

STUDIO DEL PARTICOLATO ATMOSFERICO CON TECNICHE NUCLEARI AL LABEC: linea di ricerca e esperimenti attivi in CSN5



Giulia Calzolari
Massimo Chiari
Pietro Ottanelli
Laura Caiazzo
Mariaelena Fedi
Lucia Liccioli



UNIVERSITÀ
DEGLI STUDI
FIRENZE

Franco Lucarelli
Silvia Nava
Fabio Giardi
Giulia Pazzi
Luca Carraresi
Serena Barone



Gli esperimenti attivi si inseriscono nella linea di ricerca basata sull'uso di tecniche nucleari (tecniche di analisi con fasci di ioni e misure di radiocarbonio con AMS) per lo studio del particolato atmosferico che, nel corso del tempo, si è concretizzata nelle sigle di CSN5:

SCRIBA, MASAI, NUTELLA, NUMEN, MANIA, DEPOTMASS, TRACCIA, ISPIRA, IS_ABS, AT_SVB

Il gruppo INFN si è affermato come riferimento mondiale per le analisi composizionali dell'aerosol, in particolare ad alta risoluzione temporale (~1 h).

AD OGGI, IL LABEC FA PARTE DI

LABEC hosts the **Elemental Mass Calibration Centre (EMC2)** of the European Centre for Aerosol Calibration, ECAC (www.actris-ecac.eu), of the **Aerosols, Clouds and Trace gases Research Infrastructure (ACTRIS)**, and acts as the European reference centre for the elemental characterization of atmospheric aerosols with IBA, XRF, ion chromatography and ICP-MS techniques.

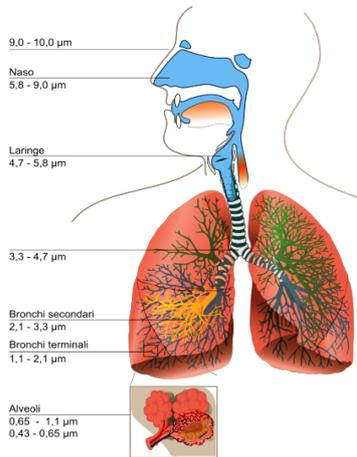


In the frame of the **Horizon 2020 research infrastructure RADIATE** (“**Research And Development with Ion Beams – Advancing Technology in Europe**”), LABEC offers trans-national access to the LABEC ion beam facilities, in particular (but not only!) the beam-line for PIXE-PIGE analysis of atmospheric aerosol to external users from public and private institutions and industry.



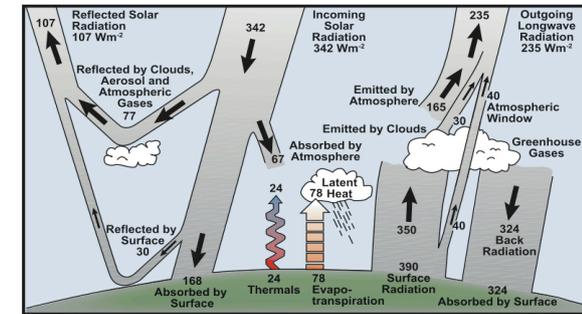
Aerosol atmosferici

- Particelle sospese in aria, solide e liquide, diametro < 100 μm
- Concentrazioni in aria: da $\sim 10^2 \text{ ng/m}^3$ fino a $\sim 10^2 \mu\text{g/m}^3$
- Importanti effetti sulla salute e sull'ambiente

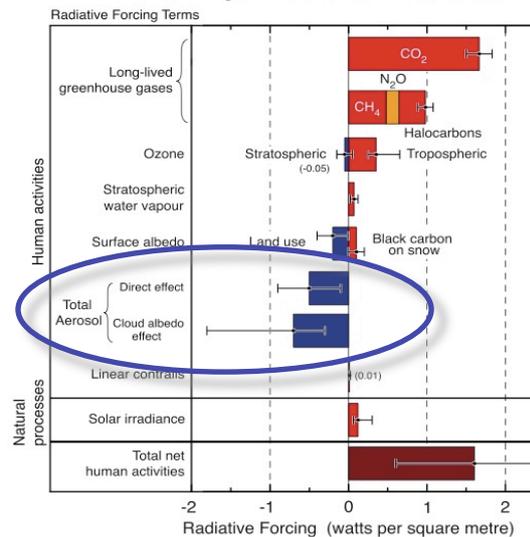


Funzionalità polmonare ridotta, tumori polmonari, mortalità per malattie cardiopolmonari e elevati tassi di mortalità prematura

Riduzione della visibilità, deposizioni acide, forcing climatico



Radiative forcing of climate between 1750 and 2005

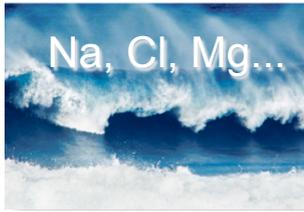


Identificazione delle sorgenti

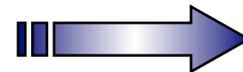
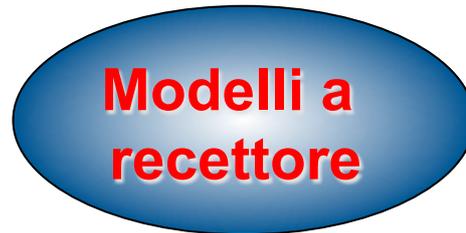
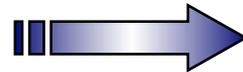
≠ monitoraggio
qualità dell'aria

Le diverse sorgenti emettono elementi con rapporti caratteristici che non cambiano durante il trasporto.

Markers



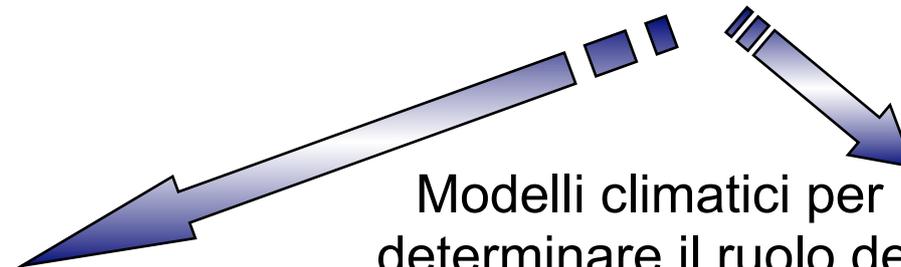
Massa e composizione del PM (al recettore)



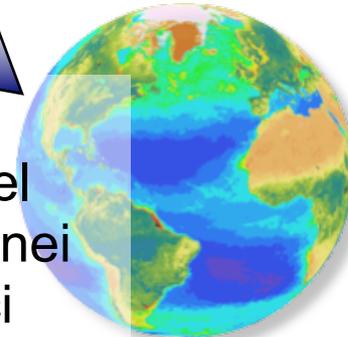
Identificazione delle sorgenti e del loro contributo al PM



Politiche di abbattimento dell'inquinamento per migliorare la qualità dell'aria



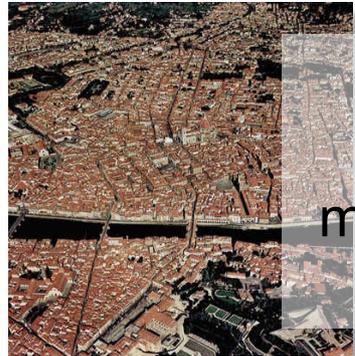
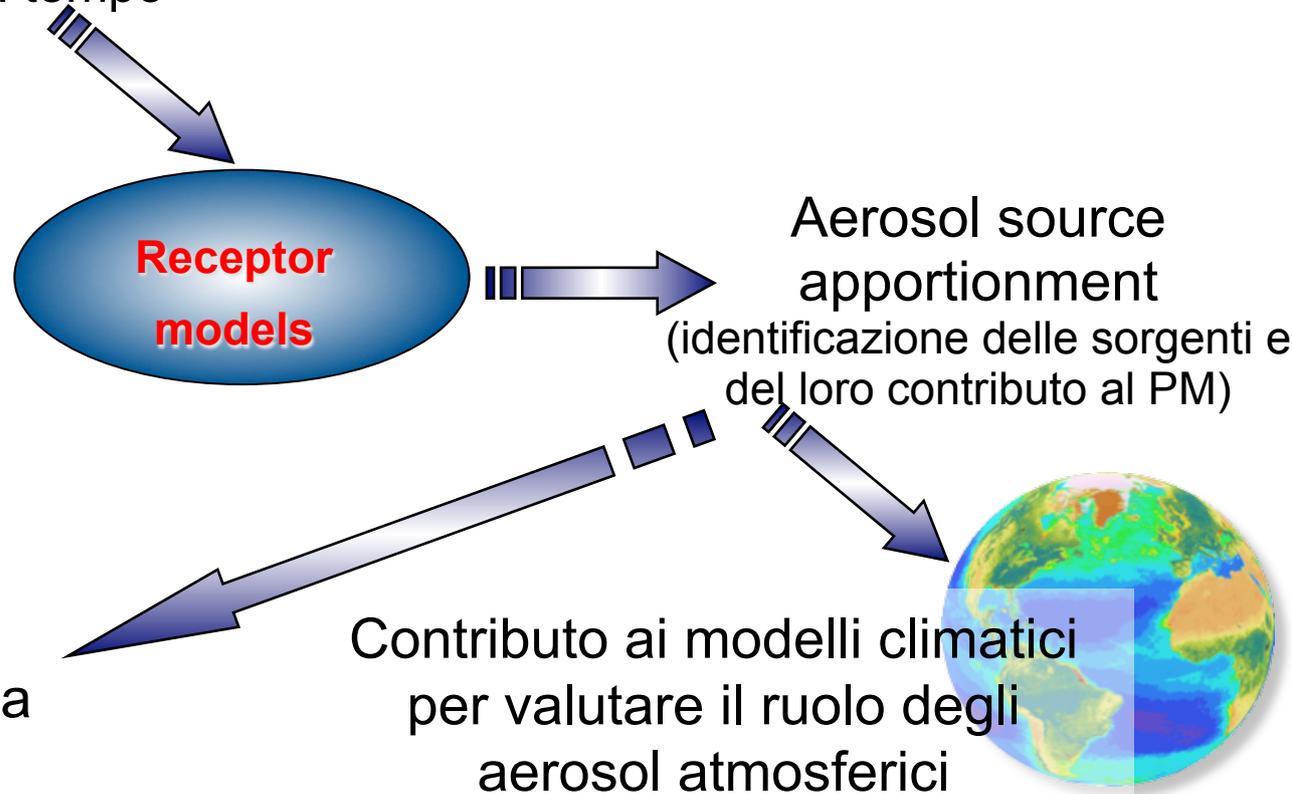
Modelli climatici per determinare il ruolo del particolato atmosferico nei cambiamenti climatici



Cosa serve?

Molti buoni dati relativi a :

- Concentrazioni e composizione del PM
- Distribuzioni dimensionali
- Evoluzione nello spazio e nel tempo
- Proprietà ottiche
- Marker specifici (es ^{14}C)
- ...



Contributo alle politiche per il miglioramento della qualità dell'aria

Contributo ai modelli climatici per valutare il ruolo degli aerosol atmosferici

Il ruolo della PIXE

Lo studio dell'aerosol è un campo multi-diciplinare, le tecniche nucleari forniscono solo una parte delle informazioni necessarie; inoltre, ci sono altre tecniche analitiche competitive.

La PIXE deve esser usata quando può dare **informazioni uniche** o può dare risultati in **un modo molto più semplice**.

- **Tempi di misura brevissimi**

(~ 60 s vs. vari m o h)

- **Analisi di campioni di massa ridotta**

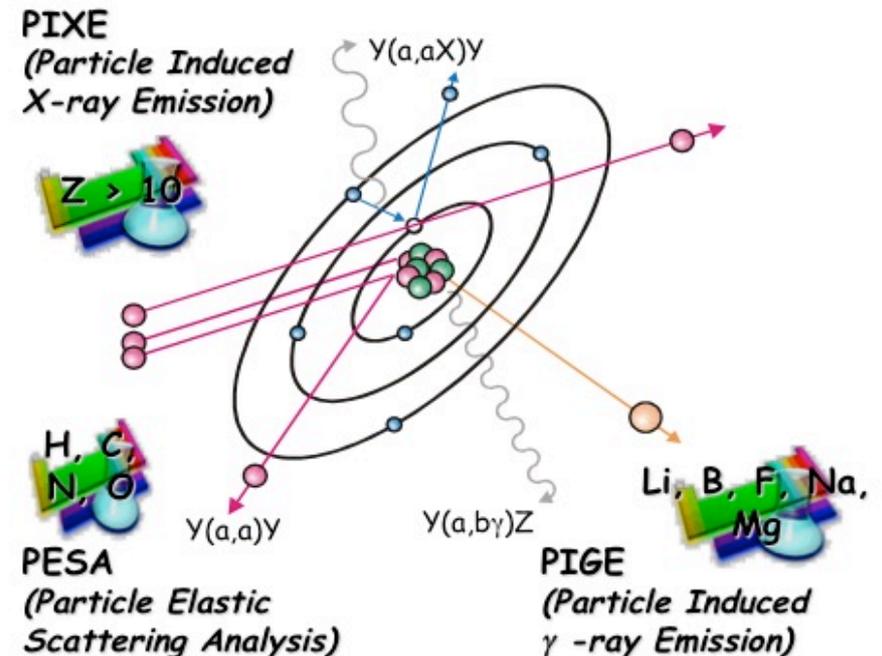
Campioni ad alta risoluzione temporale (1h)

- **Quantificazione di tutti gli elementi cristalli**

studio della componente minerale
(maggioritaria a livello globale)

- **Nessun pre-trattamento necessario**

fondamentale per campioni di massa molto ridotta (es., aerosol da siti remoti o polari)



Un set-up sperimentale che sfrutti pienamente le potenzialità della PIXE è un

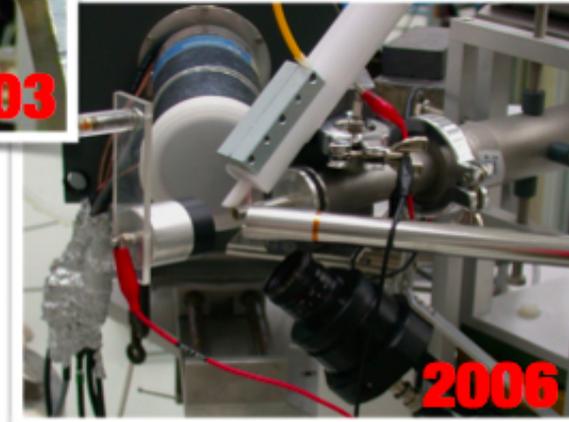
prerequisito essenziale

Evoluzione dei set-up PIXE per aerosol



2003

2 Si(Li):
 10 mm², 3 mm
 80 mm², 5 mm



2006

SDD: 7 mm², 0.3 mm
 Si(Li): 80 mm², 3 mm



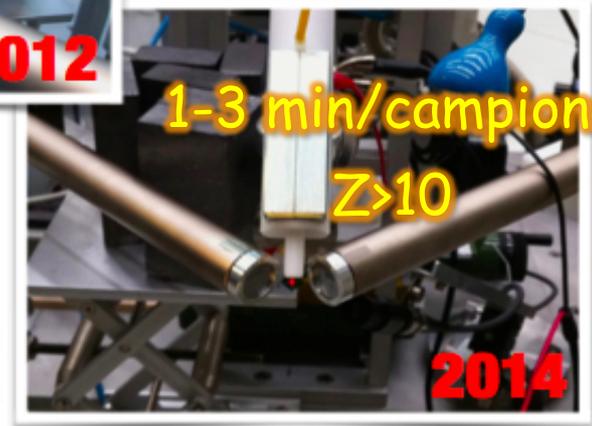
2012

SDDs: 7 mm², 0.3 mm
 80 mm², 0.5 mm

Funded by INFN grants
 (NUTELLA, NUMEN, MASAI)
 and EU LIFE+ AIRUSE project

Set-up in esterno:

- Facilità di posizionamento dei campioni
- Buona dissipazione termica: ridotta perdita di componenti volatili



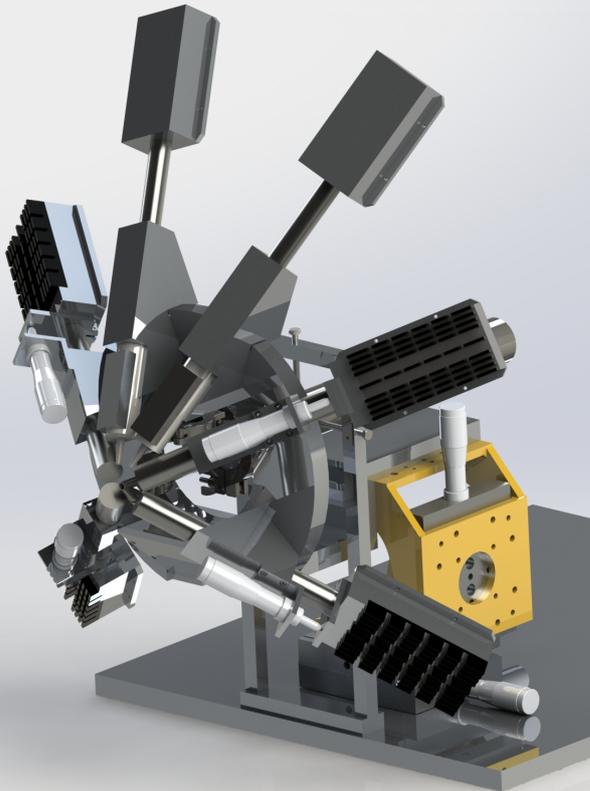
1-3 min/campione
 Z>10

2014

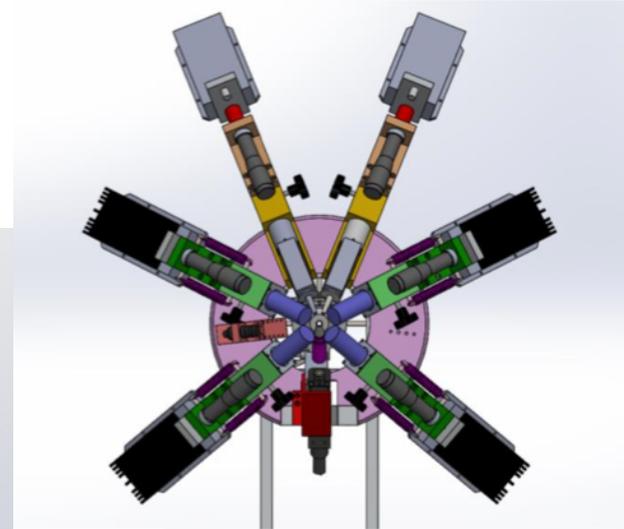
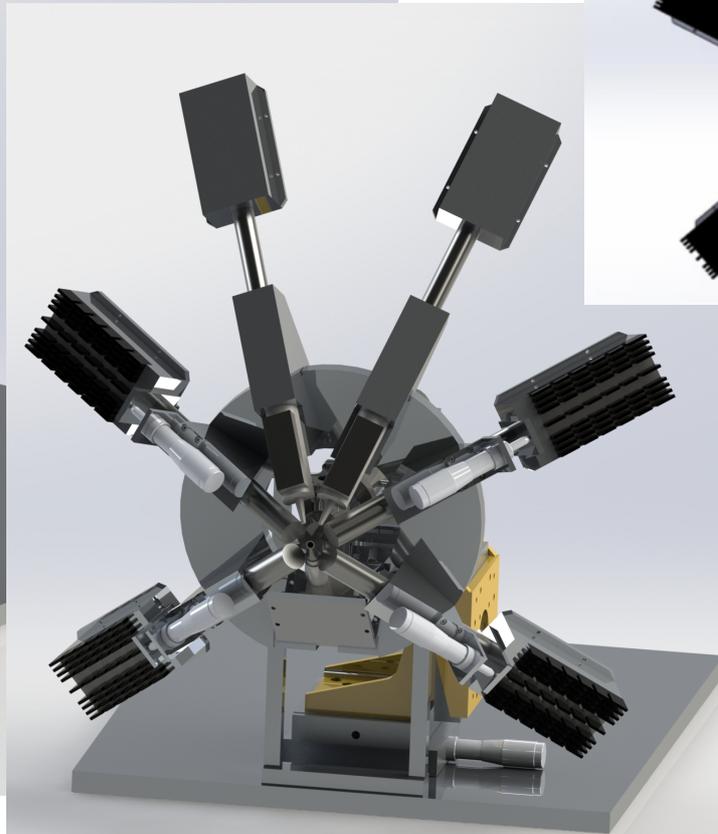
3 SDDs:
 30 mm², 0.5 mm
 2x 80 mm², 0.5 mm
 INFN grant MANIIA

Target	X-rays	What is needed	Detector features
Low-Z elements	Low energy High cross sections	Minimum dead layers Small solid angles	Thin entrance window Small active area
Medium-high-Z elements	High energy Low cross sections	Efficiency Large solid angles	Large active thickness Large active area

Evoluzione dei set-up PIXE per aerosol



Thanks to Carlo Cialdai

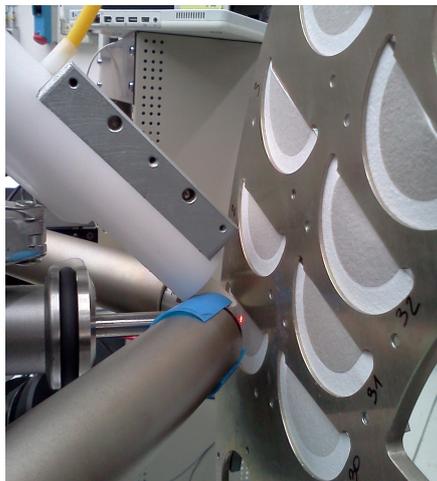


- 2 x SDD “small”
- 4 x SDD “big”
- 1 x SDD per misura Q
- (1 x HPGGe 60x23 mm, 28%, 1 keV @1.33 MeV)

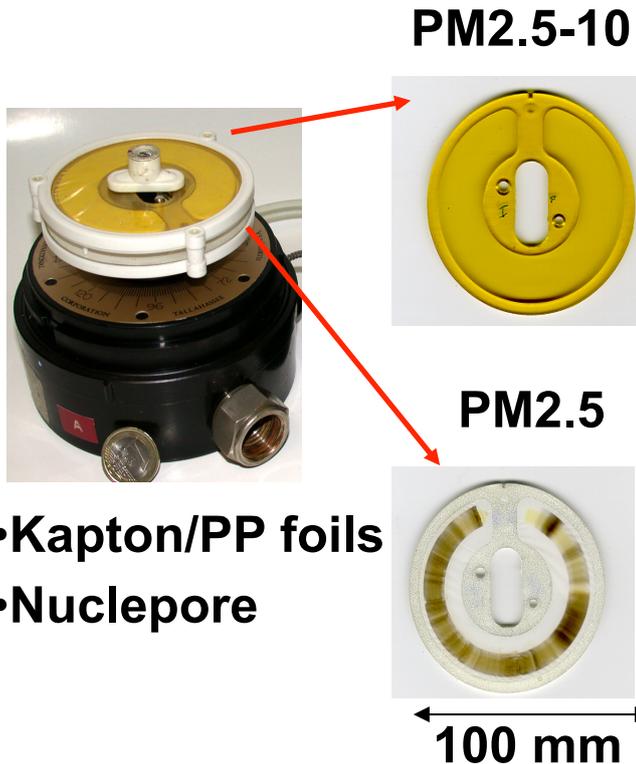
Nuovo sistema di acquisizione digitale (e gestione 8 canali)

Horizon 2020 **RADIATE**
PON PER-ACTRIS-IT

Campioni giornalieri e orari

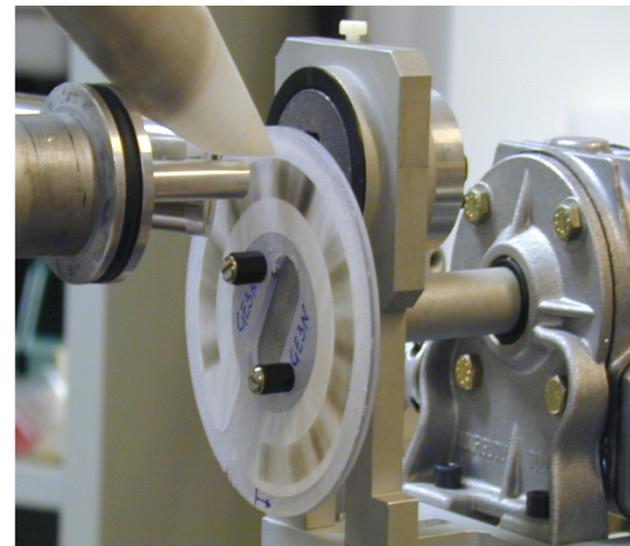


metà del filtro
analizzata con
metodi chimici)

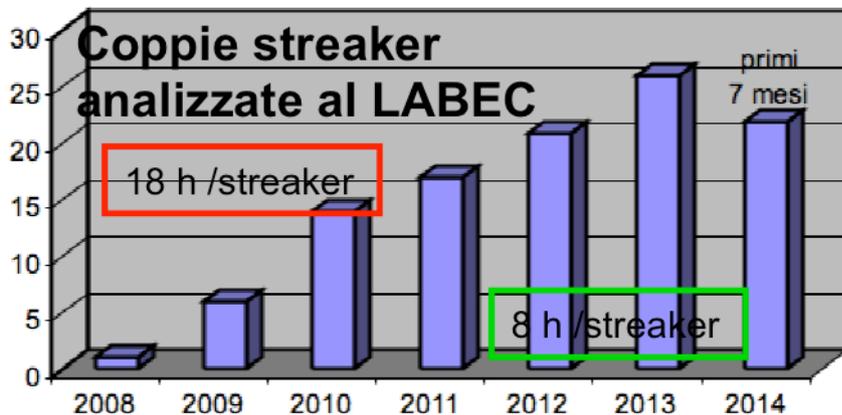


- Kapton/PP foils
- Nuclepore

Campionatore
continuo "Streaker"



Analizzando "punto per punto" i depositi è possibile ottenere la composizione dell'aerosol con risoluzione oraria, che consente di distinguere processi variabili nel tempo che sfuggono agli approcci tradizionali e/o riferiti alle norme per il controllo della qualità dell'aria (24h).



Nuovo campionatore STRAS

(TRACCIA, STRASPEED)

La risoluzione oraria è fondamentale per molti studi e miglioramenti nelle misure sono stati finanziati da più esperimenti CSN5 (MANIA, DEPOTMASS), basati sull'uso dello Streaker.

Sviluppato un nuovo campionatore con separazione dimensionale a $2.5 \mu\text{m}$, ossia che raccoglie su due diversi supporti le particelle con diametro inferiore a $2.5 \mu\text{m}$ e con diametro nel range $2.5\text{-}10 \mu\text{m}$. Inoltre, sviluppato anche il taglio a $1 \mu\text{m}$.

Il nuovo campionatore raccoglie il particolato con:

- Maggior densità superficiale, quindi aumentando la sensibilità della tecnica PIXE
- Maggior affidabilità

Già in uso nel progetto PRIN2017 RHAPS (Redox-activity and Health-effects of Atmospheric Primary and Secondary aerosol)!!

E entro pochi mesi in campagne a Barcellona e Capo Verde. Inoltre, in un proposal PRIN (TEMA3) per studio del particolato in Artide.



Progetti non-INFN

LABEC hosts the **Elemental Mass Calibration Centre (EMC2)** of the European Centre for Aerosol Calibration, ECAC (www.actris-ecac.eu), of the **Aerosols, Clouds and Trace gases Research Infrastructure (ACTRIS)**, and acts as the European reference centre for the elemental characterization of atmospheric aerosols with IBA, XRF, ion chromatography and ICP-MS techniques.



In the frame of the **Horizon 2020 research infrastructure RADIATE** (“**Research And Development with Ion Beams – Advancing Technology in Europe**”), LABEC offers trans-national access to the LABEC ion beam facilities, in particular the beamline for PIXE-PIGE analysis of atmospheric aerosol to external users from public and private institutions and industry.



Alcuni progetti attivi:

- PRIN2019 RHAPS (Redox-activity and Health-effects of Atmospheric Primary and Secondary aerosol) (UniFI)
- PNRA SIDDARTA (INFN)
- BRIC2019 VAISAL (Valutazione ambientale e impatto sanitario di inquinanti organici emergenti, quali ritardanti di fiamma bromurati, sostanze perfluoroalchiliche e inquinanti inorganici tossici, in ambienti di lavoro)

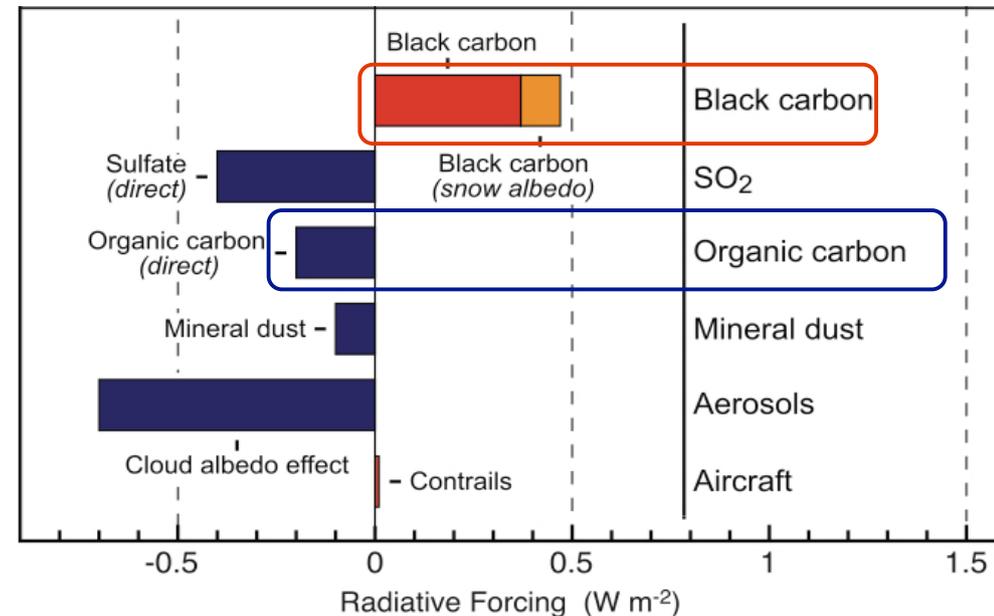
Alcuni progetti conclusi:

- Progetto europeo Life+ AIRUSE (“Testing and Development of air quality mitigation measures in Southern Europe”)
- Acciaieria Taranto, Port Talbot; Inceneritore Montale
- Megacities (Pechino, Delhi)

Aerosol carboniosi

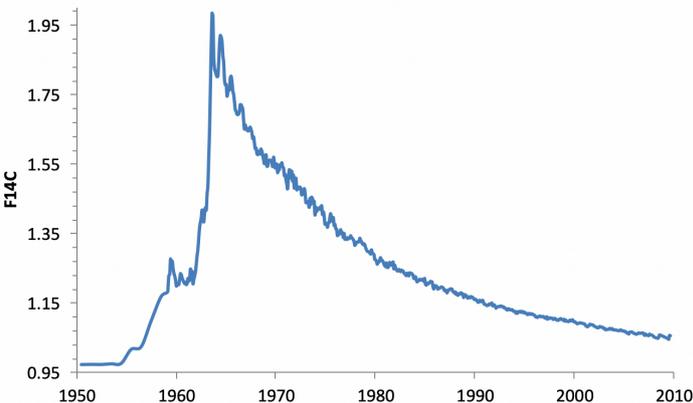
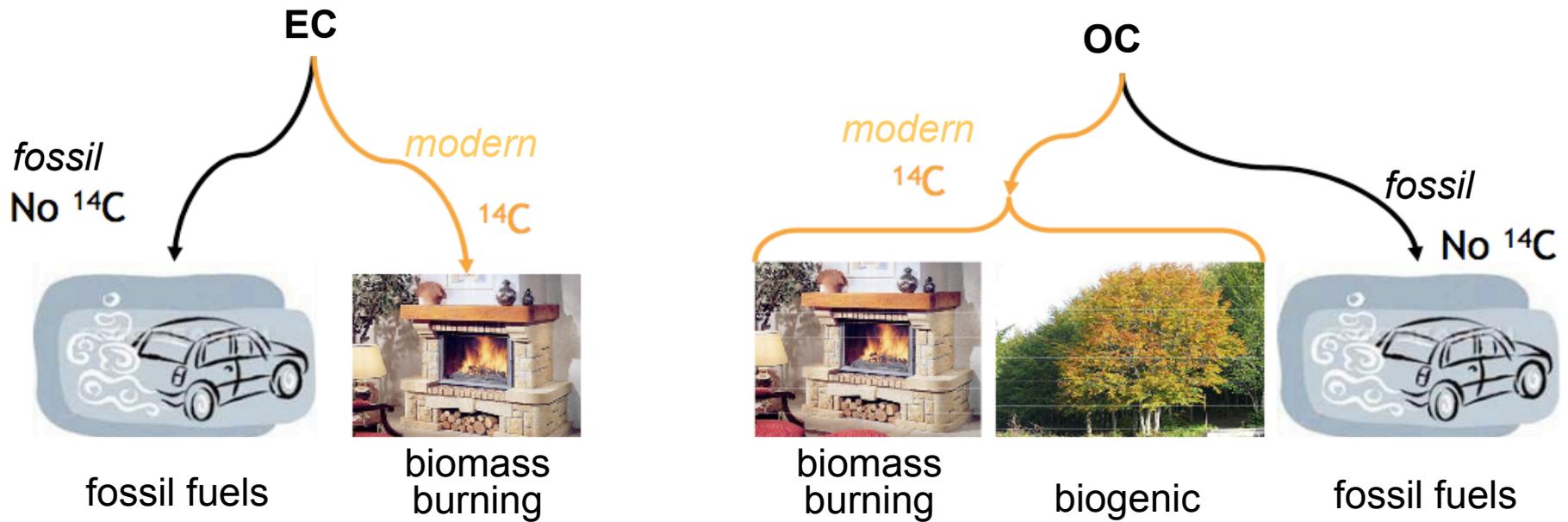
- Tipicamente la componente maggioritaria (~40% dell' aerosol urbano); molteplici forme sia chimiche sia fisiche.
- Total C (TC) = Elemental C (EC) + Organic C (OC)

	EC	OC
% TC	~20	~80
optical properties	light-absorbing	light-scattering
sources	incomplete combustion processes	combustion processes, natural



Modello a 3 sorgenti

- Materiali fossili: $f_{m,fossil} = 0$ materiali contemporanei: $f_{m,mod} > 1$



$$(EC/OC)_{ER,bb}$$

[Szidat et al., 2006]



ISPIRA

Integrazione di metodologie sperimentali per la ricerca sull'aerosol carbonioso

Mariaelena Fedi
(per l'unità di Firenze)

ISPIRA in pillole

MILANO (rn), FIRENZE e GENOVA
2020-2022

- Creare una rete diffusa di preparazione → nuova linea @Mi
- Ottimizzare i tempi di preparazione
- Studiare come dipendono le correnti estratte in macchina in funzione delle condizioni di preparazione

Gli obiettivi

Riuscire a ricostruire le sorgenti emettitrici della frazione carboniosa del particolato atmosferico (fino a 50% wgt)

- ✓effetti sulla salute
- ✓effetti sull'ambiente

Gli strumenti

^{14}C -AMS

Misure ottiche del coefficiente di assorbimento per luce bianca

Le sfide

^{14}C -AMS: lavorare con campioni piccolissimi
Riuscire a misurare i coefficienti di assorbimento sul più ampio range spettrale possibile
Costruire un modello (SA) robusto

Anagrafica

- Mariaelena Fedi (RL) 40%
- Lucia Liccioli 40%
- Giulia Calzolari (20%)
- Franco Lucarelli 30%
- Silvia Nava 40%
- Massimo Chiari (10%)
- Marco Manetti (20%)
- Serena Barone



Il contributo di Firenze

WP 1: Progettazione e realizzazione di strumentazione avanzata per la caratterizzazione dell'aerosol carbonioso

KT 1.2: realizzazione delle nuove camere di grafitizzazione @Mi
KT 1.4: test della nuova linea di preparazione campioni

WP 2: Campagne di misura e caratterizzazione dei campioni

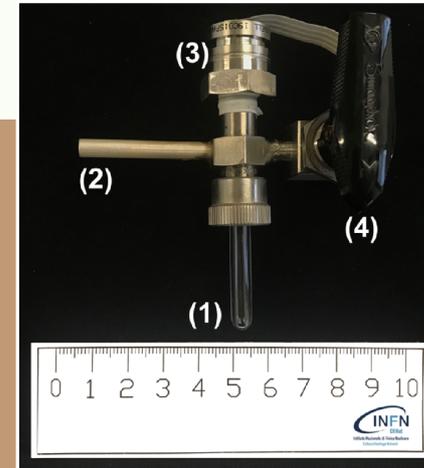
KT 2.1: campagna di campionamento
KT 2.3: misure ^{14}C -AMS e analisi dati

WP 3: Implementazioni modernistiche

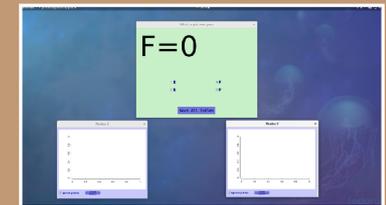
KT 3.1: Ottimizzazione e integrazione dei modelli di *source apportionment*

ISPIRA NEL 2020

- Progettazione delle camere di grafitizzazione (sulla base dell'esperienza acquisita con **CHNet_Lilliput**) con upgrade dei sensori di vuoto
- Test di riproducibilità delle caratteristiche di resistenza dei campioni prodotti e dei tempi di reazione (massa campioni ~ 50 μg)
Sfruttate le camere di grafitizzazione di CHNet_Lilliput; turno misura nella settimana 29/6 \rightarrow analisi dati in corso
- Realizzazione sistema di acquisizione e visualizzazione delle pressioni



- (1)camera calda
- (2)dito freddo
- (3)sensore di pressione
- (4)valvola di separazione

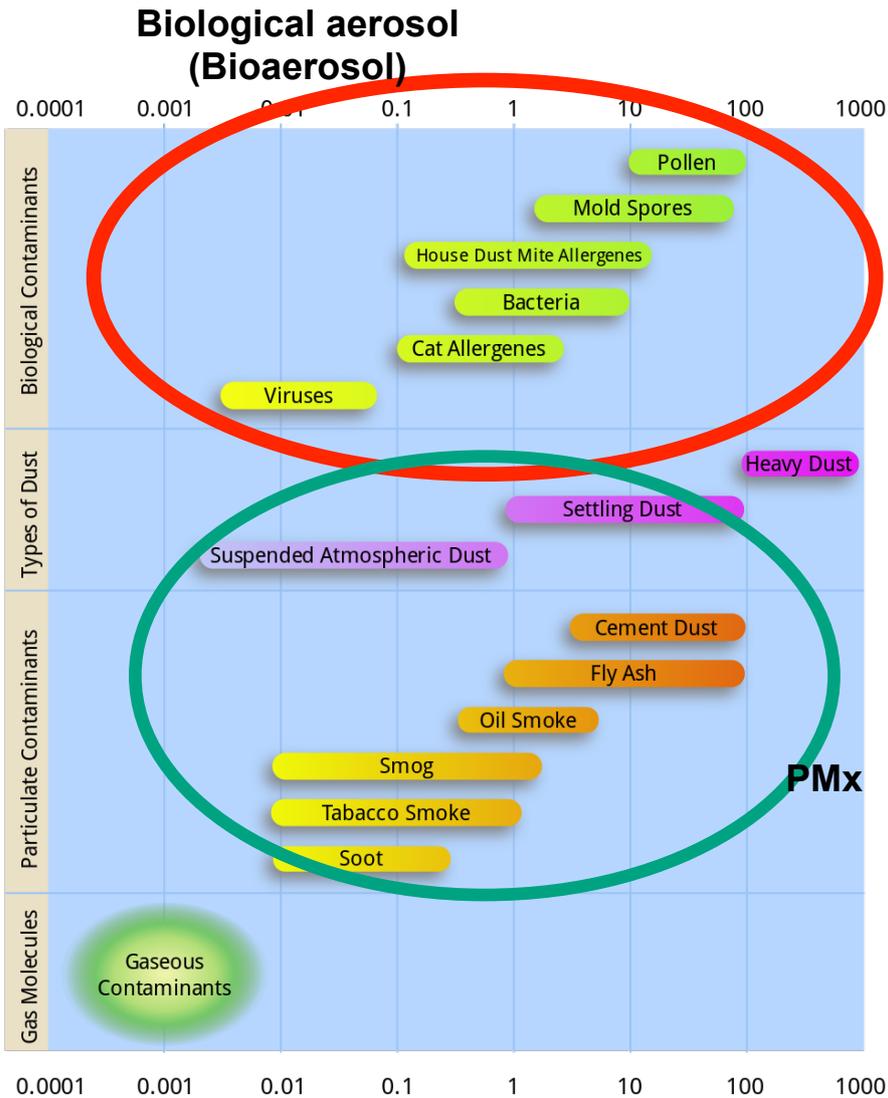


IS-ABS

Integrated System for Aerosol and Bioaerosol Studies at the Pierre Auger Observatory

INFN Units participating in IS-ABS: Florence, Genoa, Lecce

WHY IS_ABS: AIM and MOTIVATION



Types, and size distribution in micrometres, of atmospheric particulate matter

Aerosol and bioaerosol particles have a large impact on climate, environment and health, which depends on particle size and chemical composition, optical properties (e.g. scattering and absorption coefficients) and bioaerosol types. The biological component of atmospheric aerosol (bio-aerosol) is a relevant subject of scientific investigation but the mechanisms of interaction between bio-aerosols and other aerosols, the behavior of airborne micro-organisms in different atmospheric conditions and the impact of bio-aerosols on radiation and clouds are still poorly known and requires deeper investigation

WHY IS_ABS: AIM and MOTIVATION

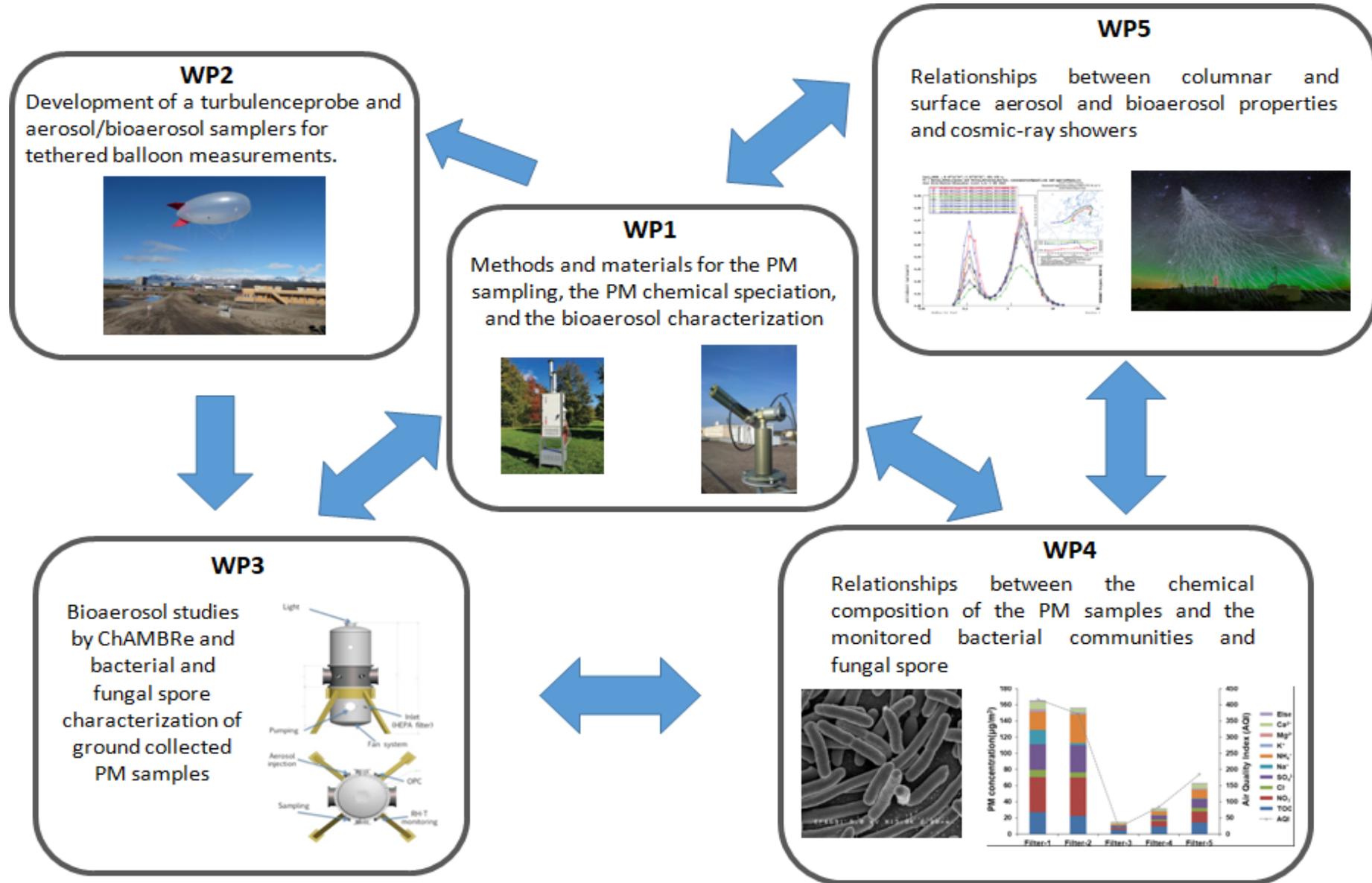
In IS_ABS we want to implement, at the **Pierre Auger Observatory**, which is a **remote** site (69° W, 35° S) about 1.4 km above sea level, away from large sources of local pollution, **an integrated monitoring station** based on a **Particulate Matter (PM) sampler** and a **solar sun/sky photometer** in order to:

1. characterize **aerosols** and **bioaerosols** properties;
2. study, with the help of the simulation chamber ChAMBRé (INFN-Ge), the **correlation between bacteria viability and concentration levels of specific pollutants** as resulted from the obtained results/insights;
3. investigate their impact to the **atmospheric transmissivity**

High-energy ($>10^{18}$ eV) cosmic rays are measured by recording the extensive air showers of secondary particles they produce in the atmosphere, which is used as a giant calorimeter. Charged particles excite atmospheric nitrogen molecules that emit fluorescence light. From their production point to the detection points (telescope), photons can be scattered by molecules (Rayleigh scattering) and/or atmospheric aerosols (Mie scattering) → **atmosphere needs to be well known!**

4. **develop and test of miniaturized devices** to be mounted on **board of a tethered balloon** for future aerosol and bioaerosol sampling at different heights and studies on atmosphere convective motion (turbulence probe).

HOW IS_ABS: ACTIVITY ORGANIZATION



HOW IS_ABS: Aerosol and Bioaerosol sampling and characterization (WP1)

5 monitoring campaigns: the first one to determine sampling conditions. The other in order to have more statistics and data in different period of the year

LABEC, INFN Florence

PM elemental composition by PIXE (Particle-Induced X-ray Emission), PIGE (Particle-Induced γ -ray Emission), Ion Beam Analysis, Ion Chromatography, Thermo-Optical-Transmittance Analysis

PM samples



INFN Lecce (collaboration with DISTEBA, University of Salento)

Metagenomics Analyses (identification of bacterial communities in PM samples), **Genotoxicity and Ecotoxicity tests** (to assess the PM impact on human health and the environment)

INFN Genoa

Complementary studies on the PM samples by the atmospheric simulation chamber **ChAMBRé (Chamber for Aerosol Modelling and Bio-aerosol Research)**

IS_ABS: STATUS

Signed a MoU with the Auger Observatory; purchased and tested the PM sampler; calibrated the sun/sky photometer in order to be included in AERONET; Instruments are now at the Auger Observatory but... the pandemic situation limits trips.

WP/Milestone	I Year												II Year												III Year														
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36			
WP0																																							
M0 Approval from technical board of Auger collaboration and instrument installation						♦																																	
WP1																																							
WP1 sampling campaigns																																							
Results from PM characterization and pollution source identification																																							
WP2																																							

INFN Unit	Surname	Name	Ruolo	FTE
Firenze	Calzolari	Giulia	Researcher	0.3
Firenze	Lucarelli	Franco	Associate professor	0.5
Firenze	Nava	Silvia	Associate professor	0.4
Firenze	Chiari	Massimo	Senior researcher	0.1
Firenze	Carraresi	Luca	Researcher	0.3
Milano	Vecchi	Roberta	Associate professor	0.2

IS_ABS: ANAGRAFICA

Still on Bioaerosol: proposal PRIN RAMBO (Investigating the Relationship among Air quality, Meteorological conditions and BiOaerosol) – INFN, CNR, UnoGE, UniNA, UniSAL

Project Proposal

AT_SVB

Airborne **T**ransmission of **S**ARS-CoV-2,
Viruses and **B**acteria in workplaces

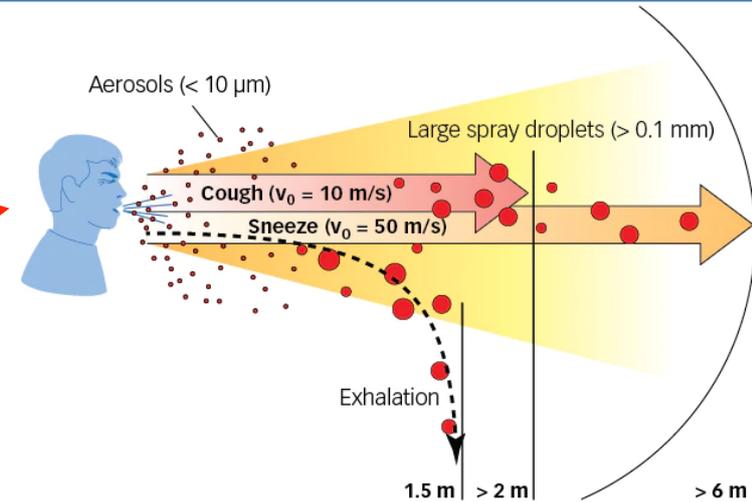
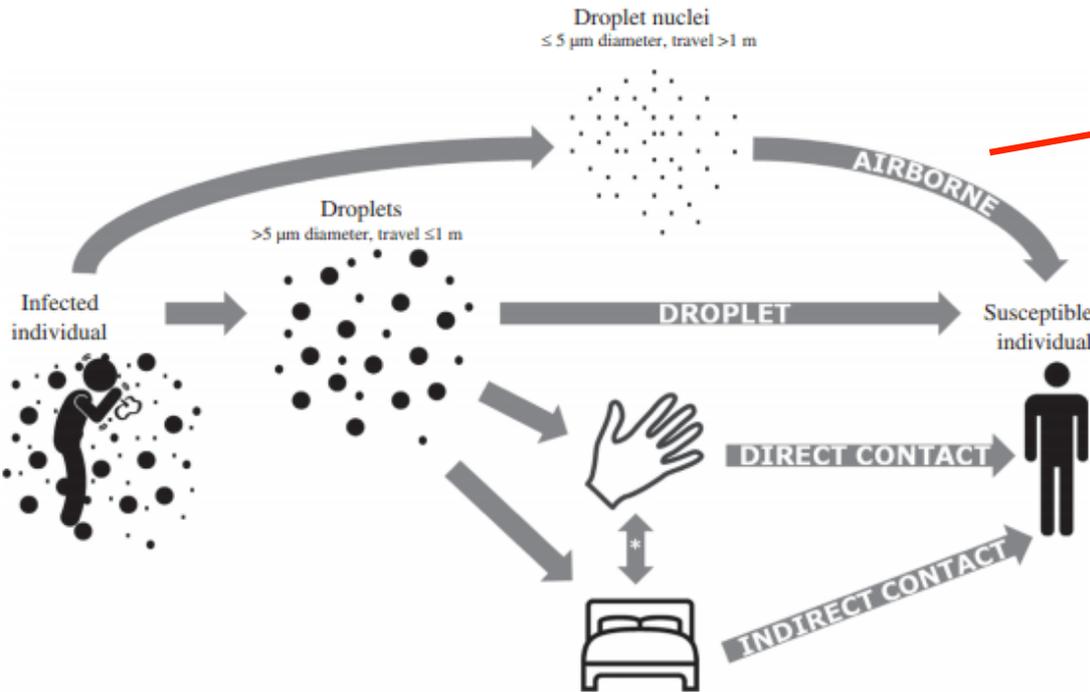


Istituto Nazionale di Fisica Nucleare

INFN Units participating in AT-SVB: Lecce and Florence



SARS-CoV-2 Transmission



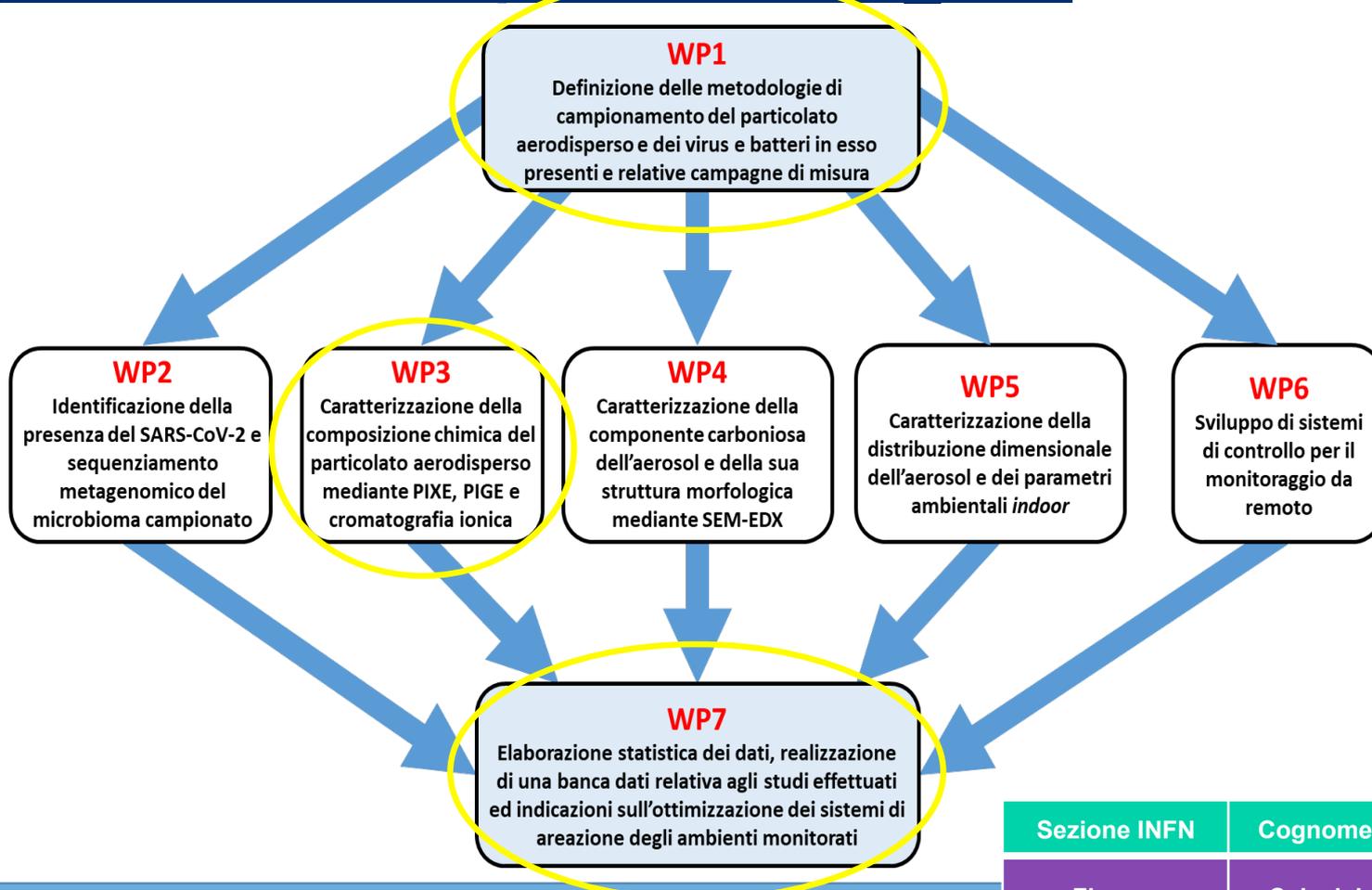
Oltre alle modalità di trasmissione del SARS-CoV-2 tramite contatto diretto con un individuo infetto o mediante una superficie contaminata dal virus, è anche possibile contrarre la malattia per via aerea tramite goccioline portatrici del virus (generalmente >5 µm) dovute a tosse o starnuti, o in seguito all'emissione di aerosol (con dimensioni < 5 µm) mentre un individuo infetto respira o parla.

In quest'ultimo caso, sono maggiori le probabilità che l'aerosol con una carica virale sufficiente da poter generare una nuova infezione rimanga in sospensione per diverse ore in un ambiente *indoor*

I principali obiettivi del progetto **AT_SVB**

- Determinare metodi di monitoraggio e analisi dell'aerosol per l'“early” identificazione della presenza di **SARS-CoV-2 e altri aerosol patogeni in luoghi di lavoro** (laboratori, uffici, etc.)
- Identificare le relazioni tra **aerosol patogeni, distribuzioni dimensionali e composizione delle particelle di aerosol** in funzione di (1) **parametri meteorologici** (es., temperatura, umidità relativa) e (2) **condizioni di aerazione dei luoghi di lavoro** (nessuna aerazione, ricambio d'aria, ventilazione forzata, sistemi di condizionamento) per definire le condizioni operative di monitoraggio
- Identificare possibili **vie di trasmissione virale e batterica** per mezzo di campionamenti simultanei **indoor e outdoor dell'aerosol**
- Sviluppare **sistemi automatici di monitoraggio del bioaerosol**

Struttura dell'esperimento AT SVB



Progetto di due anni: le attività del primo anno permetteranno di individuare gli ambienti più a rischio e le condizioni operative, su cui concentrarsi nel secondo anno, ottimizzando le condizioni di ventilazione e il tipo di campionamenti/misure da effettuare.

Sezione INFN	Cognome	Nome	Ruolo	FTE
Firenze	Calzolari	Giulia	Ricercatore (Resp. Locale)	0.2
Firenze	Lucarelli	Franco	Prof. Associato	0.2
Firenze	Nava	Silvia	Prof. Associato	0.2
Firenze	Chiari	Massimo	Ricercatore	0.1
Firenze	Carraresi	Luca	Ricercatore	0.3

In conclusione:

- Le informazioni ottenibili con tecniche nucleari sull'aerosol sono molteplici
- Le tecniche nucleari danno informazioni uniche o sono comunque estremamente competitive rispetto ad altri tipi di tecniche
- Molti progetti attivi sulla linea di ricerca dell'aerosol, sia di sviluppo tecnologico sia di applicazione delle tecniche.
- Fondamentale la collaborazione con altri campi della fisica e della scienza e la comunicazione con la società.

Grazie per l'attenzione