

## Monitoraggio del particolato nelle pianure interne della Toscana e studio della distribuzione delle frazioni dimensionali

Elisa Bini, Tiziana Cecconi, Chiara Collaveri, Marco Stefanelli, Bianca Patrizia Andreini  
ARPAT- Centro Regionale Tutela Qualità dell'Aria - Livorno

I livelli di concentrazione di particolato PM10 e PM2,5 nella zona delle pianure interne della Toscana e in particolare nella zona Prato-Pistoia e nell'agglomerato di Firenze sono tra i più critici in Toscana unitamente alla zona della Piana lucchese e del Valdarno Pisano rispetto ai limiti previsti dal D.lgs 155/10. Vari studi sono stati già effettuati sulla composizione del particolato e sull'analisi delle fonti attraverso i progetti PATOS in alcune stazioni di fondo e di traffico di queste zone [1]. In questo studio per la zona Prato-Pistoia e l'Agglomerato di Firenze si riporta una prima valutazione dell'esposizione della popolazione al particolato attraverso l'analisi della distribuzione spaziale del particolato, l'andamento nel tempo dei livelli di concentrazione monitorati presso le stazioni di rete regionale presenti nella zona negli ultimi 13 anni (2003-2015) e la distribuzione dimensionale del numero delle particelle.

A valle delle analisi condotte sui dati di monitoraggio per la definizione delle zone di rappresentatività spaziale delle stazioni [2] sono state condotte anche una serie di campagne di misura per la caratterizzazione del profilo dimensionale delle particolato atmosferico nelle aree urbane.

### Materiali e metodi

Le stazioni oggetto di studio sono le stazioni della rete regionale nella zona Prato-Pistoia e nell'Agglomerato di Firenze (DGRT 914/2015). Sono stati valutati solo i dati ottenuti da strumenti con rendimento globale annuo maggiore o uguale al 90%; nel caso delle analisi di trend sono state incluse le serie che rispettano i criteri minimi di copertura temporale (almeno il 75% di dati validi). I valori medi annuali di concentrazione di PM10 sono stati rappresentati su mappa applicando il modello di rappresentatività spaziale delle stazioni prodotto dalla regione toscana da ARPAT e Consorzio LAMMA [2].

### Analisi di trend

La variazione nel tempo dei livelli di concentrazione di PM10 e PM2,5 è stata valutata attraverso l'analisi della componente di fondo (trend, che individua l'andamento generale e persistente dei dati a crescere o a decrescere sul lungo periodo) delle serie storiche nel corso degli ultimi 13 anni. Sono stati usati due differenti approcci, il primo finalizzato all'individuazione dell'andamento indicativo della componente di trend delle diverse serie storiche analizzate, il secondo con l'obiettivo di valutare la significatività statistica del trend individuato e la sua entità.

Il primo metodo utilizza la perequazione meccanica con medie mobili al fine di detrendizzare le serie temporali dei dati di qualità dell'aria. Il metodo adottato non è raffinato come il metodo analitico ai fini dell'individuazione della serie di dati relativi alla componente di trend di una serie storica ma ai fini del presente studio, ossia ai fini dell'individuazione della presenza o meno di trend statisticamente significativi delle serie storiche dei dati di qualità dell'aria, è stato ritenuto sufficiente e utile al completamento grafico delle informazioni ottenute tramite l'applicazione del secondo metodo di analisi adottato.

Tale metodo stima la componente di trend tramite un'opportuna ponderazione dei valori della serie ( $X_t$ ):

$$T_t = \frac{1}{2a+1} \sum_{-a}^a X_t$$

Al fine di eliminare la stagionalità e mettere in risalto solo la componente di fondo è stata applicata ai dati originari della serie una media mobile ponderata a  $n$  termini con  $n$  pari alla frequenza della serie analizzata (ad esempio  $n = 365$  nel caso delle serie composte da medie giornaliere).

Il secondo metodo adottato è il test di Mann-Kendall corretto per stagionalità, recentemente applicato in numerosi studi [3-9]. Tale metodo è un test ad ipotesi statistiche di tipo non

parametrico. Il test restituisce una stima della riduzione/aumento della concentrazione su base annua cui è associata la relativa incertezza a un dato livello di confidenza. Tale test si basa sul confronto delle coppie di osservazioni  $x_i, x_j$  ( $i > j$ ) per accertare se  $x_i > x_j$  ovvero  $x_i < x_j$ . L'ipotesi nulla  $H_0$  è che la serie sia priva di trend statisticamente significativo.

È stato dimostrato che tra i vari test parametrici e non parametrici disponibili per l'analisi dei trend il test di Mann-Kendall corretto per la stagionalità è tra quelli che ottiene le performance migliori rispetto ad altri test valutati utilizzando serie storiche fittizie [10].

Al fine di stimare l'entità del trend, inoltre, è stato utilizzato un parametro sviluppato da Hirsch et al. noto come SK slope estimator; tale parametro può essere determinato calcolando:

$$m_{ijk} = (x_{ik} - x_{jk}) / (i - j)$$

per tutte le coppie di  $(x_{jk}, x_{ik})$

Dove  $k = 1, 2, 3, \dots, p$ ;  $1 \leq i < j \leq n_k$

Il parametro SK slope estimator è determinato calcolando la mediana dei valori  $m_{ijk}$  ottenuti; un valore positivo dello slope indica un trend crescente mentre un valore negativo un andamento decrescente.

Per effettuare un'analisi dei trend sufficientemente solida sono state utilizzate serie storiche sufficientemente lunghe in modo da limitare l'effetto di anni caratterizzati da condizioni meteorologiche atipiche che possono mascherare la tendenza di fondo; l'incertezza nella determinazione dell'esistenza di un trend statisticamente significativo aumenta, infatti, esponenzialmente con il diminuire della lunghezza della serie.

Per poter apprezzare tendenze di riduzione o aumento molto piccole (dell'ordine di  $0,3 \mu\text{g m}^{-3} \text{y}^{-1}$ ) è necessario disporre di serie di dati lunghe circa 15 anni. Con serie più brevi la tendenza diventa apprezzabile se risulta più significativa ( $1 \mu\text{g m}^{-3} \text{y}^{-1}$ ) ma la serie deve essere lunga almeno sette anni. La normalizzazione dei dati per gli effetti della meteorologia, ottenuta applicando il test di Mann-Kendall corretto per stagionalità, permette di ridurre l'incertezza associata alla stima e quindi di apprezzare l'esistenza di un trend dello stesso ordine di grandezza a partire da serie di dati relativamente meno estese (11 anni nel primo caso, 5 anni nel secondo) [11].



PM10

PM2,5

Tabella 1 Periodo disponibilità dati per stazione

### Analisi della distribuzione dimensionale del particolato

Sono stati presi in esame quattro siti di monitoraggio: uno di traffico (FI-GRAMSCI) e tre di fondo (PT-MONTALE, PO-ROMA, FI-BASSI), dove nel corso del 2015 e del 2016 sono state condotte una serie di misure con un contatore ottico di particelle (OPC) in grado di distinguere 15 classi dimensionali differenti, in un range da  $0.30 \mu\text{m}$  a  $20.00 \mu\text{m}$ . Lo strumento utilizzato per le misure è uno spettrometro laser portatile della GRIMM AEROSOL modello 1.108 dotato di alloggiamento per le misure in esterno.

Le campagne effettuate sono le seguenti:

Zona	Sito campionamento	Classificazione zona	Periodo di campionamento
Prato – Pistoia	PT-MONTALE	SF	03 - 10/02/15
	PO-ROMA	UF	8-24/05/15, 23/02/16 - 12/03/16
Agglomerato di Firenze	FI-BOBOLI	UF	17/02/15 - 01/03/15
	FI-GRAMSCI	UT	10 – 22/03/15, 05 - 18/04/16
	FI-BASSI	UF	06 - 16/06/15

S= suburbane, U= urbana, F= fondo, T= traffico

## Risultati e discussione

Sulla base dello studio svolto da ARPAT e Consorzio LAMMA per la Regione Toscana, finalizzato alla stima della rappresentatività spaziale delle stazioni di monitoraggio di fondo della rete regionale [2], è possibile rappresentare la distribuzione delle concentrazioni medie annuali di PM10 a cui la popolazione toscana è stata esposta nel 2015.

Ad ogni stazione sono stati associati i comuni che risultano rappresentati dal dato, per parte del proprio territorio, secondo soglie stabilite.

Il fondo regionale, pari a circa  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  come media annuale, è attribuito alle classi di uso del suolo di tipo naturale (CLC 311-521) e sovrapposto ai comuni, in modo che all'interno di ciascun comune si distinguano le aree naturali rappresentate dal dato di fondo.

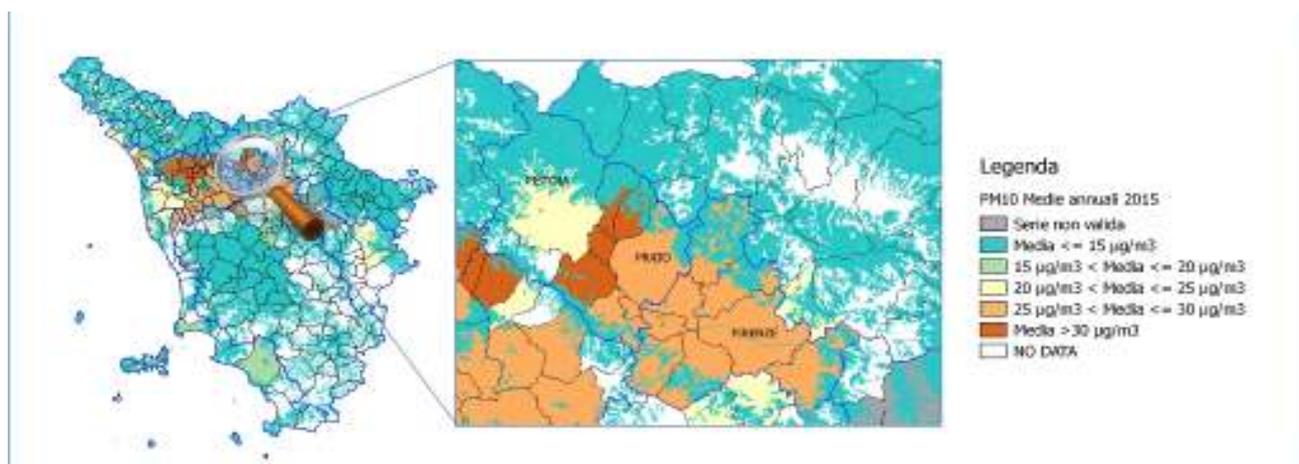


Figura 1 Concentrazioni medie anno 2015 di PM10

I dati del 2015 riportati in figura 1 indicano che l'area con la maggior concentrazione media di PM10 è distribuita tra l'agglomerato e la pianura tra Prato e Pistoia. Infatti i valori più elevati sono proprio quelli della stazione di Montale (PT) ( $31 \mu\text{g}/\text{m}^3$  di media annuale) superiori a quelli di Prato ( $28 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), che tra i comuni della zona è quello con più affinità con l'agglomerato, e nettamente superiore a Pistoia ( $23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), il comune con la maggior percentuale di aree naturali nel proprio territorio ed una maggior quota del centro urbano rispetto alla piana.

I risultati ottenuti con l'applicazione del test di Mann-Kendall destagionalizzato sono espressi attraverso due differenti parametri: il primo è l'SK-slope ossia la mediana delle pendenze delle rette che uniscono le coppie di valori successivi che individua l'entità del trend e le sue caratteristiche (crescente o decrescente), il secondo parametro è il p-value che rappresenta il livello di significatività del test di Mann-Kendall. Nel caso in cui il valore di tale parametro sia inferiore al livello di significatività del test prescelto ( $\alpha = 0,05$  nel caso del presente lavoro, ossia il livello di confidenza richiesto al test è pari al 95%) l'ipotesi nulla (trend non statisticamente significativo) non è accettabile; la serie storica dei dati presenta, cioè, un trend statisticamente significativo la cui consistenza è individuata dal parametro SK-slope (indicato semplicemente come "slope" nelle tabelle successive).

Il test di Mann-Kendall destagionalizzato è stato applicato a diversi livelli di aggregazione:

- a ciascuna delle stazioni di rete regionale
- all'insieme delle stazioni di ciascuna zona individuata nel progetto di zonizzazione della Regione Toscana (DGRT 964/2015, allegato A);
- all'insieme delle stazioni suddivise per ciascuna tipologia (urbana fondo, urbana traffico, suburbana/rurale fondo).

Tabella 2 PM10: Risultati test Mann-Kendall destagionalizzato per stazione

ZONA	NOME STAZIONE	TIPOLOGIA STAZIONE	SLOPE	P-VALUE	TREND
AGGLOMERATO	FI-BOBOLI	UF	-0.7	5.1e-10	DECRESCENTE
	FI-BASSI	UF	-1.2	1.5e-16	DECRESCENTE
	FI-SCANDICCI	UF	-1.7	3.7e-24	DECRESCENTE
	FI-GRAMSCI	UT	-1	4.3e-12	DECRESCENTE
	FI-MOSSE	UT	-0.9	0.0001	DECRESCENTE
PRATO-PISTOIA	PO-ROMA	UF	-0.4	0.0017	DECRESCENTE
	PT-SIGNORELLI	UF	-1	6.7e-06	DECRESCENTE
	PT-MONTALE	SF	-1.2	2.2e-12	DECRESCENTE
	PO-FERRUCCI	UT	-0.6	2.7e-05	DECRESCENTE

Tabella 3 PM10: Risultati test Mann-Kendall destagionalizzato per zona

ZONA	SLOPE	P-VALUE	TREND
AGGLOMERATO	-1.2	7.9e-11	DECRESCENTE
PRATO-PISTOIA	-1.1	0.005	DECRESCENTE

Tabella 4 PM2,5: Risultati test Mann-Kendall destagionalizzato per stazione

ZONA	NOME STAZIONE	TIPOLOGIA STAZIONE	SLOPE	P-VALUE	TREND
AGGLOMERATO	FI-BASSI	UF	-0.3	0.15	NO TREND
	FI-GRAMSCI	UT	-0.7	0.02	DECRESCENTE
PRATO-PISTOIA	PO-ROMA	UF	0	0.71	NO TREND

Tabella 5 PM2,5: Risultati test Mann-Kendall destagionalizzato per zona

ZONA	SLOPE	P-VALUE	TREND
AGGLOMERATO	0	0.61	NO TREND
PRATO-PISTOIA	0	0.71	NO TREND

Le Tabelle 2-5 evidenziano un trend decrescente per tutte le tipologie stazioni di monitoraggio del PM10 nelle zone oggetto di studio, mentre per il PM2,5 al momento non è stato osservato alcun trend nelle stazioni di fondo, utilizzate per la valutazione dell'esposizione della popolazione, mentre si osserva un trend decrescente nella stazione di traffico.

L'acquisizione in tempo reale del numero di particelle tramite l'OPC ha permesso di valutare il profilo giornaliero medio della concentrazione numerica delle polveri in atmosfera. Le campagne di misura, tuttora in corso, sono state distribuite nel tempo in modo tale da poter valutare l'incidenza della stagionalità sia sul profilo dimensionale del particolato, sia sull'andamento giornaliero tipico, fino ad oggi sono state condotte campagne invernali e primaverili.

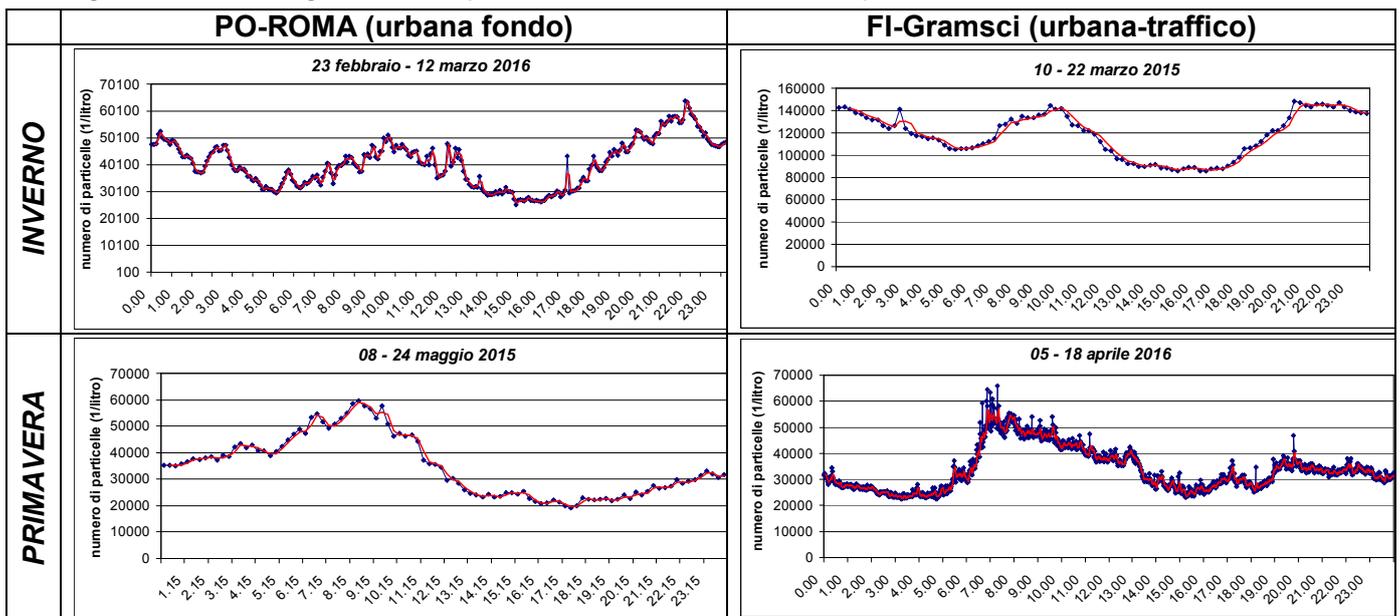
L'analisi dei dati ottenuti dalle misure mostra in ogni sito una netta prevalenza delle classi dimensionali più piccole e le particelle campionate sono distribuite quasi esclusivamente nelle classi dimensionali da 0.30µm a 0.65µm. Inoltre, il profilo medio della distribuzione dimensionale risulta simile per i vari siti presi in esame, senza variazioni di rilievo tra i vari periodi di

campionamento se non nel numero di particelle campionate, mediamente maggiore nel periodo invernale.

Il profilo del giorno medio, mostrato qui per la frazione dimensionale 0.30 µm per le campagne di FI-Gramsci e PO-Roma, fig.2, presenta alcune caratteristiche che in modo più o meno marcato sono costanti in tutte le campagne di misura, in particolare: un picco di concentrazione che si sviluppa dalle prime ore del mattino fino al primo pomeriggio, una fase di minimo che si verifica intorno a metà pomeriggio ed una nuova fase di accumulo nel corso delle ore notturne, quest'ultima molto rilevante per le campagne condotte nel periodo invernale, mentre risulta appena accennata per le campagne primaverili, per le quali il picco notturno risulta appena accennato.

In conclusione si delinea un ciclo giornaliero della concentrazione atmosferica delle polveri che appare tipico ed il cui profilo risulta fortemente dipendente non solo dalle condizioni emissive specifiche del sito, ma anche dalle caratteristiche di dispersione dell'atmosfera, tipiche delle diverse stagioni. In particolare, nel momento di maggior irraggiamento della giornata, tarda mattinata e primo pomeriggio, si instaurano dei moti convettivi che determinano un aumento dell'altezza dello strato di rimescolamento e condizioni favorevoli alla dispersione degli inquinanti, producendo quindi una diminuzione della concentrazione delle polveri e infatti proprio in corrispondenza di questo fenomeno si registra il livello di concentrazione minima della giornata. Nei periodi più caldi come la primavera e l'estate questo effetto dispersivo è molto più intenso e si protrae più a lungo nel corso del pomeriggio, ritardando e limitando l'effetto di accumulo notturno, che nelle campagne primaverili risulta solo accennato.

Figura 2. Profilo del giorno medio per la frazione dimensionale 0.30µm.



### Conclusioni

La popolazione della pianura tra Prato e Pistoia e nell'Agglomerato di Firenze risulta esposta a livelli di concentrazioni medi nel 2015 tra 25 e 31 µg/m<sup>3</sup>. Dall'analisi dei trend del particolato PM10 negli ultimi 13 anni si osserva una chiara tendenza alla diminuzione dei livelli di concentrazione in tutte le stazioni della rete regionale, mentre non si identifica un chiaro trend per il PM2,5. In ogni sito si osserva che le particelle campionate sono distribuite quasi esclusivamente nelle classi dimensionali da 0.30µm a 0.65µm. Pertanto, sebbene si osservi una chiara tendenza di diminuzione dell'esposizione della popolazione a PM10, risulta necessario proseguire un approfondimento sulla distribuzione delle frazioni granulometriche anche ai fini di una migliore valutazione dell'impatto sulla salute.

Sono in corso ulteriori campagne di analisi della distribuzione dimensionale nella zona per valutare la variabilità nelle diverse stagioni e per ampliare la mappatura del territorio in funzione della diversa tipologia di siti.

## Bibliografia

- [1] Progetto PATOS – Regione Toscana – 2015  
<http://servizi2.regione.toscana.it/aria/index.php?idDocumento=23512>
- [2] Rappresentatività spaziale delle stazioni della rete di monitoraggio di qualità dell'aria toscana – ARPAT, LAMMA – Marzo 2015  
[http://servizi2.regione.toscana.it/aria/img/getfile\\_img1.php?id=24329](http://servizi2.regione.toscana.it/aria/img/getfile_img1.php?id=24329)
- [3] Anttila P, Tuovinen JP. Trends of primary and secondary pollutant concentrations in Finland in 1994-2007. *Atmospheric Environment*, 2010, (44), 30-41.
- [4] Cortes, D.R., Hites, R.A., "Detection of Statistically Significant Trends in Atmospheric Concentrations of Semivolatile Compound" *Env. Sci.Tec* 34/13 (2000), 2826-2829
- [5] Gupta, I., Kumar, R. "Trends of particulate matter in four cities in India". *Atmospheric Environment*, 2006, (40), 2552–2566.
- [6] Hoogerbrugge R, Denier van der Gon HAC, Van Zanten MC, Matthijesen J. *Trends in particulate matter*, Bihlthoven, Netherlands research program on particulate matter, report 500099014 (2010)
- [7] European Environment Agency. "Air quality in Europe – 2012 Report", EEA report 4/2012
- [8] Cattani, G., Di Menno di Bucchianico, A., Dina, D., Inglessis, M., Notaro, C., Settimo, G., Viviano, G. Marconi, A. "Evaluation of the temporal variation of air quality in Rome, Italy from 1999 to 2008". *Ann Ist Super Sanità*, 2010, (46) 242-253.
- [9] G. Cattani, A. Bernetti, A.M. Caricchia, R. De Lauretis, S. De Marco, A. Di Menno di Bucchianico, A. Gaeta, G. Gandolfo, E. Taurino, Analisi dei trend dei principali inquinanti atmosferici in Italia 2003-2012, Rapporto 203/2014 (I.S.P.R.A.)
- [10] Ann Hessa, Hari Iyera, William MalmbGardner, Linear trend analysis: a comparison of methods 2000, *Atmospheric Environment* 35 (2001) 5211–5222
- [11] Martuzzi, M., Mitis, F., Iavaone, I., Serinelli, M. "Impatto sanitario di PM10 e ozono in 13 città Italiane". APAT, 2006.