Tethys
Revista de meteorologia
i climatologia mediterrània

Tethys 2010, **7**, 11–23
www.tethys.cat
ISSN-1697-1523
eISSN-1139-3394
DOI:10.3369/tethys.2010.7.02
Revista editada per **ACAM**

Avaluació del rendiment del sistema de modelització MM5/MNEQA/CMAQ de la qualitat de l'aire per a pronosticar les concentracions d'ozó a Catalunya

R. Arasa[1], **M. R. Soler**[1], **S. Ortega**[2], **M. Olid**[1] **i M. Merino**[1]

[1]Departament d'Astronomia i Meteorologia, Universitat de Barcelona, Avinguda Diagonal 647, 08028 Barcelona
[2]Departament de Física i Enginyeria Nuclear, Universitat Politècnica de Catalunya, C/ Urgell 187, 08036 Barcelona

Rebut: 27-V-2009 – Acceptat: 2-XII-2009 – **Versió Traduïda**

Correspondència a: rosa@am.ub.es

Resum

Estudiem la capacitat d'un sistema de modelització per a pronosticar la formació i el transport d'ozó sobre Catalunya. Amb aquesta finalitat, el model de la Comunitat de Qualitat de l'Aire Multiescalar (CMAQ, d'ara endavant les sigles es refereixen a la seva versió en anglès, excepte indicació expressa) desenvolupat per l'Agència de Protecció del Medi Ambient dels Estats Units (US EPA) i el sistema PSU/NCAR de modelització mesoescalar MM5 s'associen amb un nou model d'emissió, el Model d'Emissió Numèric per a la Qualitat de l'Aire (MNEQA). Les sortides del sistema de modelització per al període que va de maig a octubre de 2008 es comparen amb les mesures d'ozó d'estacions seleccionades que pertanyen al Departament de Medi Ambient de la Generalitat de Catalunya. Els resultats indiquen un bon comportament del model a l'hora de reproduir les concentracions diürnes d'ozó, mentre que els valors estadístics cauen dins els marcs reguladors EPA i UE.

Paraules clau: modelització de la qualitat de l'aire, modelització meteorològica, CMAQ, ozó, avaluació

1 Introducció

Com a resultat de les emissions combinades d'òxids de nitrogen i de compostos orgànics, es troben grans quantitats d'ozó a la capa límit planetària. L'ozó troposfèric està considerat un dels pitjors contaminants a la baixa troposfera. En altes concentracions l'ozó és tòxic per a les plantes i redueix la producció de conreu (Guderian et al., 1985; Hewit et al., 1990; Zunckel et al., 2006). Sitch et al. (2007) suggereixen que els efectes del forçament radiatiu indirecte de l'ozó en les plantes podrien contribuir més a l'escalfament global que el forçament radiatiu directe a causa dels increments de l'ozó troposfèric. L'ozó és un irritant respiratori per als humans i perjudica els materials tant naturals com fets per l'home com són la pedra, la construcció i la goma (Serrano et al., 1993). Tots aquests efectes perjudicials són importants al sud d'Europa (Silibello et al., 1998; Grossi et al., 2000; San José et al., 2005) ja que la radiació solar de l'estiu agreuja els efectes de l'ozó. És el cas de les àrees del nord d'Espanya situades prop de zones urbanes i industrials, i especialment aquelles que es troben a sotavent d'aquestes àrees, on no hi ha precursors d'ozó locals (Soler et al., 2004; Aguirre-Basurko et al., 2006). En conseqüència, els beneficis mediambientals de controlar, quantificar, modelitzar i pronosticar la dosi i exposició de la població humana, la vegetació i els materials a l'ozó és una condició prèvia essencial per tal d'avaluar l'escala dels impactes de l'ozó i desenvolupar estratègies de control (Brankov et al., 2003).

A les tres darreres dècades, s'han produït importants progressos en els sistemes de modelització de la qualitat de l'aire. Els models simples Gaussià i de caixa han evolucionat cap a models estadístics (Schlink et al., 2006; Abdul-Wahab et al., 2005) i models de malla Eulerians (Hurley et al., 2005; Sokhi et al., 2006). Aquests darrers representen el tipus més sofisticat de models atmosfèrics i la majoria de les vegades s'utilitzen per a problemes que són massa complexos de resoldre amb models simples. Degut als avenços continus, la modelització de malla Euleriana s'utilitza cada vegada més en entorns de recerca per tal d'avaluar els impactes en l'aire i la salut de futurs escenaris d'emissió (Mauzerall et al., 2005). Els models Eulerians de qualitat de l'aire s'han convertit en una eina útil per a dirigir i avaluar la contami-

2010 Autor(s). Aquest treball té llicència "Creative Commons".

Figura 1. Situació de Catalunya (esquerra) i característiques geogràfiques principals (dreta).

nació fotoquímica i representen un complement que hauria de reduir l'activitat sovint costosa de monitoratge de la qualitat de l'aire.

Tanmateix, la modelització té una sèrie de limitacions. Els models requereixen dades inicials en gran quantitat sobre les emissions i la meteorologia, les quals no sempre són fiables o fàcils d'aconseguir. La capacitat dels models per a representar el món real està limitada per molts factors, incloent la resolució espacial i les descripcions dels processos. Com que els models segueixen sent insegurs en les seves prediccions, es requereix una validació extensiva abans que es puguin fer servir i resultin fiables (Denby et al., 2008).

En un intent d'aconseguir aquestes requisits, s'han realitzat diversos estudis en algunes zones (Hogrefe et al., 2001; Zhang et al., 2006a, 2006b). Millan et al. (2000) i Gangoiti et al. (2001) van estudiar la dinàmica foto-oxidant a la part nord-oest del Mediterrani. A més, per al nord-est d'Espanya diversos estudis han avaluat el rendiment del model MM5-EMICAT2000-CMAQ. Això es va fer utilitzant una sèrie de resolucions horitzontals, comparant diferents mecanismes fotoquímics o examinant la capacitat del model per pronosticar les altes concentracions d'ozó durant les situacions típiques d'estiu (Jiménez et al., 2006a; Jimenez et al., 2003; Jiménez et al., 2006b).

En aquest article es presenta la validació d'un nou sistema de modelització mesoescalar de la qualitat de l'aire. Tot i que s'aplica en el mateix domini d'integració fent servir els mateixos models meteorològics i fotoquímics, MM5 i CMAQ com en estudis anteriors, la validació cobreix un període més llarg (6 mesos) i bàsicament el sistema fa servir un nou model d'emissió MNEQA. Aquest consisteix en un inventari d'emissions altament disgregat de gasos contaminants i partícules (Ortega et al., 2009). Les simulacions que utilitzen aquest nou sistema de qualitat de l'aire s'avaluen fent servir una xarxa de 48 estacions de qualitat de l'aire.

A la secció 2 es presenta una descripció del sistema de modelització MM5/MNEQA/CMAQ mentre que l'avaluació del model estadístic de la qualitat de l'aire respecte de les mesures es presenta a la secció 3. Finalment, s'informa sobre algunes conclusions a la secció 4.

2 Sistema de modelització

2.1 Àrea d'estudi

L'àrea d'estudi és Catalunya. Recentment, la seva població ha arribat als set milions d'habitants, la majoria dels quals viuen a Barcelona i al seu entorn. Catalunya és una àrea mediterrània amb una topografia complexa. Està limitada pels Pirineus al nord i el Mar Mediterrani al sud i a l'est. Des d'un punt de vista geogràfic, el territori es pot dividir en tres àrees diferenciades. Una àrea s'estén més o menys paral·lelament al llarg de la costa i inclou la plana costera, la serralada litoral i la serralada pre-litoral. La segona àrea és anomenada depressió central; i la tercera inclou el Prepirineu i el Pirineu. Les àrees industrials principals i la majoria de la població es concentren a la costa. A l'estiu, hi ha episodis d'alta concentració d'ozó a l'interior, de vegades en àrees rurals, a causa de l'advecció dels contaminants per part de la brisa marina, que els porta des de la costa al territori rural de l'interior.

2.2 Model meteorològic

El model mesoescalar PSU/NCAR, MM5 (Grell et al., 1994), versió 3.7, s'utilitza per a generar camps meteorològics. Aquests han estat l'entrada per al sistema de mo-

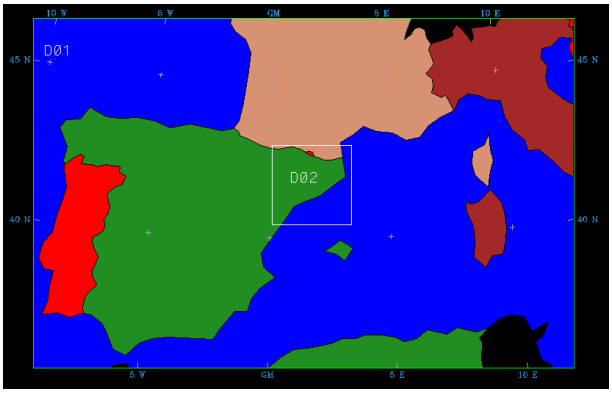

Figura 2. Dominis del model.

delització de qualitat de l'aire. Les simulacions meteorològiques es realitzen per a dos dominis acoblats en els dos sentits (Figura 2) amb resolucions de 27 km i 9 km. El domini més gran cobreix el sud d'Europa, incloent Espanya, la meitat de França i el nord d'Itàlia i un domini interior de 30×30 cel·les cobreix Catalunya.

Les condicions inicials i de contorn per al domini D1 s'actualitzen cada sis hores amb dades d'anàlisi del model global del Centre Europeu de Previsió Meteorològica de Mitjà Termini (ECMWF) amb una resolució de 0.5° × 0.5°. Els processos de la capa límit es calculen amb l'esquema MRF (Troen i Mahrt, 1986); l'esquema de Grell (Grell, 1993) es fa servir per a la parametrització dels cúmuls, mentre que la microfísica es parametritza utilitzant l'esquema de Schultz (Schultz, 1995). Per a l'esquema de la superfície terrestre, s'activa el model de sòl de cinc capes, en el qual la temperatura es pronostica fent servir l'equació de difusió vertical per a les capes de 0.01, 0.02, 0.04, 0.08 i 0.16 m sota la superfície, amb l'assumpció de substrat fix (Dudhia, 1996). La radiació solar es parametritza utilitzant l'esquema de radiació dels núvols (Dudhia et al., 2004). La resolució vertical inclou 32 nivells, 20 per sota de 1500 m aproximadament, amb el primer nivell a aproximadament 15 m i la part superior del domini a uns 100 hPa. La distribució de les capes verticals, amb una resolució més alta a les capes baixes, és una pràctica comuna (Zhang et al., 2006a, 2006b; Bravo et al., 2008). Els arxius de sortides de cada hora del MM5 es processen amb la versió 3.2 del Processador d'Interfície de Química i Meteorologia (MCIP) per al model CMAQ.

2.3 Model fotoquímic

El model de transport químic utilitzat és el model dels EUA EPA3/CMAQ (Byung i Ching, 1999). Aquest model, amb el suport de l'Agència de Protecció Mediambiental (EPA) dels EUA, està en contínua evolució. Les simulacions v4.6 del CMAQ utilitzen el mecanisme químic CB-05 i el solucionador associat EBI (Yarwood et al., 2005), incloent les reaccions de gasos que impliquen N_20_5 i H_20 i elimina les combinacions de mecanismes obsolets (p.e. gas+aerosols w/o). A més d'aquests canvis, la versió 4.6 inclou diferents modificacions al mòdul de l'aerosol (AERO4). Els detalls addicionals relacionats amb la darrera versió del CMAQ es poden trobar al lloc web del centre del Sistema d'Anàlisi i Modelització de la Comunitat (CMAS) (http://www.cmascenter.org/help).

El model CMAQ utilitza la mateixa modelització del model que la simulació MM5. Les condicions de contorn i els valors d'inicialització per al domini D1 vénen d'un perfil vertical proporcionat pel mateix CMAQ, mentre que les condicions inicials i de contorn per al domini D2 estan proporcionades pel domini D1. El model s'executa amb un període d'ajust inicial de 24 h (*spin-up*).

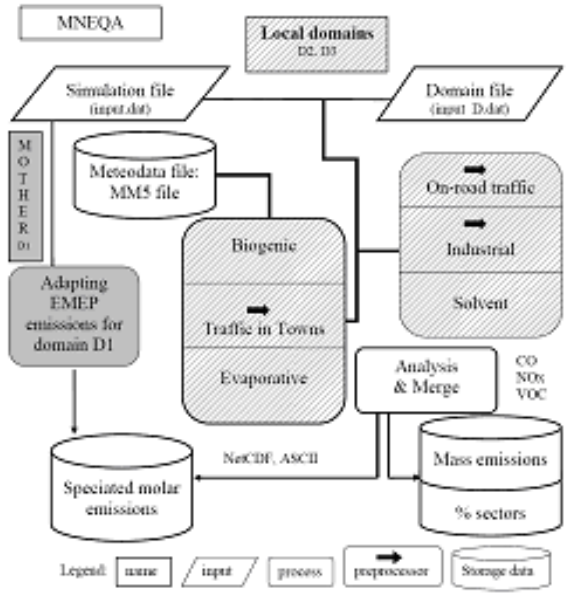

Figura 3. Diagrama de flux per al model MNEQA. El gris és per als mòduls al domini mare, D1. L'ombrejat identifica els mòduls al domini local i les fletxes negres contínues simbolitzen els preprocessadors. A partir d'Ortega et al. (2009).

2.4 Model d'Emissió MNEQA

El MNEQA és un model d'emissió desenvolupat pels autors (Ortega et al., 2009). Com que és una part crítica del sistema de modelització de la qualitat de l'aire, en aquesta secció en presentem una visió general i un resum de les diferències en les metodologies aplicades als dominis D1 i D2.

2.4.1 Visió general

Els dominis niats normalment s'apliquen als sistemes de modelització de la qualitat de l'aire perquè els models fotoquímics, d'emissió i meteorològics han de tractar amb la variabilitat de les malles i els diferents dominis. Com a conseqüència de la variabilitat en la resolució espacial, la

Taula 1. Estadístiques de rendiment quantitatiu per al pronòstic de concentració d'ozó, utilitzant el domini de malla de 9 km.

Paràmetre estadístic	Definició matemàtica
Biaix mitjà (MB)	$MB = \frac{1}{N}\sum_1^N (C_m - C_0)$
Error mitjà normalitzat del biaix (MNBE)	$MNBE = \frac{1}{N}\sum_1^N \left(\frac{C_m - C_0}{C_0}\right) \cdot 100\%$
Biaix fraccionat mitjà (MFB)	$MFB = \frac{1}{N}\sum_1^N \left[\frac{C_m - C_0}{\left(\frac{C_m + C_0}{2}\right)}\right] \cdot 100\%$
Error brut absolut mitjà (MAGE)	$MAGE = \frac{1}{N}\sum_1^N \lvert C_m - C_0\rvert$
Error brut mitjà normalitzat (MNGE)	$MNGE = \frac{1}{N}\sum_1^N \left(\frac{\lvert C_m - C_0\rvert}{C_0}\right) \cdot 100\%$
Error mitjà normalitzat (NME)	$NME = \frac{\sum_1^N \lvert C_m - C_0\rvert}{\sum_1^N C_0} \cdot 100\%$
Biaix mitjà normalitzat (NMB)	$NMB = \frac{\sum_1^N (C_m - C_0)}{\sum_1^N C_0} \cdot 100\%$
Error quadràtic mitjà (RMSE)	$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N}\sum_1^N (C_m - C_0)^2}$
Error normalitzat del valor màxim del domini (UPA)	$UPA = \frac{C_m(max) - C_0(max)}{C_0(max)} \cdot 100\%$

metodologia del MNEQA varia d'un domini a un altre. Les principals diferències entre els dominis són la resolució de malla i les àrees cobertes en un o més països. Tot i que es busca el mateix grau de descripció de les emissions per a tots els dominis, la informació sobre les fonts d'emissió i les activitats antropogèniques no estan prou detallades o disponibles en totes les jurisdiccions. Tanmateix, la Unió Europea ha emprès algunes accions a aquest respecte; ha desenvolupat el Registre Europeu d'Emissió de Contaminants (EPER http://eper.ec.europa.eu) per als informes dels anys 2001 i 2004 i els Registres de Transferència i Alliberament de Contaminants (PRTR) per al 2007.

A causa de la dificultat a l'hora de registrar les dades requerides per un model d'emissions per a un domini molt gran, la metodologia aplicada al domini mare (D1) és descendent mentre que la utilitzada al domini interior (D2) és principalment ascendent. Es va desenvolupar una estructura modular per tal de tenir en compte les característiques de cada font d'emissió. La Figura 3 mostra el diagrama de flux del MNEQA i la seva estructura. El mòdul per a D1 adapta les emissions d'EMEP (Vestreng et al., 2006) per a les resolucions espacials i temporals a D1. Un arxiu de simulació proporciona informació general sobre el període de simulació al mòdul D1 i també a D2 (ratllat a la Figura 3). Els arxius del domini amb la descripció de la malla del domini simulat s'alimenten amb els mòduls. Alguns mòduls (com: Biogènic, Trànsit a les ciutats i Evaporatiu) necessiten un arxiu de dades meteorològiques perquè les emissions depenen de paràmetres meteorològics, tals com la temperatura i la radiació. Els preprocessadors (fletxes negres contínues a la Figura 3) estan disponibles per als mòduls següents: Trànsit a les ciutats, Trànsit industrial i per Carretera. Finalment, el mòdul Anàlisi i Fusió crea sortides (en formats ASCII i NetCDF) a partir de les simulacions del MNEQA: emissions molars especiades, tal com requereix el CMAQ; emissions de massa per a CO, NOx i VOCs i partícules; i percentatge de massa de la contribució a les emissions totals per part de cada mòdul d'emissions.

El MNEQA utilitza la sortida d'un model meteorològic per a calcular la temperatura i les dades de radiació. Finalment, les emissions de compostos es classifiquen en les espècies utilitzades en el mecanisme fotoquímic: el MNEQA fa l'especiació per a CB-05.

2.4.2 Emissions al domini D1

El MNEQA fa servir una metodologia descendent basada en les dades d'emissions de l'inventari expert d'emissions de l'EMEP (Maig, 2007) (Vestreng et al., 2006). Europa i una petita part del Nord d'Àfrica estan cobertes pel domini de l'EMEP, amb una malla de resolució de 50×50 km^2. Les emissions es computen a partir de les dades nacionals d'11 sectors, cinc contaminants principals (CO, NH_3, NMVOC, NOx, SOx) i dos tipus de partícules (PM 2.5 i PM gran). Les dades d'emissions disponibles cobreixen un període de diversos anys. L'algorisme consisteix en assignar a la cel·la de cada domini mare el valor de les emissions de la cel·la d'EMEP més propera, multiplicat per

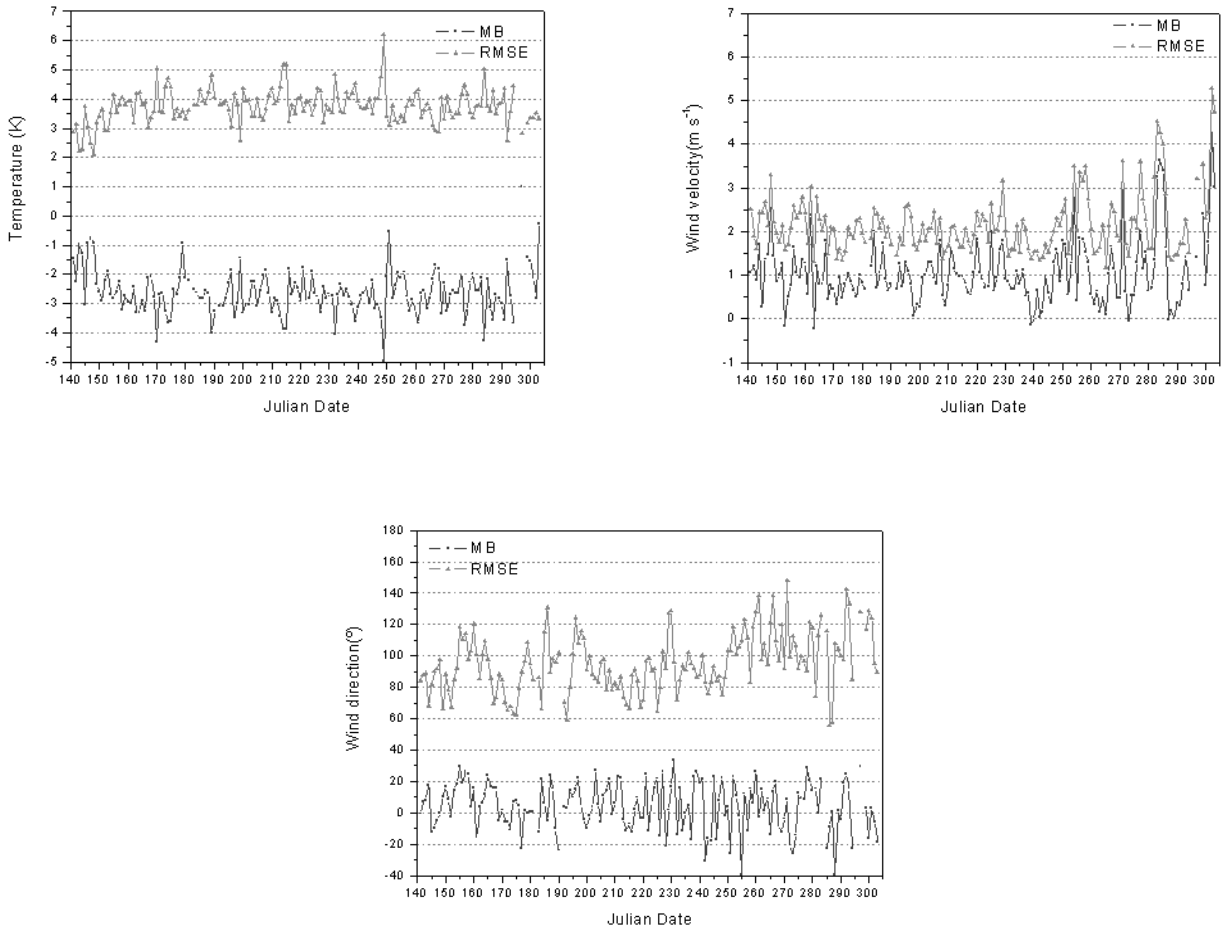

Figura 4. Evolució, per al període estudiat, del MB i RMSE diaris. (a) (a dalt esquerra) correspon a la temperatura de l'aire a 1.5 m (s.n.t.); (b) (a dalt dreta) correspon a la velocitat del vent mesurada a 10 m (s.n.t.) i (c) correspon a la direcció del vent mesurada a 10 m (s.n.t.).

un factor proporcional. Aquest factor representa el coeficient entre el número de cel·les de D1 i el número de cel·les del domini de l'EMEP que s'intersecten a dins de D1.

L'especiació es calcula utilitzant perfils del lloc web del Consell de Recursos del l'Aire de Califòrnia (CARB) (http://arb.ca.gov/ei/speciate/dnldopt.htm#specprof). Els perfils mensuals i setmanals (Parra, 2004) s'han aplicat per tal de determinar els valors d'emissió per a cada hora basats en el dia de la setmana i el mes de l'any.

2.4.3 Emissions al domini D2

En el cas del domini local, hem fet servir una aproximació ascendent per a les emissions biogèniques, del trànsit, de consum i industrials. Tenint en compte diverses característiques geomètriques, vam fer la distinció entre fonts de superfície, lineals i de punt. Aquestes característiques geomètriques estan reflectides en els nostres càlculs utilitzant un Sistema d'Informació Geogràfic (SIG). Finalment, les emissions es fusionen per a cada cel·la de malla perquè el model fotoquímic no fa la distinció entre les diversos tipus de font; l'únic que es necessita és un valor d'emissions per a cada cel·la de malla, cada pas temporal i cada component.

2.4.4 Configuració del model de qualitat de l'aire

En aquesta secció, es descriuen les característiques de la modelització utilitzada en les simulacions realitzades amb el model de qualitat de l'aire. El domini D1 té una resolució de malla horitzontal de 27 km i el domini interior, D2, de 9 km. D1 té una extensió de 68 $\times$ 44 cel·les de malla centrades a la latitud 41.42°N i la longitud d'1.40°E. D2 té le seu vèrtex esquerre inferior a D1 (31, 19) amb 30 $\times$ 30 cel·les de malla. El nombre total de nivells verticals del model és de 30 per a tots els dominis, fins a 100 hPa. Com que el model fotoquímic requereix condicions de contorn, els dominis de dades tenen menys cel·les que al límit horitzontal. Per això, MNEQA i CMAQ es duen a terme en D1 amb 66 $\times$ 42 cel·les

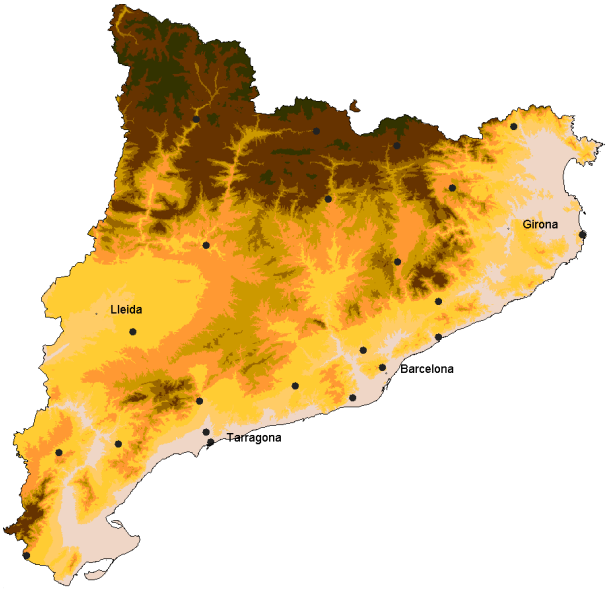

Figura 5. Característiques topogràfiques de l'àrea estudiada i la situació de les 22 estacions de qualitat de l'aire (•) utilitzades.

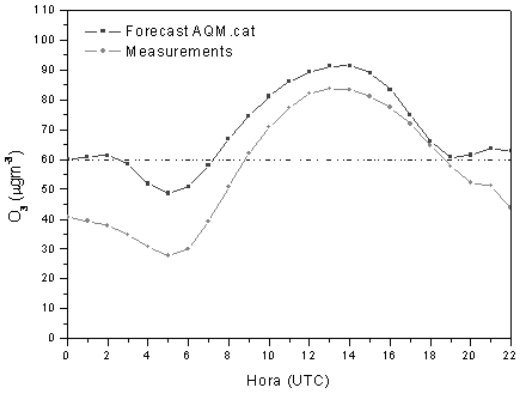

Figura 6. Evolució temporal de les concentracions d'ozó mitjanades de cada hora proporcionades pel model de qualitat de l'aire i per les 48 estacions de qualitat de l'aire per al període estudiat.

de malla i a D2 amb 28 × 28 cel·les de malla. En tots els dominis i models es fa servir una resolució de pas temporal d'una hora.

3 Avaluació estadística del model de la qualitat de l'aire respecte de les mesures

Com que un model de qualitat de l'aire és un conjunt de tres models, meteorològic, fotoquímic i d'emissió, i com que l'últim ja ha estat comparat amb altres models d'emissió (Ortega et al., 2009), en aquesta secció s'avaluaran els resultats del model meteorològic MM5 i el model fotoquímic CMAQ.

3.1 Avaluació dels camps meteorològics

Els resultats de la modelització s'han avaluat a partir d'un conjunt de diferents estacions meteorològiques distribuïdes per Catalunya que pertanyen al Servei Meteorològic de Catalunya. L'avaluació inclou la velocitat i la direcció del vent mesurades a 10 m per sobre del nivell del terra (s.n.t., sigles en català) i la temperatura de l'aire a 1.5 m (s.n.t.). L'Error Quadràtic Mitjà (RMSE) i el Biaix Mitjà (MB) per a aquests paràmetres meteorològics s'han calculat per a dades de cada hora proporcionades pel model i les observacions (veure Taula 1 per a la definició), obtenint així un valor estadístic diari. Les estadístiques del vent i la direcció del vent es calculen per a una velocitat del vent superior a 0.5 m s^{-1}, ja que la direcció del vent no és fiable per a velocitats més baixes. El càlcul de paràmetres estadístics és directe per a la velocitat del vent i la temperatura, però la naturalesa circular de la direcció del vent dificulta l'obtenció de les estadístiques corresponents. Per tal d'evitar aquest problema, hem fet servir una direcció del vent modificada, on 360° van ser afegits o restats del valor predit per a minimitzar la diferència absoluta entre les direccions del vent observades i les pronosticades (Lee i Fernando, 2004). Per exemple, si el pronòstic és 10° i l'observació corresponent és 340°, aleshores s'utilitza un valor pronosticat de 370°.

La Figura 4 mostra l'evolució del RMSE i MB de la velocitat del vent, la direcció de vent i la temperatura per al període estudiat. La velocitat del vent (Figura 4a) indica un RMSE delimitat entre 1 i 3 m s^{-1} i un MB entre 0 i 2 m s^{-1} a la majoria del període, des de maig fins a mitjans de setembre; des d'aquest punt fins al final del període, el RMSE augmenta fins a 4 m s^{-1} i el MB fins a 3.5 m s^{-1}. El primer període es caracteritza principalment per una situació anticiclònica amb petits gradients de pressió que afavoreixen el desenvolupament de circulacions mesoescalars com el règim de brisa marina a la costa i els vents de muntanya a l'interior. La velocitat del vent associada amb aquests patrons de circulació està força ben reproduïda pel model, tot i que tendeix a subestimar lleugerament la velocitat del vent durant el dia i a sobreestimar-la a la nit. El model no reprodueix amb precisió els vents molt fluixos (Bravo et al., 2008), típics de l'àrea estudiada a la nit. Això provoca el valor positiu de MB durant tot el període. Durant el segon període, la situació meteorològica ha estat molt més variable encapçalada per l'escala sinòptica i reflexada en alts valors del MB i RMSE.

La Figura 4b mostra l'evolució del RMSE i MB per a la direcció del vent. El RMSE té entre 60° i 120° per al primer període, mentre que durant el segon període els límits varien entre 80° i 140°. Els valors de MB van entre 20° i -20° tenint la desviació més alta durant el segon període.

L'evolució del RMSE i MB per a la temperatura de l'aire es presenta a la Figura 4c. Per a la majoria del període estudiat, el RMSE pren valors entre 3 i 4 graus, mentre que

Taula 2. Resum estadístic corresponent a les estacions de qualitat de l'aire seleccionades associades a les simulacions de qualitat de l'aire de les concentracions mitjanes d'ozó de cada hora i del màxim d'1-h i 8-h per al període estudiat.

Estadística	Mitjanes horàries (00 a 24 UTC)	Mitjanes horàries per a les concentracions d'ozó ≥ 60 μg m^{-3}	Concentració màxima d'1-h per a les concentracions d'ozó ≥ 60 μg m^{-3}	Concentració màxima de 8-h per a les concentracions d'ozó ≥ 60 μg m^{-3}
MB (μg m^{-3})	1.35	-1.90	-2.34	-0.83
MAGE (μg m^{-3})	31.21	16.47	14.72	11.96
MNBE (%)	6.90	-0.41	0.11	1.12
MNGE (%)	41.98	19.95	14.66	13.31
MFB (%)	-2.52	-4.61	-1.67	-0.48
RMSE (μg m^{-3})	29.97	21.75	19.38	16.10
NMB (%)	0.93	-2.21	-2.42	-1.00
NME (%)	21.52	19.18	15.22	14.48
UPA (%): 11.5				

el MB els pren entre -2 i -4 graus. Aquests valors destaquen la tendència a subestimar la temperatura de l'aire a 1.5 m (s.n.t.).

El rendiment del model meteorològic concorda amb diversos estudis anteriors sobre les aplicacions meteorològiques per a la modelització de la qualitat de l'aire (Zhang et al., 2006a), en particular aquells que es basen en l'àrea d'estudi, (Jiménez et al., 2008; Jiménez et al., 2006a) on s'ha notificat sobre les estadístiques clàssiques per als camps de superfície (p.e. la temperatura, el rang de velocitat del vent d'1 a 4 graus i de 2 a 4 m s^{-1}). Tanmateix, la nostra avaluació estadística mostra una dispersió lleugerament superior, principalment per a la direcció del vent. La raó principal podria ser la resolució horitzontal, ja que els estudis meteorològics sobre els terrenys complexos requereixen més resolució horitzontal i vertical per a resoldre els patrons de circulació mesoescalars complexos (Jiménez et al., 2006a).

3.2 Avaluació del model fotoquímic

La mètrica estadística per al càlcul del rendiment del model fotoquímic es calcula per a les concentracions d'ozó de superfície en 48 emplaçaments de mesura al domini de modelització de 9×9 km^2. Tot i que hi ha una nova pauta per a avaluar el rendiment del model, US EPA (2007), en aquest estudi hem fet servir el US EPA (2005), ja que la nova pauta no inclou la quantificació del rang a les mètriques estadístiques. Les tres mètriques multilloc utilitzades són l'error normalitzat del valor màxim del domini (UPA), l'error mitjà normalitzat mitjà del biaix (MNBE) i l'error brut mitjà normalitzat (MNGE). De la mateixa manera que amb la guia general i els protocols per a l'avaluació del rendiment (Seigneur et al., 2000), es calculen noves mètriques estadístiques basades en el concepte de factors per tal de superar les limitacions de les mesures tradicionals. Aquestes estadístiques estan resumides a la Taula 1.

Per a l'avaluació, les 48 estacions de superfície de qualitat de l'aire anomenades XVPCA (acrònim en català de Xarxa de Vigilància i Previsió de la Contaminació Atmosfèrica) que pertanyen al Departament de Mediambient de la Generalitat de Catalunya proporcionen les mesures de cada hora de la concentració d'ozó des del 20 de maig fins a finals d'octubre de 2008 (a partir d'ara "període estudiat"). Aquesta xarxa d'estacions cobreix tot el domini amb una distribució territorial exacta. Tanmateix, donada la resolució de la cel·la de malla, 9×9 Km^2, no totes les estacions de mesures compleixen el criteri per ser representatives de l'àrea en la qual estan localitzades. És a dir, si la cel·la de malla és representativa d'una zona rural, l'estació de mesura no pot estar localitzada a la ciutat principal ja que les seves mesures seran representatives d'una àrea urbana. Si es fa servir aquest criteri, la validació es realitza amb només 22 estacions representatives (veure Figura 5 i Taula 3).

A més de les mètriques anteriors, l'Agència de Protecció Ambiental dels EUA (US EPA, 2005) va desenvolupar una guia que indicava que és inapropiat establir un criteri rígid per a l'acceptació o rebuig del model (és a dir, cap prova de límits). Tanmateix, basant-se en modelitzacions anteriors de l'ozó (US EPA, 1991) s'ha establert un rang de valors comú per al biaix, l'error i l'exactitud. Els criteris acceptats són pel MNBE, de $\pm$5 a $\pm$15%; MNGE, de +30 a +35%; UPA de $\pm$15 a $\pm$20%. Per a tot el període estudiat, els resultats de la Taula 2 mostren mitjanes de les mètriques estadístiques per a les concentracions de superfície de cada hora, els valors màxims 1-horaris i les concentracions d'ozó màximes diàries 8-horàries.

Per a les concentracions d'ozó mitjanades de cada hora, els resultats indiquen que el model mostra una lleugera tendència a sobreestimar la concentració d'ozó a nivell del terra (Taula 2), ja que els valors del MB, MNBE i NMB són positius, i tot i que el MNBE es troba a dins de l'objectiu de rendiment recomanat per l'EPA de $\pm$15%, el valor de MNGE és superior al criteri acceptat (35%). Aquest comportament de les concentracions d'ozó mitjanades de 24-h es deu probablement a la contribució excessiva de les concentracions d'ozó pronosticades pel model durant la nit.

Les tres principals fonts d'error podrien ser: (i) el model no representa amb prou exactitud els processos físicoquímics

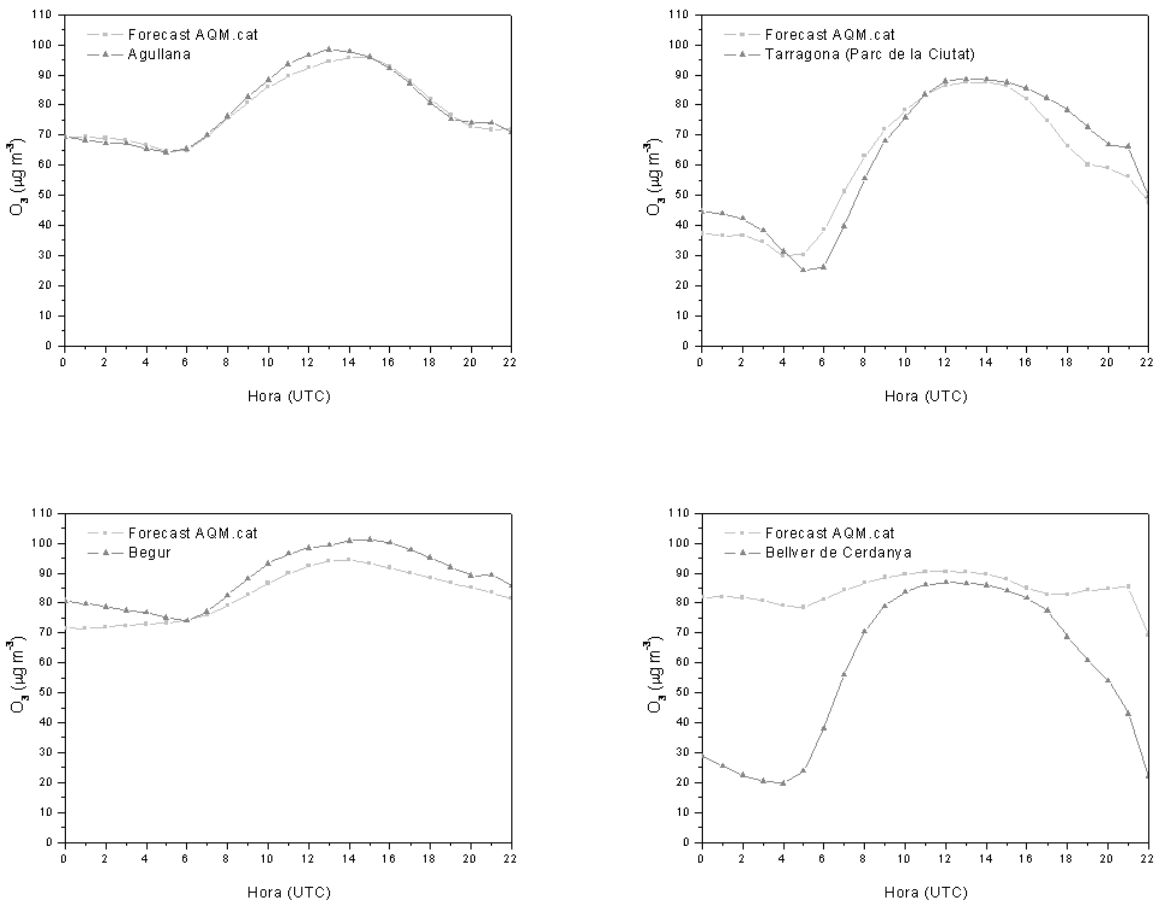

Figura 7. Evolució temporal de les concentracions d'ozó mitjanades de cada hora proporcionades pel model de qualitat de l'aire i per algunes estacions seleccionades de qualitat de l'aire per al període estudiat.

nocturns (Jiménez et al., 2006b); (ii) el model d'emissió podria no calcular correctament les emissions nocturnes; (iii) els paràmetres meteorològics, com la velocitat del vent, la direcció del vent i la capa de mescla no estan ben reproduïts pel model quan el forçament sinòptic es dèbil i els vents ambientals són lleugers i variables (Schürmann et al., 2009; Bravo et al., 2008).

Tal com es mostra a la Figura 6, el model sobreestima les concentracions d'ozó a la nit. Per tal de resoldre aquest problema, les estadístiques d'avaluació del model es calculen sovint utilitzant només els parells d'observació-pronòstic de cada hora per als quals la concentració observada és superior a un valor específic. Aquest procediment elimina la influència de les concentracions baixes, com els valors nocturns. Amb aquesta finalitat s'han fet servir diversos valors de tall; tanmateix, 60 μg m^{-3} s'utilitza amb freqüència i concorda amb la pràctica d'EPA (US EPA, 1991; Sistla et al., 1996). Quan apliquem aquesta restricció, MNGE disminueix fins a 19.95%, que es troba per sota de l'objectiu del 35% recomanat per l'EPA, tot i que el model tendeix a subestimar les ràtios de mescla de l'ozó, ja que el MB, NMB, MFB i MNBE són -1.90 μg m^{-3}, -2.21%, -4.61% i -0.41% respectivament. Per a una concentració màxima 1-horària utilitzant la mateixa restricció, el model tendeix a subestimar (encara que no a totes les 22 estacions) el valor màxim, ja que el MB és -2.34 μg m^{-3}, NMB és -2.42%, MFB és -1.67% i MNBE és 0.11%. A més, el MNGE és 14.66%, per tant, tots els valors es troben a dins del marc regulador. Per a una concentració màxima 8-horària, el comportament del valor és semblant ja que el MB és -0.83 μg m^{-3}, MNBE és 1.12%, NMB és -1.0%, MFB és -0.48% i MNGE és 13.31%. Els petits valors positius per al MNBE, corresponents a 1-h i 8-h de concentracions màximes d'ozó, indiquen que en algunes estacions la ràtio entre les concentracions d'ozó sumulades i les observades és lleugerament superior a la unitat. Per tant, en aquests emplaçaments, el sistema de modelització sobreestima les concentracions d'ozó. El valor de l'UPA calculat com la diferència entre el valor observat més alt i el valor pronosticat més alt per a totes les hores i estacions de monitoratge per a tot el període és de 11.5%, resultat que compleix

Taula 3. Estadístiques corresponents a les estacions seleccionades de qualitat de l'aire associades a les simulacions de qualitat de l'aire mitjanades a cada hora per a les concentracions d'ozó ≥ 60 μg m^{-3}.

Estació	MB (μg m^{-3})	MNBE (%)	MFB (%)	MAGE (μg m^{-3})	MNGE (%)	NME (%)	NMB (%)	RMSE (μg m^{-3})
Constantí	-2.92	-2.74	-4.47	7.09	8.28	20.12	-8.28	14.12
Pardines	0.95	3.22	1.69	9.84	11.61	14.65	1.41	14.42
Agullana	-5.70	-5.10	-7.19	12.23	13.58	17.26	-8.05	17.63
Juneda	-0.23	0.87	-0.20	6.73	7.98	15.34	-0.52	12.42
Sort	0.98	2.28	1.19	6.05	7.51	14.29	2.31	11.13
S. M. Palautordera	-0.68	-0.14	-1.43	7.04	7.74	16.99	-1.65	14.11
Begur	-7.85	-5.90	-8.53	15.51	16.08	18.69	-9.46	21.51
Santa Pau	0.06	1.20	0.07	6.76	7.69	16.68	0.16	12.94
Gandesa	0.19	1.69	0.32	9.16	11.11	14.41	0.29	13.54
Bellver de C.	1.62	3.09	2.00	6.07	7.59	14.64	3.90	11.27
Ponts	-0.45	0.79	-0.19	6.48	7.23	13.97	-0.97	11.96
La Sénia	1.26	3.09	1.63	9.35	11.70	14.05	1.89	13.30
Tarragona - Ciutat	-5.55	-5.92	-9.02	9.69	11.39	20.34	-11.66	18.06
Rubí	-9.78	-11.31	-17.36	12.45	14.72	33.10	-26.00	23.37
Tona	1.12	2.40	0.89	7.72	9.07	18.18	2.64	14.15
Alcover	3.09	4.62	3.04	6.73	9.16	21.66	9.94	13.24
Guiamets	0.04	1.16	-0.24	8.33	10.16	14.04	0.07	12.97
Berga	1.40	3.06	1.79	7.45	8.89	15.58	2.93	13.00
Vilafranca del P.	-4.95	-5.14	-7.21	8.79	9.99	19.15	-10.80	15.85
Mataró	-5.30	-5.27	-7.79	10.04	11.64	20.60	-10.87	17.67
Gavà	-7.29	-7.60	-10.63	10.11	11.29	22.86	-16.47	18.48
Barcelona - V. H.	-12.52	-14.61	-21.96	15.52	18.34	31.33	-25.26	25.94

amb l'objectiu de $\pm$20% de l'EPA. A més, si es calculen els valors diaris de l'UPA, els resultats indiquen que gairebé tots els valors d'aquesta estadística (81%) compleixen amb els criteris de l'EPA per a un rendiment del model acceptable. Com a resum de la Taula 2, concloem que el model mostra una lleugera tendència a subestimar les concentracions d'ozó, ja que quan vam aplicar un llindar de referència per tal d'evitar els valors nocturns, algunes estadístiques es tornaven negatives. La informació proporcionada a la Taula 2 s'estén a cada estació de monitoratge utilitzada en aquest estudi (Taula 3). A més a més, a la Figura 7 es presenten alguns exemples de l'evolució temporal de les concentracions d'ozó mitjanades de cada hora proporcionades pel model de qualitat de l'aire i les estacions seleccionades de qualitat de l'aire. Aquesta informació addicional confirma els resultats i la conclusió derivats de la Taula 2. El rendiment del model fotoquímic concorda amb diversos resultats anteriors sobre la modelització de la qualitat de l'aire a l'àrea estudiada, (Jiménez et al., 2008; Jiménez et al., 2006a), en què els valors estadístics també compleixen amb els criteris de l'EPA.

De la mateixa manera que la validació sistemàtica, l'error quadràtic mitjà no sistemàtic i sistemàtic, RMSE$_u$ (1) i RMSE$_s$ (2), es calculen per tal d'avaluar l'error intrínsec en el model i l'error aleatori (Appel et al., 2007).

$$RMSE_u = \sqrt{\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(C - C_m)^2} \quad (1)$$

$$RMSE_s = \sqrt{\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(C - C_0)^2} \quad (2)$$

$$C = a + bC_0 \quad (3)$$

$$RMSE_s = \sqrt{(RMSE_u)^2 + (RMSE_s)^2} \quad (4)$$

Els valors de C_m i C_0 són concentracions simulades i observades, respectivament; a i b són els coeficients de regressió per mínims quadrats derivats de la regressió linear entre C_m i C_0; i N és el nombre total de parells de model/observació.

Aquestes noves mesures ajuden a identificar les fonts o tipus d'error, que poden ajudar considerablement a perfeccionar el model. El RMSE$_s$ representa la porció de l'error atribuïble als errors sistemàtics del model; i el RMSE$_u$ representa els errors aleatoris en el model o les entrades del model que són més difícils d'interpretar. Per a un bon model, la porció no sistemàtica del RMSE ha de ser més gran que la porció sistemàtica, mentre que un valor del RMSE$_s$ sistemàtic alt indica un mal model.

Els resultats es donen a les Taules 4 i 5 per a cada mes analitzat (juny-setembre 2008). No s'hi inclouen maig i octubre, ja que l'avaluació va començar el 19 de maig i dotze dies no són representatius, mentre que durant octubre hi va haver falta de mesures.

Taula 4. Errors sistemàtics i aleatoris per al pic de concentració d'ozó per a una mitjana d'1-h.

Mes	RMSE$_s$ (μg m^{-3})	$\left(\frac{RMSE_s}{RMSE}\right)^2 \cdot 100$ (%)	RMSE$_u$ (μg m^{-3})	RMSE (μg m^{-3})
Juny	11.32	(28.32)	18.01	21.27
Juliol	14.35	(45.30)	15.77	21.32
Agost	9.15	(24.67)	15.99	18.42
Setembre	15.40	(54.86)	13.97	20.79

Taula 5. Errors sistemàtics i aleatoris per al pic de concentració d'ozó per a una mitjana de 8-h.

Mes	RMSE$_s$ (μg m^{-3})	$\left(\frac{RMSE_s}{RMSE}\right)^2 \cdot 100$ (%)	RMSE$_u$ (μg m^{-3})	RMSE (μg m^{-3})
Juny	16.54	(61.09)	13.20	21.16
Juliol	11.99	(45.70)	13.07	17.74
Agost	10.48	(39.35)	13.01	16.71
Setembre	12.64	(43.83)	14.31	19.09

Taula 6. Valors del RDE calculats per a les 22 estacions representatives considerades durant tot el període estudiat.

Estació	RDE per al límit del valor objectiu (%)
Constantí	27.83
Pardines	7.42
Agullana	4.92
Juneda	17.75
Sort	14.50
Sta. Maria de Palautordera	23.08
Begur	14.83
Santa Pau	19.83
Gandesa	13.25
Bellver de Cerdanya	12.17
Ponts	12.50
La Sénia	15.42
Tarragona - Parc de la Ciutat	25.08
Rubí	42.58
Tona	2.67
Alcover	34.42
Guiamets	21.33
Berga	5.83
Vilafranca del Penedès	33.17
Mataró	10.75
Gavà	25.08
Barcelona - Vall d'Hebron	32.67

Per al cas estudiat, els resultats per als màxims de concentracions d'ozó d'1-h i 8-h mostren que els valors de l'error sistemàtic són inferiors als no sistemàtics. Tanmateix, els errors són similars, cosa que implica que el sistema de qualitat de l'aire s'ha de seguir millorant i perfeccionant. Per tal d'analitzar millor aquests resultats, hauríem de plantejar-nos realitzar una anàlisi detallada ampliada que identifiqués els factors clau que influencien aquests biaixos de pronòstic, com són la sensibilitat a les condicions sinòptiques, a l'esquema de la capa límit utilitzat al model meteorològic MM5, a les condicions de contorn prescrites i al mecanisme químic utilitzat al model CMAQ.

3.3 Configurant objectius de qualitat per a la "Incertesa" d'ozó definida per la directiva EC/2008/50

El 2008 el parlament europeu (EC 2008) va ratificar una nova directiva europea de la qualitat de l'aire. Aquesta directiva substituïa les anteriors amb la intenció de simplificar i racionalitzar la informació, així com d'introduir nous valors límit respecte de PM2.5. Mentre que les directives anteriors havien basat el càlcul i la informació en les dades de mesures, aquesta nova directiva posa més èmfasi en l'ús de models per a calcular la qualitat de l'aire a dins de les zones i les aglomeracions. La major atenció prestada a la modelització atorga als Estats Membres més flexibilitat a l'hora d'avaluar la informació i el potencial per reduir el cost del monitoratge de la qualitat de l'aire. Tanmateix, la modelització, com el control, requereix la implementació i la interpretació dels experts. Els models també han de ser comprovats i validats abans de poder ser utilitzats amb confiança per tal de calcular i gestionar la qualitat de l'aire (Denby et al., 2008).

Els objectius de qualitat per a un model es donen com una incertesa en percentatge. La incertesa es descriu en la directiva de la següent manera: "La incertesa per a la modelització es defineix com la desviació màxima dels nivells de concentració mesurats i calculats per al 90% dels punts de monitoratge individuals, en el període estudiat, per al valor límit (o valor objectiu en el cas de l'ozó), sense tenir en compte el moment temporal dels esdeveniments. La incertesa per la modelització s'interpretarà com a aplicable a la regió del valor límit apropiat (o valor objectiu en el cas de l'ozó). Les mesures fixades que han de ser seleccionades per a la comparació amb els resultats de la modelització seran representatives de l'escala coberta pel model."

Taula 7. Valors del MRDE per a cada període mensual així com per a tot el període.

Mes	MRDE per al límit del valor objectiu (%)
Juny	34.42
Juliol	31.33
Agost	27.83
Setembre	33.50
Tot el període	33.17

3.3.1 Formulació matemàtica dels objectius de qualitat de la Directiva

Com les directives anteriors, la formulació d'aquest text segueix sent ambigua. Com que els valors s'han de calcular, una fórmula matemàtica hauria aclarit molt més el significat. Per això, el terme "incertesa del model" segueix estant obert a interpretació. Malgrat això, Denby et al. (2008) suggereixen que se l'hauria d'anomenar Error Relatiu de la Directiva (RDE) i se l'hauria de definir matemàticament en una sola estació de la següent manera:

$$RDE = \frac{|O_{LV} - M_{LV}|}{LV} \tag{5}$$

on O_{LV} és la concentració observada més propera a la concentració del valor límit o el valor objectiu per a l'ozó i M_{LV} la concentració modelitzada corresponent. El màxim d'aquest valor trobat al 90% de les estacions disponibles és per tant l'Error Directiu Relatiu Màxim (MRDE).

Per a l'ozó, els valors mitjans del RDE calculats com a percentatge per a les 22 estacions representatives es presenten a la Taula 6. Els resultats mostren una àmplia extensió, que va des de valors baixos (2.67%) a les ciutats petites fins a valors alts a les ciutats i zones industrialitzades en les quals resulta difícil tenir en compte totes les emissions.

Els valors del MRDE, calculats com a percentatges per a cada mes així com per a tot el període considerat, es presenten a la Taula 7. Com a la secció anterior, maig i octubre no s'inclouen, ja que l'avaluació va començar el 19 de maig, i 12 dies no es consideren representatius. Durant el mes d'octubre, hi ha falta de mesures.

Els valors del MRDE presentats a la Taula 6 mostren percentatges a dins del marc regulador recomanat en la Directiva Europea EC/2008/50, que és del 50%.

4 Conclusions

Aquest estudi descriu l'avaluació d'un sistema de modelització regional acoblat utilitzat per a simular la qualitat de l'aire respecte de l'ozó sobre l'àrea del nord-oest mediterrani (Catalunya) durant finals de primavera, estiu i principis de tardor del 2008. El sistema de modelització consisteix en el model mesoescalar MM5, el model d'emissió MNEQA i el model fotoquímic CMAQ. Encara que els darrers anys a Catalunya s'hagin aplicat els mateixos models meteorològics i fotoquímics, aquests s'han avaluat durant períodes curts i utilitzant un model d'emissió diferent. Aquest estudi ha demostrat la capacitat del sistema de modelització de qualitat de l'aire MM5/MNEQA/CMAQ per pronosticar les concentracions d'ozó amb una precisió suficient, ja que les estadístiques encaixen a dins dels objectius europeus i de l'EPA de rendiment recomanat. Els resultats diürns per als pronòstics mitjans, d'1-h i 8-h, indiquen un comportament satisfactori del model. No obstant això, les concentracions d'ozó simulades a la nit no es poden mesurar i algunes estadístiques queden fora del marc regulador. Aquest comportament del model es podria atribuir a diversos factors, com el càlcul defectuós d'emissions a la nit, la no prou bona representació dels processos fotoquímics nocturns, i finalment, la incapacitat del model per a reproduir alguns paràmetres meteorològics, com la velocitat i la direcció del vent a la nit. Els resultats dels errors sistemàtics i no sistemàtics mostren valors similars, tot i que els errors no sistemàtics tendeixen a ser lleugerament més grans. A més, tot i que les estadístiques del model es troben dins dels objectius, algunes, quan es calculen localment, no compleixen amb els objectius reguladors. Aquesta avaluació també demostra una sèrie de problemes que han de ser resolts en futures validacions. La resolució del domini sobre Catalunya s'ha de millorar, ja que els estudis de dispersió de la contaminació de l'aire en terrenys complexos necessiten una modelització d'alta resolució de la qualitat de l'aire per tal de resoldre els patrons complexos de circulació com les brises del mar, els fluxos de drenatge o els fluxos de canalització, que no sempre són vistos pel model meteorològic que utilitza una àmplia resolució horitzontal. A més a més, augmentant la resolució, es podria incloure un nombre més gran d'estacions en la validació. Actualment, s'està introduint una nova resolució de 3 km.

Agraïments. Aquesta recerca va rebre el suport de la Generalitat de Catalunya amb els contractes FBG-304.471 i FBG-304.980. Els autors volen donar les gràcies als tècnics d'aquest departament per proporcionar-los informació sobre l'inventari d'emissions i les mesures de qualitat de l'aire. També volen donar les gràcies al Servei Meteorològic de Catalunya per proporcionar-los els camps meteorològics inicials i de contorn per tal d'executar l'MM5.

Referències

Abdul-Wahab, S. A., Bakheit, C. S., i Al-Alawi, S. M., 2005: *Principal component and multiple regression analysis in modelling of ground-level ozone and factors affecting its concentration*, Environ Modell Softw, **20**, 1263–1271.

Aguirre-Basurko, E., Ibarra-Berastegui, I., i Madariaga, I., 2006: *Regression and multilayer perceptron-based models to forecast hourly O3 and NO2 levels in the Bilbao area*, Environ Modell Softw, **21**, 430–446.

Appel, K. W., Gilliland, A. B., Sarwar, G., i Gilliam, R. C., 2007: *Evaluation of the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model version 4.5: Sensitivities impacting model performance. Part I-Ozone*, Atmos Environ, **41**, 9603–9615.

Brankov, E., Henry, R. F., Civerolo, K. L., Hao, W., Rao, S. T., Misra, P. K., Bloxam, R., i Reid, N., 2003: *Assessing the effects of transboundary ozone pollution between Ontario, Canada and New York, USA*, Environ Pollut, **123**, 403–411.

Bravo, M., Mira, T., Soler, M. R., i Cuxart, J., 2008: *Intercomparison and evaluation of MM5 and Meso-NH mesoscale models in the stable boundary layer*, Bound-Layer Meteor, **128**, 77–101.

Byung, D. W. i Ching, J. K. S., 1999: Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modelling System, U.S. EPA/600/R-99/030.

Denby, B., Larssen, S., Guerreiro, C., Douros, J., Moussiopoulos, N., Fragkou, L., Gauss, M., Olesen, H., i Miranda, A. I., 2008: Guidance on the use of models for the European air quality directive, ETC/ACC Report.

Dudhia, J., 1996: A multi-layer soil temperature model for MM5. Preprints, Sixth PSU/NCAR Mesoscale Model Users' Workshop, NCAR, Boulder, CO, 49-50.

Dudhia, J., Gill, D., Manning, K., Wang, W., i Bruyere, C., 2004: PSU/ NCAR mesoscale modeling system tutorial class notes and user's guide: MM5 modeling system version 3, NCAR, http://www.mmm.ucar.edu/mm5/documents/tutorial-v3-notes.html.

EMEP, 2007: EMEP/MMSC-W Technical Report 1/2006 ISSN 1504-6179, http://www.emep.int.

Gangoiti, G., Millan, M., Salvador, R., i Mantilla, E., 2001: *Long-range transport and re-circulation of pollutants in the western Mediterranean during the project Regional Cycles of Air Pollution in the West-central Mediterranean Area*, Atmos Environ, **35**, 6267–6276.

Grell, G., 1993: *Prognostic evaluation of assumptions used by cumulus parameterizations*, Mon Weather Rev, **121**, 764–787.

Grell, G., Dodhia, J., i Stauffer, D., 1994: A Description of the Fifth Generation Penn State/ NCAR Mesoscale Model (MM5), NCAR. Tech. Note TN-398+STR, NCAR, Boulder, CO, 117 pp.

Grossi, P., Thunis, P., Martilli, A., i Clappier, A., 2000: *Effect of sea breeze on air pollution in the greater Athens area: Part II: Analysis of different Emissions Scenarios*, J Appl Meteorol, **39**, 563–575.

Guderian, R., Tingey, D. T., i Rabe, R., 1985: Effects of photochemical oxidants on plants. Air Pollution by Photochemical Oxidants, Guderian R., Springer, Berlin, pp. 129-333.

Hewit, C., Lucas, P., Wellburn, A., i Fall, R., 1990: *Chemistry of ozone damage to plants*, Chem Ind, **15**, 478–481.

Hogrefe, C., Rao, S. T., Kasibhatla, P., Kallos, G., Tremback, C. T., Hao, W., Sistla, G., Mathur, R., i McHenry, J., 2001: *Evaluating the performance of regional-scale photochemical modelling systems: Part II- ozone predictions*, Atmos Environ, **35**, 4175–4188.

Hurley, P. J., Physick, W. L., i Luhar, A. K., 2005: *TAPM: a practical approach to prognostic meteorological and air pollution modelling*, Environ Modell Softw, **20**, 737–752.

Jimenez, J., Baldasano, J. M., i Dabdub, D., 2003: *Comparison of photochemical mechanisms for air quality modeling*, Atmos Environ, **37**, 4179–4194.

Jiménez, P., Jorba, O., Parra, R., i Baldasano, J. M., 2006a: *Evaluation of MM5-EMICAT2000-CMAQ performance and sensitivity in complex terrain: High-resolution application to the Northeastern Iberian Peninsula*, Atmos Environ, **40**, 5056–5072.

Jiménez, P., Lelieveld, J., i Baldasano, J. M., 2006b: *Multiscale Modelling of air pollutants Dynamics in the North-Western Mediterranean Basin during a typical summertime episode*, J Geophys Res, **111**, D18 306.

Jiménez, P., Jorba, O., Baldasano, J. M., i Gassó, S., 2008: *The Use of a Modelling System as a Tool for Air Quality Management: Annual High-Resolution Simulations and Evaluation*, Sci Total Environ, **390**, 323–340.

Lee, S. i Fernando, H. J. S., 2004: *Evaluation of Meteorological Models MM5 and HOTMAC Using PAFEX-I Data*, J Appl Meteorol, **43**, 1133–1148.

Mauzerall, D. L., Sultan, B., Kim, J., i Bradford, D., 2005: *NOx emissions: variability in ozone production, resulting health damages and economic costs*, Atmos Environ, **39**, 2851–2866.

Millan, M., Mantilla, E., Salvador, R., Carratala, A., Sainz, J. M., Alonso, L., Gangoiti, G., i Navazo, M., 2000: *Ozone cycles in the western Mediterranean basin: Interpretation of monitoring data in complex coastal terrain*, J Appl Meteorol, **39**, 487–508.

Ortega, S., Soler, M. R., Alarcón, M., i Arasa, R., 2009: *MNEQA: An emissions model for photochemical simulations*, Atmos Environ, **43**, 3670–3681.

Parra, R., 2004: Desarrollo del modelo EMICAT2000 para la estimación de emisiones de contaminantes del aire en Cataluña y su uso en modelos de dispersión fotoquímica, PhD Dissertation, Universitat Politècnica de Catalunya, Spain, PhD Dissertation, http://www.tdx.cat/TDX-0803104-102139.

San José, R., Stohl, A., Karatzas, K., Bohler, T., James, P., i Pérez, J. L., 2005: *A modelling study of an extraordinary night time ozone episode over Madrid domain*, Environ Modell Softw, **20**, 587–593.

Schlink, U., Herbarth, O., Richter, M., Dorling, S., Nunnari, G., Gawley, G., i Pelikan, E., 2006: *Statistical models to assess the health effects and to forecast ground level ozone*, Environ Modell Softw, **21**, 547–558.

Schultz, P., 1995: *An explicit cloud physics parameterization for operational numerical weather prediction*, Mon Weather Rev, **123**, 3331–3343.

Schürmann, G. J., Algieri, A., Hedgecock, I. M., Manna, G., Pirrone, N., i Sprovieri, F., 2009: *Modelling local and synoptic scale influences on ozone concentrations in a topographically complex region of Southern Italy*, Atmos Environ, **43**, 4424–4434.

Seigneur, C., Pun, B., Pai, P., Louis, J. F., Solomon, P., Emery, C., Morris, R., Zahniser, M., Worsnop, D., Koutrakis, P., White, W., i Tombach, I., 2000: *Guidance for the performance evaluation of three-dimensional air quality modeling systems for particulate matter and visibility*, J Air Waste Manage Assoc, **50**, 588–599.

Serrano, E., Macias, A., i Castro, M., 1993: *An improved direct method of rubber craking analysis for estimating 24-hour ozone levels*, Atmos Environ, **27**, 431–442.

Silibello, C., Calori, G., Brusasca, G., Catenacci, G., i Finzi, G., 1998: *Application of a photochemical grid model to Milan metropolitan area*, Atmos Environ, **32**, 2025–2038.

Sistla, G., Zhou, N., Hao, W., Ku, J. Y., i Rao, S. T., 1996: *Effects of uncertainties in meteorological inputs of Urban Airshed Model predictions and ozone control strategies*, Atmos Environ, **30**, 2011–2025.

Sitch, S., Cox, P. M., Collins, W. J., i Huntingford, C., 2007: *Indirect Radiative Forcing of Climate Change through Ozone Effects on the Land-Carbon Sink*, Nature, **448**, 791–794.

Sokhi, R. S., San José, R., Kitwiroon, N., Fragkou, E., Pérez, J. L., i Middleton, D. R., 2006: *Prediction of ozone levels in London using the MM5-CMAQ modelling system*, Environ Modell Softw, **21**, 566–576.

Soler, M. R., Hinojosa, J., Bravo, M., Pino, D., i Vilà Guerau de Arellano, J., 2004: *Analyzing the basic features of different com-*

plex terrain flows by means of a Doppler Sodar and a numerical model: Some implications to air pollution problems, Meteorol Atmos Phys, **85**, 141–154.

Troen, I. S. i Mahrt, L., 1986: *A simple model of the atmospheric boundary layer; sensitivity to surface evaporation*, Bound-Layer Meteor, **37**, 129–148.

US EPA, 1991: Guideline for Regulatory Application of the Urban Airshed Model, Office of Air and Radiation, Office of Air Quality Planning and Standards, Technical Support Division, Research Triangle Park, North Carolina, US, US EPA Report No. EPA-450/4-91-013.

US EPA, 2005: Guidance on the use of models and other analyses in attainment demonstrations for the 8-hour ozone NAAQS, Office of Air Quality Planning and Standards, Research Triangle Park, North Carolina, US, US EPA Report No. EPA-454/R-05-002. October 2005, 128 pp.

US EPA, 2007: Guidance of the use of models and other analysis for demonstrating attainment of air quality goals for ozone, PM2.5 and Regional haze, US Environmental protection Agency, Research Triangle Park, North Carolina, US, EPA-454/B-07-002.

Vestreng, V., Rigler, E., Adams, M., Kindbom, K., Pacyna, J. M., Denier van der Gon, H., Reis, S., i Travnikov, O., 2006: Inventory review. Emission data reported to LRTAP and NEC Directive; Stage 1, 2, and 3 review; Evaluation of inventories of HMs and POPs.

Yarwood, G., Roa, S., Yocke, M., i Whitten, G., 2005: Updates to the carbon bond chemical mechanism: CB05, Final report to the US EPA, RT-0400675, http://www.camx.com.

Zhang, Y., Liu, P., Pun, B., i Seigneur, C., 2006a: *A Comprehensive Performance Evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study Episode, Part-I. Evaluation Protocols, Databases and Meteorological Predictions*, Atmos Environ, **40**, 4825–4838.

Zhang, Y., Liu, P., Queen, A., Misenis, C., Pun, B., Seigneur, C., i Wu, S. Y., 2006b: *A Comprehensive Performance Evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study Episode, Part-II.Gas and Aerosol Predictions*, Atmos Environ, **40**, 4839–4855.

Zunckel, M., Koosailee, A., Yarwood, G., Maure, G., Venjonoka, K., van Tienhoven, A. M., i Otter, L., 2006: *Modelled surface ozone over southern Africa during the Cross Border Air Pollution Impact Assessment Project*, Environ Modell Softw, **21**, 911–924.