

ANÁLISIS DE LA ESTIMACIÓN DE LAS EMISIONES PARA SU USO EN MODELOS DE TRANSPORTE QUÍMICO

Jon Arrizabalaga Ibarzabal⁽¹⁾, Alberto Cansado Auria⁽¹⁾

(1) AEMet, Leonardo Prieto Castro 8, 28040 Madrid

email: jarrizabalagai@aemet.es

1. Introducción

Los efectos en la salud y en los ecosistemas de la contaminación atmosférica generada por las actividades del ser humano en las sociedades actuales exigen un control sobre las concentraciones y la química atmosférica de los gases.

La atmósfera es un sistema extremadamente complejo en el que numerosos procesos físicos y químicos se producen de forma simultánea. Las medidas puntuales sólo nos proporcionan una visión muy parcial de lo que ha sucedido en un lugar y un momento concreto. Por otro lado, la comprensión de los fenómenos individuales que tienen lugar en la atmósfera no significa necesariamente que entendamos el sistema en su conjunto.

Todo ello ha impulsado el uso de modelos matemáticos, tanto los estadísticos como los que describen los procesos físico-químicos fundamentales, como herramientas que integran el conocimiento de los procesos que tienen lugar en la atmósfera y que estudian las interacciones que se producen entre dichos procesos. Por ejemplo, hace aproximadamente dos décadas se constituyeron los primeros Modelos de Transporte Químico 3D que podríamos definir como conjuntos de conocimientos e hipótesis físico-químicos, que se expresan en forma de ecuaciones matemáticas y que se resuelven de forma aproximada con una potencia computacional enorme (Delmas *et al.*, 2005).

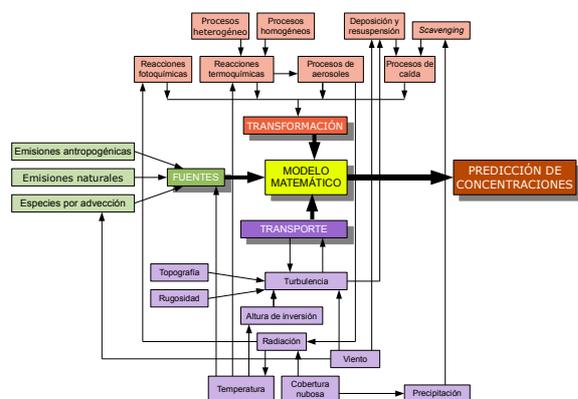


Fig. 1.- Ejemplo de los elementos de un Modelo de Transporte Químico y sus interacciones, adaptada de *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change* (Seinfeld, J.H, Pandis, S.P., 2006).

Además de los procesos contenidos en los modelos de predicción numérica del tiempo atmosférico, cuyo conocimiento se ha visto impulsado por un interés creciente de amplios sectores de la sociedad, los modelos de transporte químico requieren una descripción cuidadosa y detallada de los procesos químicos que tienen lugar en la atmósfera (química homogénea y heterogénea, formación de aerosoles, etc.) así como las interacciones radiación-química y radiación-aerosoles. Resulta igualmente imprescindible conocer, de la forma más realista posible, las emisiones de especies contaminantes. Estas sirven como dato de entrada a los modelos que describen los procesos físico-químicos en la atmósfera (figura 1).

2. Información de emisiones

Durante el vertiginoso desarrollo industrial de los países occidentales la preocupación por la repercusión ambiental y sanitaria, en especial de las actividades industriales, fue en aumento y se desarrollaron múltiples convenios y programas internacionales con criterios de seguimiento y control administrativo y legislativo de los sectores potencialmente contaminantes.

El *Convention on Long-range Transboundary Air Pollution (LRTAP)*, conocido como el Convenio de Ginebra de 1979 (España lo ratificó en 1982), tiene entre sus objetivos el limitar y reducir gradualmente las emisiones de la contaminación atmosférica y ha obligado a los países que lo han firmado a la realización de inventarios anuales que muestren la cantidad total de emisión de distintas especies químicas por cada sector de actividad económica y productiva de cada región o país.

A nivel europeo, estos inventarios se elaboran siguiendo la guía EMEP/EEA (conocida anteriormente como EMEP/CORINAIR) realizadas por la Agencia Europea del Medio Ambiente, *European Environment Agency (EEA)*, en la que se recogen los métodos de cálculo de las emisiones de las distintas especies químicas emitidas por las actividades vinculadas a múltiples sectores socio-económicos (denominadas emisiones *antropogénicas*) y las propias emisiones *biogénicas* asociadas principalmente a la vegetación y otras propias de los procesos de la naturaleza que son

relevantes en la formación de contaminantes secundarios (O₃, PAN, etc.).

En España, el 97% de las emisiones inventariadas de SO₂ y NO_x y el 64% de CO se deben al transporte, a la industria del sector energético y a la combustión en industria y en el sector residencial y servicios, mientras que el sector agrícola y ganadero es responsable del 97% del NH₃ emitido a nivel estatal, según la edición 2011 del Inventario de emisiones a la atmósfera, publicado por el Ministerio de Medio Ambiente, y Medio Rural y Marino.

Este tipo de información y otros de control más exhaustivo a actividades potencialmente contaminadoras (análisis de contaminantes en chimenea, inspecciones rutinarias por legislaciones vigentes, etc.) son usados como base de datos para estimar las emisiones que se deben utilizar, por ejemplo, para la modelización de la contaminación atmosférica.

2.1. Clasificación de emisiones

Con el fin de unificar criterios de estimación, de comparación y de control de las emisiones entre distintas regiones o países, los distintos programas y convenios internacionales han establecido, entre otras particularidades, la nomenclatura SNAP (*Selected Nomenclature for Air Pollution*), u otras como NFR (*Nomenclature For Reporting*) y CRF (*Common Reporting Format*), sobre emisiones contaminantes a la atmósfera de actividades potencialmente contaminantes.

La nomenclatura SNAP clasifica estas actividades con un código de 6 dígitos (2 por nivel). En el caso de España, según el inventario publicado en 2011, existen 498 actividades (nivel 3), que se agrupan en 78 sub-grupos (nivel 2), que a su vez están asociadas a los 11 grupos (nivel 1) conocidos usualmente, los cuales (ver tabla 1) son los considerados como base de estimación, comparación y control de emisiones.

SNAP (nivel 1)	Nombre de SNAP
1	Combustión en la producción y transformación de la energía
2	Plantas de combustión no industrial
3	Plantas de combustión industrial
4	Procesos industriales sin combustión
5	Extracción y distribución de combustibles fósiles y energía geotérmica
6	Uso de disolventes y otros productos
7	Transporte por carretera
8	Otros modos de transporte y maquinaria móvil
9	Tratamiento y eliminación de residuos
10	Agricultura
11	Naturaleza

Tabla 1.- Nivel 1 de la nomenclatura SNAP que clasifica las fuentes.

Actualmente la codificación unificada utilizada por el Convenio LRTAP es la NFR .

2.2. Base del cálculo

El cálculo básico de la estimación de las emisiones de las actividades potencialmente contaminantes (indiferente al uso de la codificación sectorial) se puede simplificar a la siguiente expresión:

$$E_{act,q} = FE_{act,q} \times A_{act,q} \quad (1)$$

siendo $E_{act,q}$ la emisión de la especie química q en la actividad act , $FE_{act,q}$ el factor de emisión estimado de la especie química q en la actividad act y $A_{act,q}$ el nivel de actividad act realizada que emite la especie química q .

3. Estimaciones de las emisiones en malla

Las necesidades de los Modelos de Transporte Químico de una estimación adecuada de las emisiones han ocasionado que existan múltiples metodologías de trabajo de distintos grupos internacionales, que partiendo de los inventarios nacionales oficiales y/o estimaciones propias, fundamentadas en investigaciones de este amplio campo, estiman la emisión anual de la especie química q por el sector s (SNAP o NFR) en el punto (i,j) de la malla $Ea(i,j)_{s,q}$.

Dentro del mencionado programa EMEP/EEA, basándose en inventarios nacionales oficiales anuales que cada país debe proveer en un plazo máximo de 13,5 meses, se genera una malla de 50x50km² de resolución que contiene las cantidades anuales emitidas de NO_x, SO₂, COVNM (Compuestos Orgánicos Volátiles No Metánicos), NH₃, CO, PM (material particulado), metales pesados y COP (Compuestos Orgánicos Persistentes), desagregadas incluso por sectores.

Complementariamente, a lo largo de la última década se han ido buscando nuevas metodologías, tanto para estimar las cantidades emitidas como para generar unas entradas a los modelos con distribuciones espaciales y temporales de las emisiones acordes con el propósito de cada proyecto de investigación. Algunos de estos proyectos científicos para mejorar la estimación de los inventarios han sido: el proyecto GEMS, que continua con el MACC, SMOKE y su versión europea SMOKE-EU, EDGAR, MEGAN, HERMES, etc. Esta gran labor ha ocasionado la existencia de diversas estimaciones de emisiones distribuidas en mallas de resolución y dominios que los investigadores y usuarios definen por sus necesidades de modelización.

Dada la complejidad de la tarea de generar una distribución espacial y temporal de las emisiones de

los distintos compuestos químicos atmosféricos, la estimación para un período concreto se suele posponer por el tiempo necesario para recopilar y difundir información, realizar las aproximaciones oportunas y solventar errores.

Estas aproximaciones a las emisiones, generalmente, se basan en dos metodologías básicas conocidas como *bottom-up* y *top-down*.

3.1. Bottom-up

Esta metodología se usa cuando la fuente de contaminación a evaluar es una fuente localizada (puntual, lineal o área) y se conoce el factor de emisión referente al tipo de actividad generadora de la emisión de los gases contaminantes (establecido en normas legislativas de emisión y recogidas en la guía EMEP/EEA) y el nivel de actividad de la fuente (como por ejemplo, las horas de funcionamiento, la Intensidad Media Diaria (IMD) del tráfico).

Una vez que se dispone de esa información de la emisión anual $Ea(i, j)_{s, act, q}$ de la especie química q por la actividad act del sector s llevada a cabo dentro del área correspondiente al punto (i, j) se puede obtener la emisión anual del sector s sumando las de las actividades sectoriales según clasificación SNAP o NFR.

$$Ea(i, j)_{s, q} = \sum_{act} Ea(i, j)_{s, act, q} \quad (2)$$

3.2. Top-down

Como la información de algunos sectores generadores es difusa o complicada de cuantificar individualmente, se realiza un agrupamiento de las fuentes a tratar por sector productivo y/o económico (por ejemplo, sector residencial y servicios) y se utilizan las informaciones y estimaciones estadísticas sectoriales por unidades administrativas (país, región, provincia) para la desagregación espacial a la malla de la resolución establecida, siguiendo una relación orientativa como

$$Ea(i, j)_{s, q} = Ea_{u, s, q} \times \frac{Veg(i, j)}{\sum_{(i, j) \in u} Veg(i, j)} \quad (3)$$

donde $Ea_{u, s, q}$ es la emisión anual de la especie química q por el sector s en la unidad administrativa u y $Veg(i, j)$ el valor estadístico geo-referenciado (por ejemplo, densidad de población, uso de combustible, uso de suelo, nivel de actividad económica por sector, consumo energético, políticas medioambientales adoptadas) para el sector s en el punto (i, j) de la malla ubicada dentro de la unidad administrativa u .

4. Variabilidad temporal

No es muy habitual disponer de información de las emisiones referidas a periodos menores de un año, salvo en el caso de fuentes puntuales y

especialmente contaminantes para los que se exige un control continuo.

Por tanto, partimos del conocimiento de un valor anual de emisión de la especie contaminante correspondiente, sea para un punto de la malla o para toda una región o país. Debido a la necesidad de la modelización de disponer de emisiones en función del tiempo, se debe buscar la manera de estimar las emisiones horarias de cada fuente, o en su caso, de cada sector, en aquellos casos que dicho patrón temporal manifieste una variabilidad a considerar.

Para esta estimación, se han analizado los perfiles temporales para las emisiones elaborados por TNO, basados a su vez en estudios realizados en el proyecto GENEMIS sobre la variabilidad temporal de algunas fuentes de combustión (Friedrich R., Reis S., 2004), que incluyen factores horarios, diarios y mensuales en función del sector SNAP, el país y la especie química (ver figura 2).

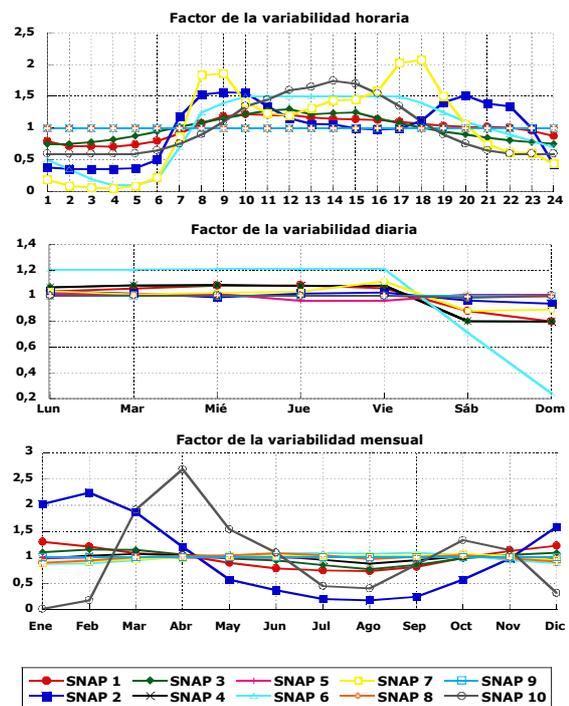


Fig. 2.- Variabilidad horaria (establecido para el dominio INMH01 y todas las especies químicas), diaria (para el dominio INMH01 y el SO_2) y mensual (para España y el SO_2) reflejado en diversos estudios (p.ej.: Visschedijk, A.J.H. et al., 2007).

En la variabilidad horaria se recoge la evolución diaria usual de la actividad social y laboral que atañe especialmente al tráfico rodado (SNAP 7), a las actividades de combustión en el sector residencial y servicios (SNAP 2) y a la agricultura (SNAP 10). En cuanto a la variabilidad a lo largo de la semana, se observa la variación en las actividades propias de la industria (SNAP 3, 4 y 6) que decae durante el fin de

semana. Mientras que durante el año se vislumbran marcadas tendencias en la agricultura (SNAP 10) y en el sector residencial y servicios (SNAP 2) debido a un mayor consumo, por ejemplo, en sistemas de calefacción.

La ecuación (4) muestra la relación entre la emisión horaria $Eh(i, j)_{p,s,q}$ de la especie química q del sector SNAP s del país p en un punto de la malla (i, j) y las emisiones anuales:

$$Eh(i, j)_{p,s,q} = Ea(i, j)_{p,s,q} \times Fh_{p,s,q} \times Fd_{p,s,q} \times Fm_{p,s,q} \quad (4)$$

con $Ea(i, j)_{p,s,q}$ la emisión anual en (i, j) , $Fh_{p,s,q}$ factor horario, $Fd_{p,s,q}$ factor diario y $Fm_{p,s,q}$ factor mensual correspondientes todas estas variables para la especie química q el sector SNAP s del país p .

En algunos casos se ha estudiado incluso la vinculación con las variables meteorológicas, como por ejemplo, la variabilidad de las emisiones de CO y COV (Compuestos Orgánicos Volátiles) con la temperatura ambiente en diversos sectores, como el transporte viario, por el efecto en el llamado “arranque frío” de los vehículos que atañe a la mayor emisión asociada cuanto menor sea la temperatura ambiente durante ese proceso (Buitjes P.J.H. *et al.*, 2003).

5. Especiación

En estudios más rigurosos también se elabora una *especiación* química, en el caso de grupos de contaminantes agrupados, por la diferente potencialidad en procesos químicos secundarios y/o en afecciones en la salud o en ecosistemas, como son el caso de los COVNM y PM, aunque estas últimas también se distribuyen en categorías según su diámetro aerodinámico menor a $10\mu\text{m}$ (PM_{10}) y menor a $2,5\mu\text{m}$ ($\text{PM}_{2,5}$), entre otras.

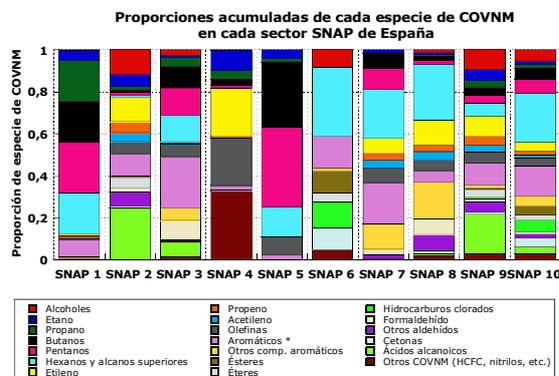


Fig. 3.- Proporciones agrupadas de 25 familias de COVNM por SNAP y para España. No se muestran las correspondientes a los isoprenos y monoterpenos (ya que la fuente principal de estos es la naturaleza, SNAP 11). Los llamados aromáticos incluyen el bencol, tolueno, xileno y trimetilbenceno.

En el caso de los COVNM se realiza una *especiación* por el dispar valor fotoquímico (POPC, *Photochemical Ozone Creation Potential*) de los distintos tipos de especies

El valor total inventariado de COVNM se desagrega usando unas proporciones estimadas por SNAP y país, ya que depende de la tecnología y el combustible utilizado en cada fuente emisora. En la figura 3 se han representado las proporciones establecidas en el estudio de Visschedijk, A.J.H *et al.* (2007) basadas en trabajos previos que se llevaron a cabo para la creación de los datos del proyecto EDGAR (Olivier *et al.*, 2001).

6. Comparativa

En este trabajo se han analizado algunas de las discrepancias de distintas estimaciones de emisión, y se han buscado las causas que generan que las emisiones asociadas a distintas especies químicas que se introducen en un Modelo de Transporte Químico puedan estar alejadas de la realidad actual.

Conociendo esto, podremos estar en condiciones de construir una entrada de datos de emisiones en el sistema de predicción de la composición química de la atmósfera coherente a cada instante y región modelizada.

En la actualidad, la predicción de la composición química realizada a nivel operativo en la Agencia Estatal de Meteorología (AEMet) se basa en el modelo MOCAGE (*Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle*) elaborado por Météo-France. Es un modelo de transporte químico 3D global con capacidad de incluir hasta 3 dominios anidados adicionales. En la versión operativa actual se usan 2 anidamientos adicionales al global (GLOB22): el dominio europeo INML05 y el peninsular INMH01, a $0,5^\circ$ y $0,1^\circ$ respectivamente. Por ello, se deben elaborar los datos de entrada necesarios para cada uno de estos dominios (los meteorológicos y los característicos de la superficie, en los cuales se incluyen las emisiones disponibles de especies inventariadas).

6.1. Emisiones

Hemos comparado salidas de MOCAGE para el dominio INMH01 utilizando dos inventarios de emisiones *antropogénicas* de CO, NH_3 , COVNM, NO_x , SO_2 , PM_{10} y $\text{PM}_{2,5}$ diferentes correspondientes a los años base 2003 y 2009 respectivamente.

El inventario del 2003 mencionado corresponde al obtenido por el centro de investigación TNO dentro del proyecto GEMS (Visschedijk, A.J.H *et al.*, 2007) y es el que se está utilizando en la configuración

operativa del MOCAGE de AEMet. La metodología usada en la elaboración del inventario está basada en el *bottom-up*, con datos provenientes de emisiones sectoriales, puntuales o de área, de los Inventarios Nacionales del 2003.

Mientras, el inventario más actual ha sido proporcionado por el Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) y se ha obtenido partiendo del inventario oficial EMEP del 2009 representado en una malla 50x50km² y mediante el uso de herramientas de cálculo de desagregación basadas en la metodología *top-down* elaboradas en CIEMAT.

Observando en primera instancia la evolución de las emisiones oficiales totales desde 2003 a 2009 (figura 4) muestra un descenso en las distintas especies químicas inventariadas, en concreto, un brusco descenso del 67% en el caso del SO₂ (especialmente desde el 2007).

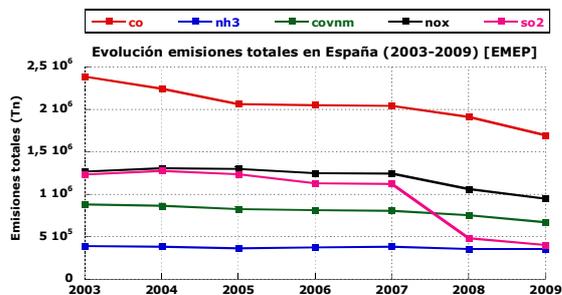


Fig. 4.- Evolución de las emisiones totales para España del programa EMEP (los datos actualizados de 2011)

Entre los principales sectores SNAP emisores para cada especie, se observa un descenso de un 82% de SO₂ en el SNAP 1 y un 73% en CO en el SNAP 7, entre el año 2003 y 2009.

En la malla generada para ambos casos para el SO₂ (figura 5 y 6), se observa en la propia escala de intervalos la cuantía totalmente dispar de las emisiones asociadas a cada celda, que se explica por el descenso observado durante estos últimos años. Aún así, por la distribución espacial más regional (o provincial) en las emisiones suministradas por CIEMAT y, especialmente, en el norte de la Península Ibérica (asociadas a su vez principalmente al sector SNAP 1, donde se incluyen las centrales térmicas de la zona), se muestra la importancia del método de estimación, y en concreto, en la generación de la distribución espacial de las emisiones.

Señalar que en estas representaciones no se incluyen las emisiones asociadas al sector marítimo (incluidas en SNAP 8), ya que en los datos de entrada que habitualmente usamos para el modelo MOCAGE se tienen en cuenta directamente los datos de la malla

de EMEP en el mar. Además, no se ha realizado un análisis del PM, ya que la versión que a día de hoy se dispone no contempla los aerosoles.

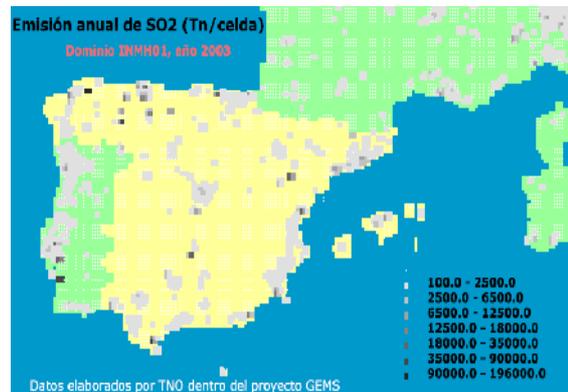


Fig. 5.- Emisiones anuales de SO₂ en malla de alta resolución (0,1°x0,1°) elaborado por TNO dentro del proyecto GEMS (Visschedijk *et al.*, 2007)

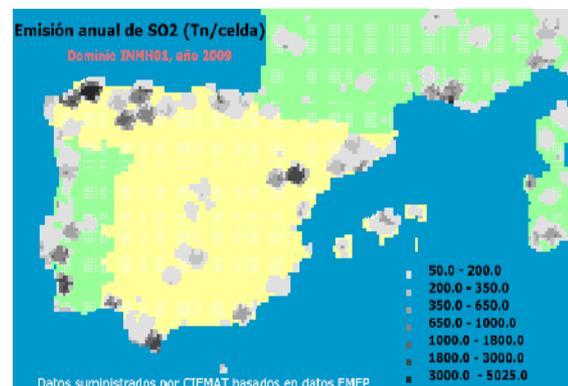


Fig. 6.- Emisiones anuales de SO₂ en malla de alta resolución (0,1°x0,1°) realizado por CIEMAT basado en los datos EMEP del año 2009 de 50x50 km².

6.2. Predicciones

Como a nivel operativo en AEMet cada día se realizan predicciones con un alcance de 24 horas (H+24) a las 00 y 12 UTC, con los datos de entrada de emisiones anuales de las especies químicas del inventario elaborado por TNO (que internamente MOCAGE trata para obtener las emisiones horarias siguiendo la metodología expuesta en el apartado 4) se ha realizado un análisis comparativo general de los efectos observados al introducir los datos correspondientes del inventario disponible del 2009.

Tras un periodo de integración de una semana desde la introducción de los datos nuevos, se observa, por ejemplo, en la predicción H+12 del 27 de julio del 2012 que la distribución espacial más extensa observada en la propia representación de las emisiones ocasiona también que, las concentraciones de SO₂ asociadas muestran valores menores y una extensión espacial más distribuida (figura 8) en zonas donde observábamos, al usar el inventario del

TNO, niveles de concentración muy elevados y localizados (figura 7).

En concreto, el rango de las concentraciones de SO_2 no superan los $100\mu\text{g}/\text{m}^3$, y solo se observan valores cercanos a $75\mu\text{g}/\text{m}^3$ en zonas del norte de Galicia, donde la predicción con el otro inventario muestra áreas concretas con elevados niveles de SO_2 .

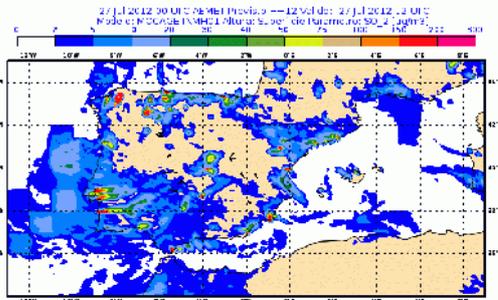


Fig. 7.- Predicción H+12 para SO_2 en superficie, tal y como se publicó en la página de AEMet el día 27 de julio del 2012.

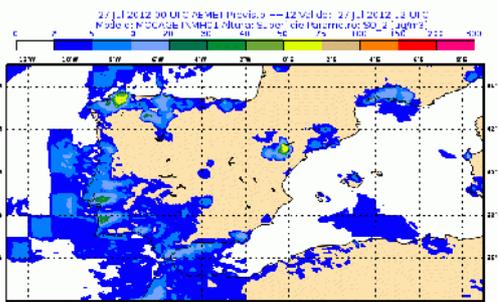


Fig. 8.- Predicción H+12 para SO_2 en superficie, realizada tras un periodo de asimilación de una semana, usando el inventario de emisiones de alta resolución del 2009.

Además de observarse una diseminación espacial de las emisiones, la menor tasa de emisión asociada en otras zonas de la geografía de la península ibérica provoca que, en las áreas correspondientes a las grandes urbes, se produzcan descensos considerables en las concentraciones previstas de SO_2 .

En caso de otras especies químicas predichas, como NO , NO_2 y CO , aún no siendo tan abrupto el descenso de las emisiones totales inventariadas, las diferentes distribuciones espaciales en las emisiones hace que las concentraciones predichas varíen. En futuros trabajos más exhaustivos se estudiará más detalladamente esta relación, comparando incluso con los datos medidos por la red de observación de contaminación de fondo EMEP/VAG, así como, otras redes autonómicas y municipales.

Conclusiones

Las necesidades de los Modelos de Transporte Químico, como el MOCAGE, en cuanto a las emisiones como datos de entrada, hace

imprescindible analizar de forma cuidadosa las distintas metodologías que se utilizan en la generación de datos de los inventarios de alta resolución, por la elevada sensibilidad de la calidad de las predicciones de calidad del aire debidas a las emisiones.

Por ello, además de seguir investigando en la amalgama de procesos físico-químicos de la atmósfera, se debería seguir buscando herramientas para disponer de emisiones acordes con el periodo a modelizar y con la heterogeneidad de las actividades emisoras de especies químicas relevantes a tener en cuenta.

Agradecimientos

A Météo-France por su apoyo, que ha sido fundamental para lograr poner en operación el modelo MOCAGE en AEMet.

A CIEMAT por proporcionar un inventario de emisiones de alta resolución.

Referencias

Baldasano J.M., Güereca L.P., López E., Gassó S., Jimenez-Guerrero P., Development of a high-resolution (1kmx1km, 1h) emission model for Spain: The High-Effective Resolution Modelling Emission System (HERMES), 2008

Bieser J., Aulinger A., Matthias V., Quante A., Builtjes P., SMOKE for Europe – adaptation, modification and evaluation of comprehensive emission model for Europe, 2010

Builtjes P.J.H., van Loon M., Schaap M., Teeuwisse S., Visschedijk A.J.H., Bloos J.P., Project on the modelling and verification of ozone reduction strategies: contribution of TNO-MEP, 2003

Delmas R., Mégie G., Peuch V.H., Physique et chimie de l'atmosphère, Ed Belin Collection Échelles, 2005

Friedrich R., Reis S., Emissions of Air Pollutants Measurements, Calculations and Uncertainties, 2004

Guenther A., Karl T. Harley P., Wiedinmyer C., Palmer P.I., Geron C., Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN, 2006

Josse B., Simon P., Peuch V.H., Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE, 2004

Michou M., Peuch V.H., Échanges en surface dans le modèle de chimie de transport multi-échelles MOCAGE, 2002

Olivier J.G.G, Berdowski J.J.M., Peters J.A.H.W.,
Bakker J., Visschedijk A.J.H., Bloos J.P.,
Applications of EDGAR, 2001

Seinfeld J.H, Pandis S.P., Atmospheric Chemistry
and Physics: From Air Pollution to Climate Change,
2006

Visschedijk A.J.H., Zandveld P.Y.J., Denier van der
Gon H.A.C., A high resolution Gridded European
Emission Database for the EU integrated project
GEMS, 2007

Inventario de emisiones a la atmósfera de España,
Edición 2011 (Serie 1990-2009), Sumario de
Resultados de Acidificadores, Eutrofizadores y
Precursores del Ozono, Ministerio de Medio
Ambiente, y Medio Rural y Marino, 2011

EMEP/EEA air pollutant emission inventory
guidebook – 2009, 2009