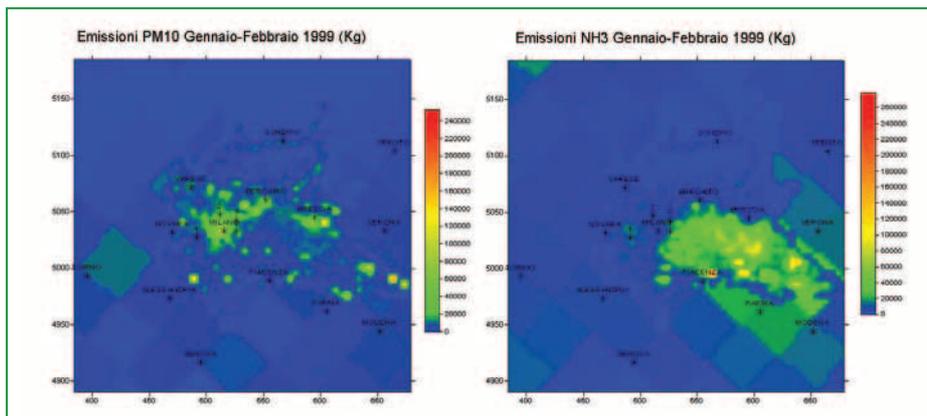


Figura 4 - Emissioni di PM10 e NH₃ sul dominio di indagine nel dominio considerato (i punti 1-2-3-4 indicano le posizioni delle postazioni di monitoraggio)

se sono state integrate informazioni sulla circolazione a scala sinottica con osservazioni rilevate al suolo ed in quota che permettono di descrivere le caratteristiche meteorologiche locali.

Le misure disponibili nell'area di studio sono costituite da: misure triorarie al suolo di velocità e direzione del vento, temperatura, pressione, umidità relativa, copertura

nuvolosa e altezza della base delle nuvole, relative alle stazioni Synop; misure orarie di profilo verticale di velocità e direzione del vento e misure temperatura relative ai radiosondaggi; misure orarie del profilo verticale di temperatura; misure orarie del profilo verticale di velocità e direzione del vento.

Oltre ai dati misurati sono state utilizzate le informazioni prodotte dal modello europeo Ecmwf (European Centre for Medium range Weather Forecast) di Reading [6], costituite da analisi al suolo e in quota di vento e temperatura.

Le condizioni al contorno per il dominio considerato sono state ottenute tramite un'operazione di nesting dal modello di Emep [16]. Il modello è formulato in coordinate stereografiche-polari ed ha una risoluzione spaziale di 50x50 km².

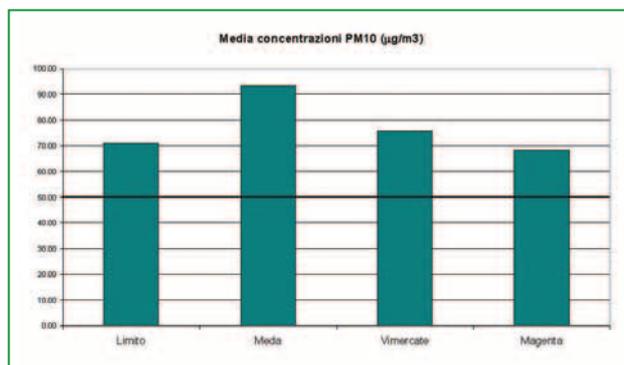


Figura 5 - Valore medio sul bimestre gennaio-febbraio 1999 delle concentrazioni di PM10 misurate dalle postazioni di monitoraggio

La validazione del modello è stata realizzata utilizzando come indicatore la media giornaliera, e come indici di prestazione l'errore medio normalizzato, la correlazione e la valutazione dei giorni di eccedenza rispetto al limite di legge (figura 6).

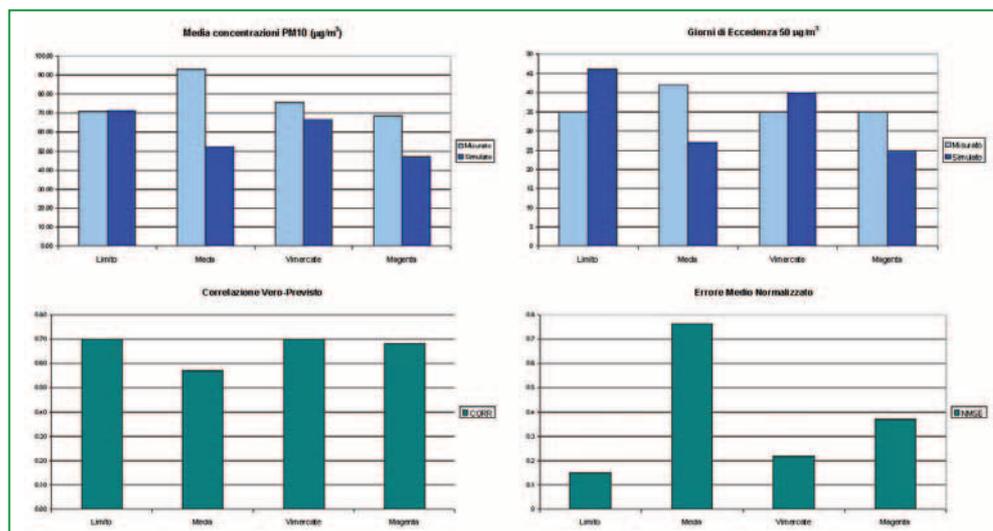


Figura 6 - Indici di prestazione del modello sul bimestre in esame

Le concentrazioni vengono calcolate ogni sei ore e viene fornito un valore medio per lo strato limite planetario.

Per la predisposizione delle concentrazioni al contorno è stato pertanto necessario operare un'interpolazione spaziale e una modulazione verticale dei profili del modello europeo.

Risultati della simulazione modellistica

Le prestazioni del sistema modellistico sono state valutate comparando i valori medi giornalieri di PM10 misurati da quattro postazioni di monitoraggio (Limite, Meda, Vimercate e Magenta) con quelli calcolati dal modello.

Queste postazioni di monitoraggio, tutte poste nell'hinterland milanese, sono caratterizzate da livelli di concentrazione medie nel bimestre in esame ben al di sopra del limite di legge di 50 µg/m³ (figura 5). In particolare la centralina di Meda è caratterizzata da concentrazioni medie sul bimestre superiori a 90 µg/m³.

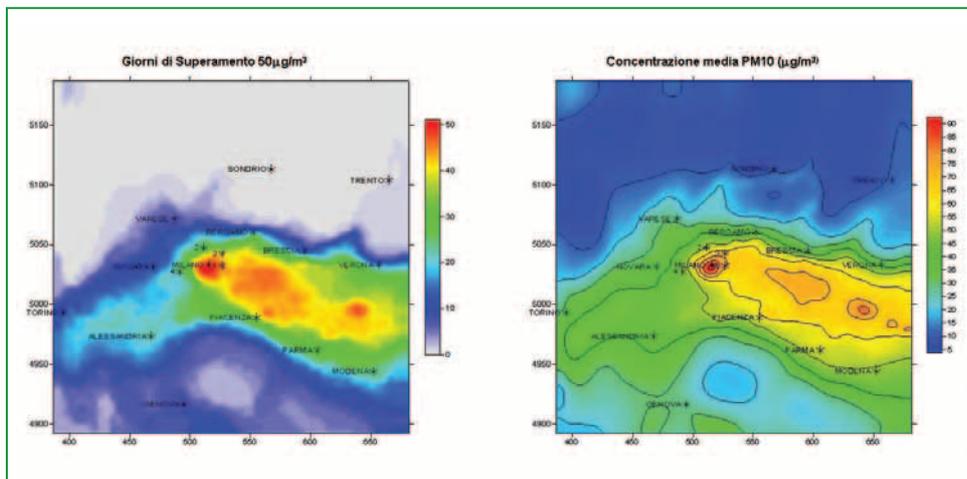


Figura 7 - Mappe di giorni di superamento (SX) e concentrazione media (DX) sul bimestre in esame

Da un punto di vista di valore medio, le concentrazioni di PM10 misurate dalle centraline risultano più alte di quelle simulate, e la tendenza del modello alla sottostima risulta particolarmente marcata nella postazione ad alto valore medio misurato di Meda.

Nelle altre tre postazioni, il valore di errore quadratico medio risulta comunque inferiore a 0,4, indice del fatto che il modello risulta comunque in grado di ricostruire il comportamento medio del fenomeno.

Inoltre, se si confrontano i giorni sopra la soglia di legge simulati e misurati, si può notare che il modello riproduce correttamente concentrazioni maggiori di 50 µg/m³. Questa lettura consente di ipotizzare che la sottostima sia dovuta esclusivamente alla incapacità del modello di riprodurre situazioni di concentrazione molto alte e episodiche.

Le prestazioni soddisfacenti del modello, sono inoltre confermate dall'indice di correlazione tra la serie dei valori medi giornalieri simulati e quelli misurati, che è compreso tra un valore minimo di 0,55 (Meda) e uno massimo di 0,7 (Limite).

La figura 7 presenta le mappe di concentrazione media (destra) e di giorni di superamento (sinistra) nel bimestre in esame. Da queste mappe risulta evidente come le zone caratterizzate da concentrazione medie più alte siano vicine ai grandi centri urbani e come in generale la pianura Padana sia un'area particolarmente interessata a inquinamento da PM10. In particolare tutta la zona ad est di Milano risulta caratterizzata da concentrazioni medie sul bimestre intorno a 60g/m³ e quindi al sopra della soglia di legge.

In questa zona sono state inoltre simulate concentrazioni medie giornaliere al sopra di tale soglia per almeno 30 dei 59 giorni simulati (51%) con punte di 50 giorni (85%) intorno alla zona di Milano. A questo proposito, risulta di particolare importanza il fatto che la legislazione europea fissa non soltanto il limite di concentrazione media giornaliera a 50 µg/m³, ma impone anche che questo limite non venga superato per più di 35 volte in un anno, cosa che il modello riproduce regolarmente nella zona della pianura Padana ad est di Milano, nel solo bimestre in esame.

Conclusioni

Il lavoro presenta la messa a punto di un sistema modellistico per la realizzazione di simulazioni di lungo periodo (6 mesi/anno) dell'evoluzione chimico-fisica degli inquinanti in fase eterogenea, e una sua prima applicazione sul dominio lombardo.

Il sistema è in grado di rappresentare i principali fenomeni chimico-fisici che coinvolgono non soltanto gli inquinanti in fase gassosa (95 variabili di stato), ma anche quelli in fase aerosol (210

variabili di stato) su domini a mesoscala.

Il confronto tra i dati misurati dalle postazioni di monitoraggio e i dati simulati dal sistema indicano elevate prestazioni del modello sia in termini di valore medio che di giorni di eccedenza la soglia di legge.

Riferimenti

- [1] D.P. Chock, S.L. Winkler, P. Sun, "A comparison of stiff chemistry solvers for air quality modeling", *Air & Waste Management Association 87th Annual Meeting*, Cincinnati, OH, 19-24 giugno 1994.
- [2] CityDelta Home Page: <http://rea.ei.jrc.it/netshare/thunis/citydelta/>.
- [3] E. Decanini, M. Volta, "Application to Northern Italy of a New Modelling System for Air Quality Planning: a comparison between different chemical mechanisms", *International Journal of Environment and Pollution*, 20, 85-95, 2003.
- [4] Decreto Ministeriale, 2 aprile 2002, n. 60: Recepimento della direttiva 1999/30/CE del Consiglio del 22 aprile 1999 concernente i valori limite di qualità dell'aria ambiente per il biossido di zolfo, il biossido di azoto, gli ossidi di azoto, le particelle e il piombo e della direttiva 2000/68/CE relativa ai valori limite di qualità dell'aria ambiente per il benzene ed il monossido di carbonio, *Gazzetta Ufficiale*, 87, 2002.
- [5] S.K. Durlak, D. Baumgardner, "Examination of the evolution of urban plumes using Maps (Model for Aerosol Process Studies)", *Proc. 11th Joint Conference on the Applications of Air Pollution Meteorology with the Air and Waste Management Association*, 2000.
- [6] European Centre for Medium range Weather Forecast Home Page: <http://www.ecmwf.int>.
- [7] C.K. Forester, "Higher order monotonic convection difference schemes", *Journal Sode and Lsodei of Computational Physics*, 23, 1-22, 1977.
- [8] A.C. Hindmarsch, "Two new initial value ordinary differential equation solvers", *ACM-Signum Newsletter*, 15, 10-11, 1975.

- [9] G.M. Marazzan, Vaccaro, S., Valli, G., R. Vecchi, "Characterisation of PM10 and PM2.5 particulate matter in the ambient air of Milan (Italy)", *Atmospheric Environment*, 35, 4639-4650, 2001.
- [10] G.I. Marchuk, *Methods of Numerical Mathematics*, Springer, New York, 1975.
- [11] D.W. Pepper, C.D. Kern, P.E. Long, "Modeling the dispersion of atmospheric pollution using cubic splines and Chapeau functions", *Atmospheric Environment*, 13, 223-237, 1979.
- [12] Inemar Home Page: <http://www.ambiente.regione.lombardia.it/inemarhome>.
- [13] A. Russel, R. Dennis, "Narsto critical review of photochemical models and modeling", *Atmospheric Environment*, 34, 2283-2324, 2000.
- [14] J.S. Scire, F.R. Robe, M.E. Fernau, R.J. Yamartino, "A User's guide for the Calmet meteorological model - Version 5.0", *Internal report Earth Tech inc*, 1999.
- [15] Seinfeld, J.H., Pandis, S.N.: *Atmospheric Chemistry and Physics, From Air Pollution to Climate Change*, John Wiley and Sons, New York, 1998.
- [16] D. Simpson, H. Fagerli, J.E. Jonson, S. Tsyro, J.P. Tuovinen, P. Wind, "Transboundary acidification, eutrophication and ground level ozone in Europe. Part I: Unified EmeP model description", *EmeP Status Report 1/2003*.
- [17] J. Smagorinsky, "General circulation experiments with the primitive equations: 1. The basic experiment", *Monthly Weather Review*, 61, 99-164, 1963.
- [18] P. Sun, D.P. Chock, S.L. Winkler, "An implicit-explicit hybrid solver for a system of stiff kinetic equations", *Air & Waste Management Association 87th Annual Meeting*, Cincinnati, OH, 19-24 giugno 1994.
- [19] V. Vestreng, "Emission data reported to Clrtap", *EmeP Status Report 1/2003*.
- [20] M. Volta, G. Finzi, "Games, a comprehensive gas aerosol modelling evaluation system", *Environmental Modelling and Software*, in press, doi:10.1016/j.envsoft.2004.06.012.
- [21] R.J. Yamartino, J.S. Scire, G.R. Carmichael, Y.S. Chang, "The Calgrid mesoscale photochemical grid model - I. Model formulation", *Atmospheric Environment*, 26, 1493-1512, 1992.
- [22] D.R. Wille, "New Stepsize estimators for linear multistep methods", *Numerical Analysis Report*, 247, 1994. ■

Ringraziamenti. Questo studio è un contributo al progetto europeo CityDelta sviluppato nell'ambito di progetti di ricerca nazionali finanziati dal Ministero dell'Università e della Ricerca Scientifica e Tecnologica e da ENI-Tecnologie. Il lavoro è stato realizzato in collaborazione con Agenzia Mobilità e Ambiente (Dr. Marco Bedogni), Arpa Emilia-Romagna (Dr. Enrico Minguzzi) e Cesi (Dr. Cesare Pertot e Dr. Guido Pirovano).