

# EPISODIOS AGUDOS DE CONTAMINACIÓN POR OZONO EN LA CIUDAD DE BARCELONA

RESOLUCIÓN DEL 28/04/2023 DE LA DIRECTORA GENERAL DE CALIDAD Y  
EVALUACIÓN AMBIENTAL POR LA QUE SE CONCEDE UNA SUBVENCIÓN  
DE LA PARTIDA 23.08.000X.730 “PARA TRABAJOS RELACIONADOS CON  
LA PROTECCIÓN DEL MEDIO AMBIENTE” DE LOS PRESUPUESTOS  
GENERALES DEL ESTADO PARA 2023

## INFORME PLAN OZONO

Realizado por:



Para:

Subdirección General de Aire Limpio y Sostenibilidad Industrial  
Dirección General de Calidad y Evaluación Ambiental  
Ministerio para la Transición Ecológica y el Reto Demográfico



*Febrero de 2024*

**Autores:**

Jordi Massagué, Cristina Carnerero, Andrés Alastuey, Marco Pandolfi, Xavier Querol  
Instituto de Diagnóstico Ambiental y Estudios del Agua (IDAEA)  
Consejo Superior de Investigaciones Científicas (CSIC)

Eduardo de la Torre, Gotzon Gangoiti  
Departamento de Ingeniería Química y del Medio Ambiente  
Escuela de Ingeniería de Bilbao  
Universidad del País Vasco (UPV/EHU)

Miguel Escudero  
Departamento de Física Aplicada  
Escuela de Ingeniería y Arquitectura  
Universidad de Zaragoza (UNIZAR)

## CONTENIDO

1. OBJETO DEL INFORME.....	4
2. INTRODUCCIÓN Y OBJETIVOS.....	5
3. METODOLOGÍA.....	7
3.1 Área de estudio .....	7
3.2 Datos observacionales .....	9
3.3 Herramientas de modelización .....	10
4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN.....	12
4.1 Resumen de episodios extremos de ozono en la ciudad de Barcelona .....	12
4.2 Episodio de 2015 (6 de junio).....	12
4.2.1 Contexto meteorológico .....	12
Situación Sinóptica .....	12
Observaciones locales .....	14
4.2.2 Concentraciones de ozono en superficie .....	14
4.2.3 Resultados de modelización.....	16
Análisis de trayectorias .....	16
Modelo fotoquímico.....	18
4.3 Episodio de 2018 (4 y 5 de agosto) .....	19
4.3.1 Contexto meteorológico .....	19
Situación Sinóptica .....	19
Observaciones locales .....	20
4.3.2 Concentraciones de ozono en superficie .....	21
4.3.3 Resultados de modelización.....	22
Análisis de trayectorias .....	22
Modelo fotoquímico.....	23
4.4 Episodio de 2019 (29 de junio).....	24
4.4.1 Contexto meteorológico .....	24
Situación Sinóptica .....	24
Observaciones locales .....	25
4.4.2 Concentraciones de ozono en superficie .....	26
4.4.3 Resultados de modelización.....	29
Análisis de trayectorias .....	29
Modelo fotoquímico.....	30
5. ANÁLISIS CONJUNTO Y CONCLUSIONES.....	32
6. AGRADECIMIENTOS.....	33
7. BIBLIOGRAFÍA .....	34
MATERIAL SUPLEMENTARIO .....	39
S1. Episodio 2015 (6 junio).....	39
S2. Episodio 2018 (4 y 5 de agosto).....	44
S3. Episodio 2019 (29 de junio).....	48
S4. Estimaciones de contribuciones de ozono durante los episodios .....	52
S5. Configuración del modelo fotoquímico.....	55
S6. Validación de las simulaciones del modelo fotoquímico .....	57
Referencias del material suplementario .....	61

## 1. OBJETO DEL INFORME

Para el estudio de la dinámica de formación del O<sub>3</sub> troposférico en el territorio español en el marco de las transferencias directas recibidas por el CSIC 2021, 2022 y 2023, se prevé realizar las actuaciones listadas debajo, con informes preliminares. Estas actuaciones cubren parte de las previstas en lo planeado para un periodo de 4 años (mediados 2021 a mediados 2025). A continuación, se resumen las actuaciones previstas para el programa de 4 años.

Por parte del CSIC:

- Estudio de tendencias de concentraciones de O<sub>3</sub> y contaminantes relacionados, y datos meteorológicos disponibles en la base de datos de MITERD/AEMET en el período 2010–2023.
- Análisis en detalle de variabilidad espacial y temporal de las concentraciones de O<sub>3</sub> durante el período de confinamiento por la COVID-19 y años posteriores.
- **Integración de los resultados obtenidos relativos a las concentraciones de O<sub>3</sub> en los estudios llevados hasta el momento por el equipo de investigación en las cuencas atmosféricas de: Vic, Madrid, Valle del Guadalquivir, Castilla-León, Comunidad Valenciana, País Vasco y Puertollano.**
- Integración de los resultados obtenidos relativos a las concentraciones de compuestos orgánicos volátiles (COVs) en los estudios llevados hasta el momento por el equipo de investigación en las cuencas atmosféricas diversas y medidas en continuo de COVs en Barcelona.

Por parte del BSC:

- Modelización de episodios de O<sub>3</sub>. Configuración del sistema de modelización, estudio de sensibilidad a resolución numérica, condiciones meteorológicas, emisiones antropogénicas. Evaluación de los resultados del modelo con observaciones en las cuencas atmosféricas de interés (Vic, Madrid, Valle del Guadalquivir, Castilla-León).
- Análisis de contribución de fuentes a los niveles de O<sub>3</sub>. Cálculo de la contribución de O<sub>3</sub> procedente de países europeos y Norte de África a las cuencas de interés y su importancia relativa a los niveles nacionales. Contribución del tráfico marítimo al O<sub>3</sub> nacional.
- Cuantificación del impacto del confinamiento por la COVID-19 en las emisiones antropogénicas y niveles de O<sub>3</sub> a nivel nacional mediante técnicas de modelización. Estimación de los cambios de emisiones a lo largo de 2020 mediante técnicas de inteligencia artificial.

En base a lo expuesto en el apartado anterior y en la tarea marcada en negrita unos párrafos más arriba, este informe tiene como objetivo el estudio de fenomenología y causas de los episodios de contaminación de O<sub>3</sub> extremos en la ciudad de Barcelona, registrados solamente en tres ocasiones entre 2015–2019, sin haber ocurrido en el periodo 2000–2015.

Los resultados de este informe han sido validados científicamente mediante su publicación en una revista científica de alto impacto: <https://doi.org/10.5194/egusphere-2023-2449>



## **2. INTRODUCCIÓN Y OBJETIVOS**

El ozono troposférico ( $O_3$ ) es un contaminante atmosférico secundario fuertemente oxidante que afecta negativamente a la salud humana, los ecosistemas y los materiales (OMS, 2013a, b; 2021; GBD, 2016; Fowler et al., 2009; IPCC, 2021). Su formación depende en gran medida de precursores ( $NO_x$ ,  $CH_4$ , CO y compuestos orgánicos volátiles no metánicos, COVs) y la radiación solar. Su producción se ve favorecida en condiciones de altas temperaturas y baja humedad relativa (Monks et al., 2015), que contribuyen a eventos extremos de  $O_3$ . Estos eventos se han relacionado con olas de calor y un aumento en la mortalidad a nivel global (por ejemplo, Vautard et al., 2005; Pu et al., 2017; Jaen et al., 2021).

La relación  $NO_x$ /COVs influye en gran medida en la formación del  $O_3$ . En entornos urbanos, la producción de  $O_3$  suele estar en régimen COV-limitada debido a los niveles relativamente altos de  $NO_x$ , mientras que, en entornos suburbanos y rurales, donde los niveles de  $NO_x$ /COVs son bajos, suele ser  $NO_x$ -limitada (Sillman et al., 1990; Sillman and He, 2002). En entornos urbanos, el régimen COV-limitado generalmente resulta en el "efecto fin de semana", en el que las concentraciones de  $O_3$  suelen ser más altas en días no laborables debido a una menor emisión de sustancias que consumidoras de  $O_3$  (Heuss et al., 2003; Jiménez et al., 2005).

Estudios epidemiológicos indican impactos perjudiciales en la salud humana por exposiciones al  $O_3$  tanto a largo como a corto plazo (OMS, 2021). En ciertas áreas de Europa, la contaminación por  $O_3$  representa un importante problema de calidad del aire (EEA, 2015), lo que ha llevado al establecimiento de estándares de calidad del aire para mitigar sus efectos nocivos. La Directiva Europea de Calidad del Aire 2008/50/CE (EC, 2008) ha establecido estos estándares tanto para la exposición al  $O_3$  crónica como para la episódica.

Los países al sur de Europa y en particular de la región mediterránea, son las áreas del continente europeo más expuestas a eventos de contaminación por  $O_3$  (EEA, 2020). En la Cuenca del Mediterráneo Occidental, varios factores influyen en los niveles altos de  $O_3$  (por ejemplo, Millán et al., 1997, 2000; Gangoiti et al., 2001; Millán, 2014), incluyendo patrones meteorológicos, climáticos y topográficos característicos, altas emisiones biogénicas durante las estaciones calurosas (Seco et al., 2011) y circulaciones mesoescalares recurrentes durante el verano (Castell et al., 2008; Diéguez et al., 2009, 2014), transporte regional de  $O_3$  (Pay et al., 2019), altas emisiones de precursores en cuencas aéreas específicas (Querol et al., 2017, 2018; Escudero et al., 2019), e intrusiones estratosféricas (Kalabokas et al., 2017). Las diferentes contribuciones del  $O_3$  a las concentraciones en superficie pueden variar ampliamente en tiempo y espacio, por lo que las causas de las superaciones de los estándares de calidad del aire también pueden variar considerablemente, incluso dentro de una misma cuenca. Por lo tanto, las concentraciones de  $O_3$  pueden ser resultado de (i) formación local a partir de precursores emitidos en la misma cuenca atmosférica, en algunos casos favorecida por eventos de recirculación vertical de masas de aire; (ii) transporte regional desde otras cuencas aéreas u otras zonas de Europa; (iii) transporte hemisférico; o (iv) intrusiones estratosféricas.

Las concentraciones de  $O_3$  en la ciudad de Barcelona no son particularmente altas en comparación con otras zonas del país (Querol et al., 2016; Massagué et al., 2023), probablemente debido a la fuerte titración y ozonólisis de  $O_3$  (Monks et al., 2015) causada por

emisiones de compuestos consumidores de  $O_3$  locales, lo que resulta en superaciones poco frecuentes de los límites legales establecidos por la Directiva Europea. Sin embargo, desde al menos el año 2000, solo se han detectado superaciones del Umbral horario de Información (IT, concentración de  $O_3 > 180 \mu g \cdot m^{-3}$ ) en los veranos de 2015, 2018 y 2019 (Gencat, 2022). Estos eventos extremos expusieron a una gran parte de la población a concentraciones excepcionalmente altas de  $O_3$ , lo que es resulta especialmente relevante dado que Barcelona es la segunda área urbana más poblada de España, con algunos barrios con la mayor densidad de población en Europa.

El objetivo de esta investigación es profundizar en la fenomenología de los recientes episodios de concentraciones extremas de  $O_3$  en Barcelona mediante el análisis de procesos clave meteorológicos, de transporte y formación además de obtener información relevante para anticipar y prever su posible recurrencia en el futuro.

### 3. METODOLOGÍA

El análisis integral de los episodios, utiliza una metodología que comprende múltiples herramientas y conjuntos de datos, incluyendo datos observacionales en superficie y satelitales, reanálisis meteorológicos, simulaciones de trayectorias (*forward* y *backward*) de alta resolución, y simulaciones fotoquímicas.

#### 3.1 Área de estudio

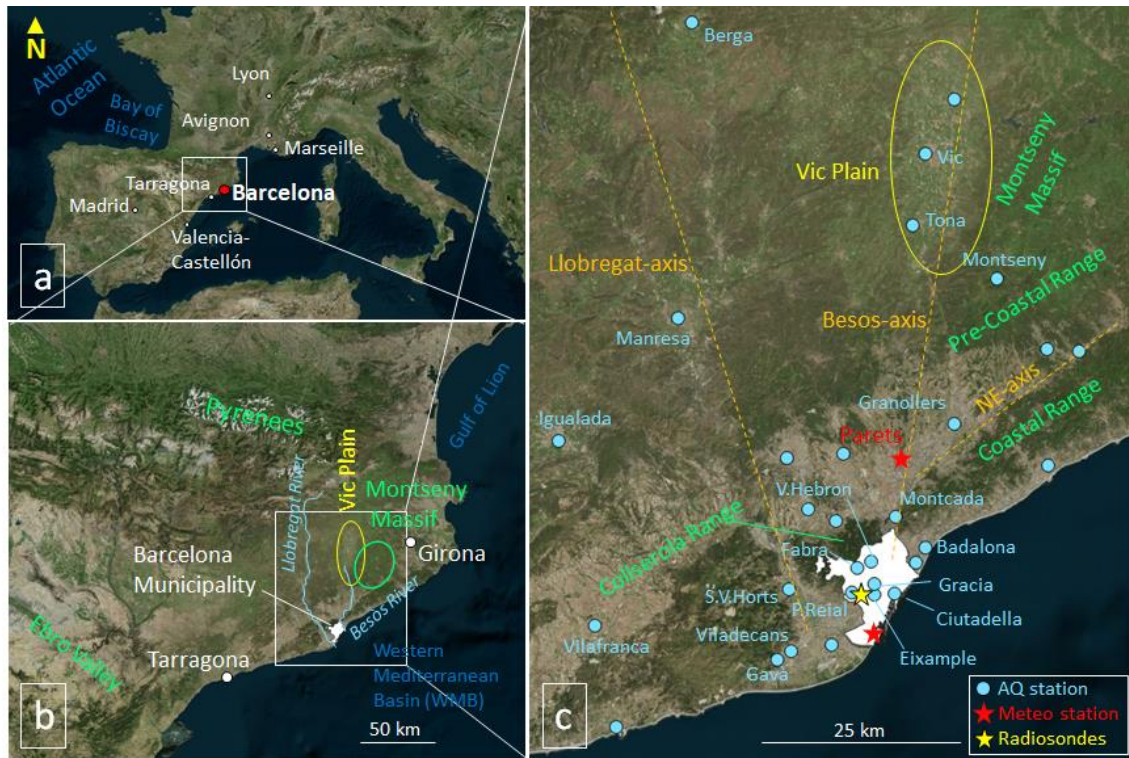
Este estudio se centra en Barcelona, la segunda área urbana más poblada en España. La urbe, ubicada en la costa noreste de la Península Ibérica (PI), cuenta con 1,6 millones de habitantes dentro de los límites de la ciudad y hasta 5,2 millones en la zona metropolitana contigua (MITMA, 2021).

Barcelona está situada en una llanura de 170 km<sup>2</sup> bordeada por el Mediterráneo al este, la cordillera de Collserola (con altitudes de hasta 516 m sobre el nivel del mar, s.n.m) al noroeste, y las desembocaduras de dos ríos al norte y al suroeste (Besòs y Llobregat, Figura 1b). La compleja orografía de la región, junto con las condiciones meteorológicas predominantes en verano influyen los patrones de flujo de masas de aire (Toll y Baldasano, 2000) y facilitan circulaciones mesoescalares como las brisas marítimas/de montaña que se dirigen en dirección norte hacia los Pirineos (Barros et al., 2003; Pérez et al., 2004; Diéguez et al., 2009).

Barcelona y su área metropolitana (AMB) son fuentes significativas de emisiones de NO<sub>x</sub> y COVs procedentes del tráfico rodado, sector industrial, las actividades navieras y fuentes domésticas. En verano, masas de aires ricas en O<sub>3</sub> y sus precursores son transportadas hacia el interior y, combinadas con las altas emisiones biogénicas de COVs de áreas forestales cercanas, pueden causar episodios severos de O<sub>3</sub> en áreas a sotavento (Toll y Baldasano, 2000; Pérez et al., 2004; Gonçalves et al., 2009; Diéguez et al., 2009; Valverde et al., 2016; Querol et al., 2017).

Diéguez et al. (2009) propusieron tres rutas a través de las cuales las emisiones provenientes del AMB pueden llegar a los Pirineos Orientales (Figura 1c): (i) la cuenca del Llobregat (en adelante, eje-Llobregat), (ii) la cuenca del Besòs-Ter (en adelante, eje-Besòs) y (iii) la dirección noreste (en adelante, eje-NE) situada entre las cordilleras litoral y pre-litoral, que incluye una importante autopista (AP-7) con importantes emisiones procedentes del tráfico. Las masas de aire pueden transportarse a lo largo de estas rutas o ejes, dependiendo de las condiciones meteorológicas (Diéguez et al., 2009). Estos patrones en el transporte de masas de aire dan lugar a superaciones frecuentes de los umbrales de O<sub>3</sub> en las estaciones de vigilancia de la calidad del aire a lo largo de estos ejes. Un ejemplo representativo es la Plana de Vic, ubicada en el eje-Besòs, 60 km al norte de Barcelona, reconocida como un *hotspot* de superaciones del umbral de información en España (Querol et al., 2016; Massagué et al., 2023).

Al igual que en el AMB, las emisiones a la atmosfera industriales y urbanas de Tarragona contribuyen a los habituales altos niveles de O<sub>3</sub> en las áreas a sotavento, del norte y noroeste en este caso (Querol et al., 2016). Tarragona se encuentra en la costa, a 90 km al suroeste de Barcelona (Figura 1b), y está rodeada de importantes complejos industriales químicos y petroquímicos.



Localización	Nombre de AQMS	Tipo	Código europeo	Latitud (grad.)	Longitud (grad.)	Altitud (m s.n.m.)
Barcelona ciudad	Puerto de Barcelona	Meteo	D5	41,31725	2,16537	3
	Facult. Físicas. Univ. Bcn	Radiosondeos	-	41,38553	2,11720	70
	Ciutadella	UB	ES1679A	41,38641	2,18742	7
	Fabra	SB	ES2090A	41,41840	2,12390	418
	P.Reial	UB	ES1992A	41,38748	2,11515	81
	Gràcia	UT	ES1480A	41,39874	2,15339	57
	V.Hebron	UB	ES1856A	41,42608	2,14799	136
	Eixample	UT	ES1438A	41,38534	2,15382	26
Àrea Metropolitana de Barcelona (AMB)	Badalona	UB	ES1892A	41,44398	2,23788	7
	Gava	SB	ES1910A	41,30311	1,99152	25
	Viladecans	SB	ES1903A	41,31348	2,01382	14
	S.V Horts	SB	ES0694A	41,39216	2,00980	38
	Montcada	ST	ES0584A	41,48202	2,18830	34
	Granollers	UT	ES1891A	41,59867	2,28712	133
	Parets	Meteo	XG	41,56734	2,22619	123
Macizo del Montseny	Montseny	RB	ES1778A	41,77934	2,35802	693
Plana de Vic	Tona	RB	ES1923A	41,84603	2,21758	620
	Vic	SB	ES1642A	41,93567	2,23857	498

Figura 1. Parte superior: Área de estudio. Los puntos azules representan estaciones de monitoreo de la calidad del aire (AQMSs). Solo se muestran los nombres de las AQMSs utilizadas en el estudio en (c), las demás se mantienen como referencia. Las estrellas rojas indican estaciones meteorológicas. La estrella amarilla indica la ubicación de lanzamiento de los radiosondeos. Parte inferior: Características principales de las AQMSs. Los tipos son: UB: fondo urbano, UT: tráfico urbano, SB: fondo suburbano, ST: tráfico suburbano, RB: fondo rural. Las estaciones meteorológicas están identificadas con su código de la Oficina Meteorológica Catalana (Meteocat). Para Barcelona, los datos de viento provienen del puerto de Barcelona, y la temperatura y humedad relativa provienen del mismo lugar que la estación de Fabra. El área marcada en blanco representa el municipio de Barcelona.

Gangoiti et al. (2001, 2006) describieron el patrón climático recurrente durante la temporada cálida en el área de estudio, que dirige los vientos Mistral y Tramontana (procedentes del norte y noroeste a través del Golfo de León) hacia las capas bajas de la Cuenca del Mediterráneo Occidental a través del Golfo de León. Este flujo tiene una pulsación diurna, desplazándose hacia

el este durante el día y hacia el sur por la tarde y noche debido a la subsidencia compensatoria general que coincide con las brisas marinas. En consecuencia, las masas de aire que ingresan por el Golfo de León por la noche pueden ser capturadas por las brisas marinas a lo largo de la costa este de Iberia, reingresando en los mismos ciclos durante varios días.

En este contexto, se pueden dar procesos de acumulación por recirculación de masas de aire cargadas de  $O_3$  durante varios días, especialmente durante la ausencia típica de advecciones sinópticas significativas durante el verano. Por lo tanto, bajo condiciones anticiclónicas persistentes, las masas de aire pueden acumular gradualmente  $O_3$ , implicando un aumento progresivo de las concentraciones en las mismas áreas en días subsiguientes. Estas situaciones generalmente terminan con la llegada de un sistema frontal, que ventila el  $O_3$  acumulado y eventualmente puede transportar masas de aire prefrontales africanas cargadas de polvo con distintas propiedades, liderando el frente frío (Millán et al., 1997, 2000, 2002; Toll y Baldasano, 2000; Gangoiti et al., 2001; Gangoiti et al., 2006; Jiménez et al., 2006; Diéguez et al., 2009, 2014; Millán, 2014; Querol et al., 2017).

En el área de estudio, estas condiciones pueden dar lugar a un sistema de circulación abierto o cerrado (Querol et al., 2017 y referencias). De esta manera, el AMB actúa como una fuente significativa de emisiones de precursores, mientras que las áreas a sotavento actúan como zonas receptoras. Por esta razón, en este estudio, hemos examinado la evolución del  $O_3$  en superficie no solo en las AQMSs dentro de la ciudad donde se registran los episodios, sino también en localizaciones a lo largo de los ejes mencionados y sus alrededores (Figura 1c).

### 3.2 Datos observacionales

Se han utilizado los siguientes conjuntos de datos:

- Concentraciones horarias de  $O_3$ ,  $NO_2$  y  $NO$  proporcionadas por la Agencia Europea de Medio Ambiente (EEA, <https://www.eea.europa.eu/en/topics/in-depth/air-pollution/national-air-pollutant-emissions-data-viewer-2005-2022>) para todas las AQMSs con mediciones disponibles de  $O_3$  durante los períodos de estudio en el sur de Francia y el noreste de España.
- Datos meteorológicos horarios (temperatura, humedad relativa, radiación solar y velocidad/dirección del viento) de dos estaciones meteorológicas ubicadas en el área de estudio (Figura 1), obtenidas de la Oficina Meteorológica de Cataluña (<https://analisi.transparenciacatalunya.cat/en/Medi-Ambient/Dades-meteorologiques-de-la-XEMA/nzvn-apee>).
- Datos meteorológicos verticales de alta resolución (temperatura, humedad relativa y velocidad/dirección del viento) provenientes de radiosondeos realizados en la ciudad de Barcelona a las 00 y 12 UTC, proporcionados por la Facultad de Física de la Universidad de Barcelona. También utilizamos estimaciones de la altura de la capa de mezcla (MLH) a las 12 UTC utilizando el *simple parcel method* (Holzworth et al., 1964).
- Observaciones diarias de la columna troposférica de  $NO_2$  (solo para el episodio de 2019) obtenidas del instrumento TROPOMI, un sensor satelital de observación de alta resolución a bordo del satélite Precursor Sentinel-5 de la ESA (Veefkind et al., 2012). Las observaciones (*offline*) utilizadas son de frecuencia diaria realizadas a las 13:30 hora solar local y se almacenan en forma de cuadrículas o rásteres (resolución de  $5.5 \times$

3.5 km<sup>2</sup>) (Van Geffen et al., 2019). Para su obtención se ha utilizado un script en Google Earth Engine (Gorelick et al., 2017) y un valor o *flag* de calidad siempre mayor a 0.75.

### 3.3 Herramientas de modelización

Se realizaron simulaciones de trayectoria *backward* y *forward* de alta resolución utilizando el modelo mesoescalar *Regional Atmospheric Modelling System* (RAMS) ([http://www.atmet.com/software/rams\\_soft.shtml](http://www.atmet.com/software/rams_soft.shtml)) y el modelo *HYbrid PArticle Concentration and Transport* (HYPACT) ([http://www.atmet.com/software/hypact\\_soft.shtml](http://www.atmet.com/software/hypact_soft.shtml)). Utilizamos tres dominios cuadrados anidados, centrados en Barcelona, con resoluciones de cuadrícula de 3, 12 y 48 km, que se extienden hasta 190, 1000 y 2600 km alrededor de la ciudad, respectivamente. Las retrotrayectorias que terminaron a menos de 400 m sobre el nivel del suelo en la ciudad se utilizaron para identificar fuentes de precursores y O<sub>3</sub> a barlovento. Partículas trazadoras emitidas desde una selección de estas fuentes a barlovento (ciudades) se utilizaron luego para evaluar la eventual convergencia de las trayectorias *forward* en Barcelona, utilizando una metodología similar a la de Gangoi et al. (2001, 2002, 2006, 2011) y más recientemente In't Veld et al. (2021): dado que utilizamos tasas de emisión constantes de todas las fuentes urbanas, esta herramienta no evalúa la contribución real de cada fuente, sino la eficiencia del transporte atmosférico hacia la capa límite planetaria (PLB en inglés) de Barcelona. Esto se hace a una resolución horaria durante el episodio de contaminación. La metodología es útil para identificar posibles ubicaciones de fuentes y el potencial de convergencia desde diferentes regiones fuente. La altura de la PBL y la elevación del terreno influyen en la cantidad de partículas que llegan a los sitios receptores y en la distribución de las fuentes confluentes. Los puntos receptores considerados en Barcelona fueron Ciutadella y Palau Reial, ubicados cerca del nivel del mar, y Fabra, ubicado unos 400 metros a más altura. Estas ubicaciones coinciden con las AQMSs correspondientes con los mismos nombres (Figura 1). La altura de la PBL se obtuvo del reanálisis ERA5 del Centro Europeo de Predicción Meteorológica a Plazo Medio (ECMWF), <https://cds.climate.copernicus.eu/datasets/reanalysis-era5-single-levels?tab=download>. Los datos utilizados fueron del reanálisis ERA5 a mediodía en el punto de la cuadrícula más cercano a las coordenadas correspondientes de la AQMS Palau Reial.

También se llevaron a cabo simulaciones de fotoquímica y dispersión mediante el *Comprehensive Air Quality Model with extensions* (CAMx, versión 6.5, Ramboll Environment and Health, 2018). Se utilizó el mecanismo gas-fase CB6r4 y utilizó la herramienta SPECIATE (EPA, 2016) para especiar NO<sub>x</sub> y COVs. Para una descripción detallada del modelo, consulte Torre-Pascual et al. (2023), que analizaron un episodio de alto O<sub>3</sub> en 2018 ocurrido en el Golfo de Vizcaya algunos días antes del episodio de Barcelona de 2018 evaluado aquí. En el presente estudio, utilizamos las mismas configuraciones generales del modelo descritas en la referencia, pero con una mayor resolución vertical, 44 niveles hasta 6000 m s.n.m., como se muestra en la Sección S5. Las emisiones se simulaban utilizando MEGAN 3.0 para tener en cuenta las emisiones biogénicas, y EDGAR v4.3.2 para las emisiones antropogénicas. El modelo MEGAN incorporó bases de datos actualizadas recientemente sobre el uso del suelo y la vegetación en España, obtenidas del Inventario Forestal Nacional, como se demostró en Torre-Pascual et al. (2021). Utilizamos la versión 4.3.2 de la base de datos de emisiones antropogénicas del *Emission Database for Global Atmospheric Research* (EDGAR) (Crippa et al., 2018), publicada en diciembre de 2017. Esta base de datos incluye emisiones antropogénicas de los continentes europeo y

africano dentro de nuestra área de estudio. Nos centramos en analizar los siguientes compuestos clave para los episodios de contaminación de O<sub>3</sub> troposférico: CO, NH<sub>3</sub>, COVs, NOx, SO<sub>2</sub> y CH<sub>4</sub>.

Los resultados de los modelos fotoquímicos en estudios de contaminación del aire suelen presentarse a nivel de superficie, mostrando concentraciones de contaminantes y campos de viento. Torre-Pascual et al. (2023) sugirieron ampliar los análisis de los estudios de modelización a niveles atmosféricos superiores debido a los diversos procesos involucrados en este tipo de episodios de O<sub>3</sub>, especialmente en regiones con orografía compleja como en el territorio español.

En este estudio, para mejorar la visualización e interpretación de la dinámica de los episodios presentamos los resultados de concentraciones integradas de O<sub>3</sub> y campos de viento promedio hasta 500 m s.n.m., las concentraciones de O<sub>3</sub> en superficie y niveles superiores junto con campos de viento, y secciones transversales verticales a lo largo del eje-Besòs para ilustrar procesos de recirculación, fumigación y subsidencia. La Sección S6 (material suplementario) contiene un análisis de validación de las simulaciones del modelo fotoquímico.

## 4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

### 4.1 Resumen de episodios agudos de ozono en la ciudad de Barcelona

La Tabla 1 resume información de los únicos tres episodios en los que se ha superado el IT de la Directiva europea en la ciudad de Barcelona desde (por lo menos) el año 2000. Es importante destacar que, durante el episodio de 2019, las concentraciones se acercaron al umbral de alerta horario de la Directiva europea (AT, concentración de  $O_3 > 240 \mu g \cdot m^{-3}$ ).

*Tabla 1. Información general sobre los episodios en los que se superaron los umbrales de Información de la directiva Europea (IT). Tipos de estaciones de monitoreo de la calidad del aire (AQMS) incluyen UB (fondo urbano), SB (fondo suburbano), UT (tráfico urbano).*

Fecha de superación del IT	Día de la semana	Hora inicio (h UTC)	Número de horas de superación	Nombre de estación (Tipo)	Concentración horaria de $O_3$ máxima ( $\mu g \cdot m^{-3}$ )	Ola de calor declarada
06/06/2015	Sábado	13	1	Ciutadella (UB)	206	no
04/08/2018	Sábado	14	1	Fabra (SB)	190	sí
		16	3	Fabra (SB)	197	
		16	2	Gràcia (UT)	197	
		18	1	V.Hebron (UB)	187	
05/08/2018	Domingo	13	2	Ciutadella (UB)	190	
		15	1	Fabra (SB)	182	
29/06/2019	Sábado	14	2	Ciutadella (UB)	190	sí
		14	2	Eixample (UT)	211	
		14	9	Fabra (SB)	236	
		15	1	P.Reial (UB)	229	
		16	1	V.Hebron (UB)	196	
		18	1	V.Hebron (UB)	184	

A continuación, se presenta un análisis detallado de los tres episodios de forma individual (subsecciones 4.2, 4.3 y 4.4). Dentro de cada subsección, se describen y discuten los resultados relacionados con el contexto meteorológico, las observaciones y las simulaciones. Para dar cabida al extenso material complementario, se incluyen anexos para cada episodio (Secciones S1 a S3 en el material suplementario).

### 4.2 Episodio de 2015 (6 de junio)

#### 4.2.1 Contexto meteorológico

##### *Situación Sinóptica*

Desde el 1 hasta el 5 de junio, un sistema de bajas presiones se situó al noroeste de las Islas Británicas (visible a partir del día 3 en la Figura 2), mientras que una cresta de altas presiones se desplazó desde el suroeste hacia el noreste a través de la Península Ibérica en dirección a Europa Central. Esta situación favoreció vientos persistentes del este en la Cuenca del Mediterráneo Occidental, que luego se dirigieron hacia el sureste a lo largo de la costa catalana y posteriormente hacia el sur con la influencia de las brisas marinas. El reanálisis ERA-INTERIM indicó una acumulación de  $O_3$  de 50 ppb ( $\sim 100 \mu g \cdot m^{-3}$ ) en niveles bajos (1000–925 hPa) sobre la costa catalana, posiblemente debido a los mencionados vientos persistentes del este de diversas procedencias, incluyendo Italia y las Islas Baleares. En este escenario, el ciclo diurno habitual de la Tramontana (Gangoiti et al., 2001) estuvo ausente, y en el interior de la Península Ibérica



podría haberse producido un desacoplamiento de los flujos de drenaje nocturno con vientos hacia el valle o hacia el mar, y acoplamientos diurnos con los flujos combinados de las brisas costeras y los vientos sinópticos del este.

El 6 de junio, se produjo un cambio en las presiones en superficie en el Golfo de Vizcaya y el sur de Francia, con presiones más altas que en el Mediterráneo (Figura 2). Como resultado, los se desarrolló la Tramontana persistiendo hasta el 9 de junio, momento en el que hubo un nuevo cambio en las condiciones sinópticas (no se muestra).

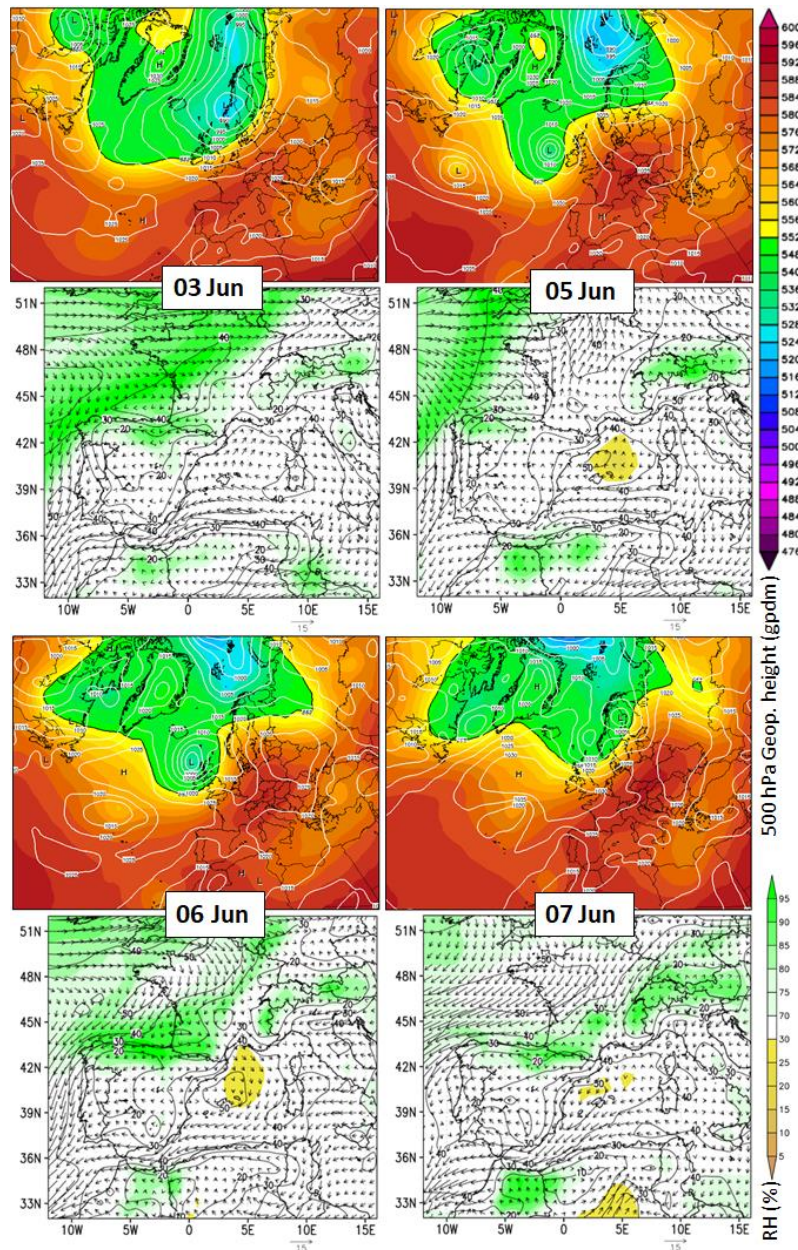


Figura 2. Episodio 2015. Para cada día, (arriba) Reanálisis del Sistema de Pronóstico Climático para alturas geopotenciales de 500 hPa y presión media al nivel del mar (hPa) a las 00 UTC, (abajo) Reanálisis ERA-INTERIM (ECMWF) (resolución de 0,75°) de concentraciones de O<sub>3</sub> (ppb, líneas de contorno; 1 ppb  $\approx$  2  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  al nivel del mar), humedad relativa (colores sombreados) y campos de viento a 1000-925 hPa.

### **Observaciones locales**

Es importante destacar que las temperaturas máximas (Figura S1.2d) durante este episodio en la zona de Barcelona fueron de 3 a 4°C más altas que las temperaturas normales de junio (Fabra, 2022), a pesar de que no se llegó a declarar el episodio como ola de calor, a diferencia de los otros episodios.

Los radiosondeos realizados en Barcelona (Figura S1.1) mostraron vientos persistentes del este por encima de 1500–2000 m s.n.m. durante todo el período, mientras que las brisas marítimas y terrestres y los ciclos de Tramontana dominaron en las capas inferiores. Antes del 6 de junio, los vientos en las capas inferiores de la atmósfera siguieron un patrón diario de dirección oeste–suroeste por la noche, cambiando al sur durante el día (Figura S1.1), lo que resultó en un transporte neto hacia el interior (dirección norte) debido a los regímenes de brisa marina costera. El cambio en las condiciones sinópticas del 6 de junio causó un cambio notable en los vientos en las capas inferiores de la atmósfera, con un cambio de dirección abrupto hacia el este en la madrugada. Este hecho fue acompañado de un aumento de la temperatura y una disminución de la humedad relativa (Figura S1.2a-b), probablemente relacionados con un breve período de acoplamiento vertical con vientos secos del este de la atmósfera libre (Figura S1.1). Luego, un aumento progresivo en la humedad, coincidiendo con el cambio del viento a sures (Figura S1.2b), marcó el inicio de la brisa marina. Posteriormente, se desarrolló una inversión de temperatura en superficie (200 metros) durante la siguiente noche, lo que propició condiciones de calma en una capa de aire saturado completamente desacoplada de los vientos del este en altitudes superiores.

#### **4.2.2 Concentraciones de ozono en superficie**

Del 3 al 5 de junio, las concentraciones diurnas de O<sub>3</sub> en el AMB (Figura 3) oscilaron entre niveles bajos y moderados (de 60 a 113 µg·m<sup>-3</sup>), mostrando un ciclo diario de forma casi cuadrada típicamente observado en ubicaciones costeras de baja altitud de la Cuenca del Mediterráneo Occidental (Millán et al., 2000), con concentraciones máximas durante las horas centrales del día y los niveles más bajos durante la noche (Figura 3b-c). Las estaciones de tráfico (Eixample, Montcada o Granollers) registraron las concentraciones mínimas debido a la titración de O<sub>3</sub> a partir de emisiones locales (Solberg et al., 2005). Los días 4 y 5 de junio, los vientos persistentes moderados del sur en los primeros 1000 metros de la atmósfera provocaron concentraciones de O<sub>3</sub> significativas a sotavento del AMB. Esto se hizo evidente en las estaciones de monitoreo de la calidad del aire, como Berga (al final del eje-Llobregat) y las estaciones en la Plana de Vic (al final del eje-Besòs), donde se superaron o casi se alcanzaron los IT de la Directiva (Figura 3a y c).

Los ciclos diarios de O<sub>3</sub> a lo largo del eje-Besòs (Figura 3c) y mencionada más arriba combinación de vientos ascendentes y brisas marinas sugieren la presencia de la dinámica habitual de los episodios de O<sub>3</sub> en verano a sotavento de Barcelona (por ejemplo, Querol et al., 2017) en los días previos al episodio. Este patrón recurrente, que en adelante denominado como "Dinámica del eje-Besòs", se caracteriza por el aumento gradual de las concentraciones diurnas de O<sub>3</sub> desde Barcelona dirección norte hasta la Plana de Vic (ver gradientes de O<sub>3</sub> resaltados en la Figura 3c) y la presencia de los picos de concentración de O<sub>3</sub> por la tarde, que ocurren progresivamente

más tarde en función de la distancia con respecto a Barcelona, ilustrando la trayectoria del penacho del AMB cargada con nuevas contribuciones (de  $O_3$  y precursores).

La estación de fondo rural en Montseny (~700 m s.n.m.) muestra una variación diaria mínima en las concentraciones de  $O_3$ , con concentraciones aproximadamente constantes de  $120 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figura 3c). Esto se debe a una baja destrucción o consumo de  $O_3$  durante la noche, debida a la ubicación, alejada de las emisiones consumidoras  $O_3$  y por encima de la capa límite nocturna estable, lo que garantiza un suministro continuo de  $O_3$  desde capas de reserva (por ejemplo, Millán et al., 2000; Millán et al., 2002; Chevalier et al., 2007). Una discusión detallada de múltiples ciclos de  $O_3$  tipificados en una cuenca aérea con una fenomenología de  $O_3$  similar a nuestra área de estudio se puede encontrar en Millán et al. (2000).

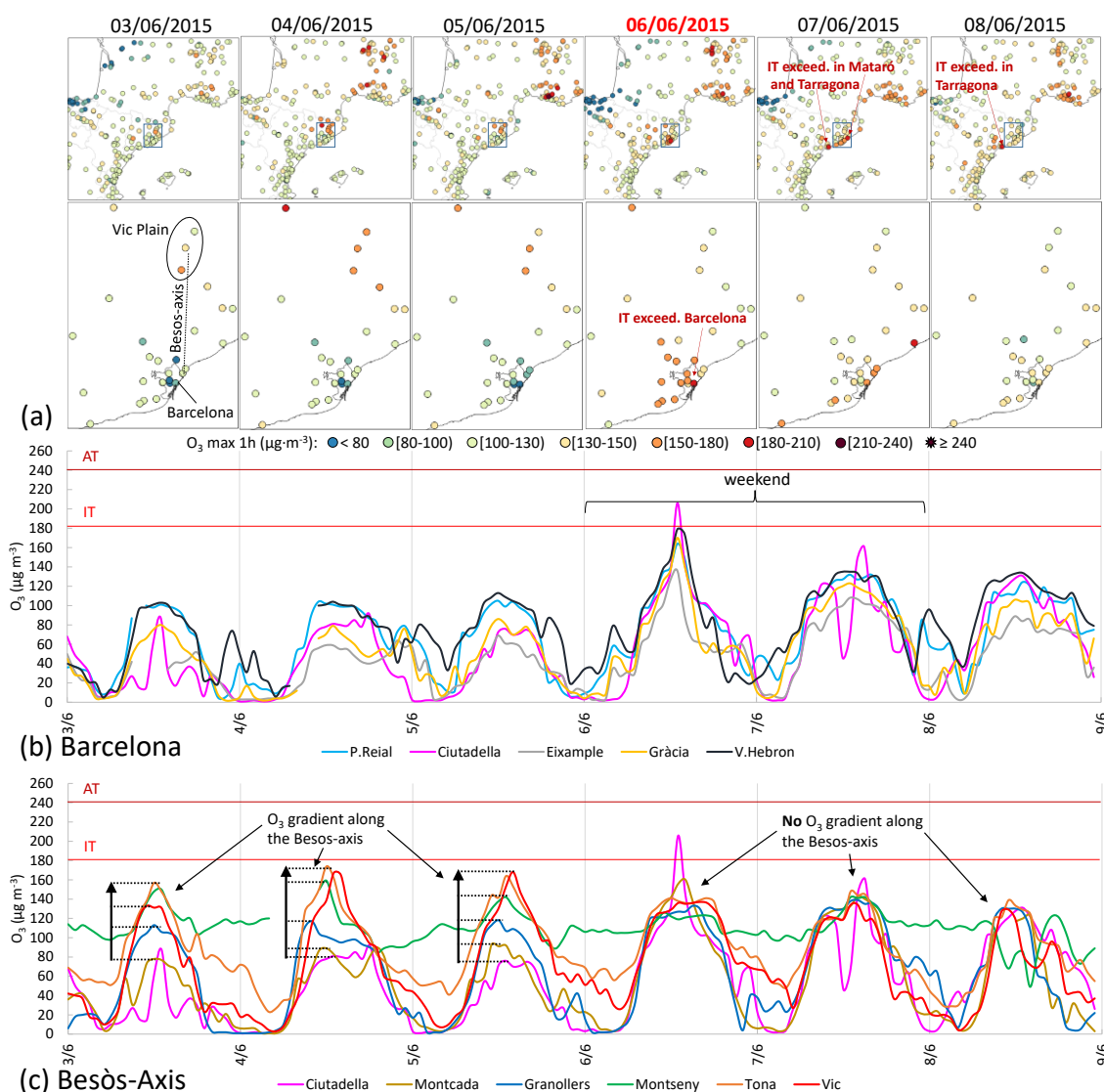


Figura 3. Episodio 2015. (a) Distribución espacial de las concentraciones horarias máximas de  $O_3$ . Ciclos diarios de  $O_3$  observados en estaciones: (b) Ciudad de Barcelona (sin datos de Fabra), (c) a lo largo del eje-Besòs, ordenadas según la distancia creciente desde Barcelona: Ciutadella, Montcada, Granollers, Montseny, Tona y Vic. Las líneas rojas horizontales representan los Umbrales de Información y Alerta de la Directiva (IT y AT).

El sábado 6 de junio (episodio en Barcelona), solo una estación superó el IT de la Directiva, pero la mayoría de las estaciones barcelonesas, incluidos las de tráfico, registraron concentraciones

de O<sub>3</sub> muy altas (de hasta 179 µg·m<sup>-3</sup>) con picos marcados a las 12-13 UTC (Figura 3b). Estos coincidieron con el cambio de dirección de los vientos superficiales de NE a SE durante la tarde (Figura S1.2a). Las estaciones ubicadas a lo largo del eje-Besòs, registraron concentraciones diurnas de O<sub>3</sub> significativamente más bajas en comparación con los días anteriores (<140 µg·m<sup>-3</sup>), con niveles constantes en la Plana de Vic y sin el característico pico de O<sub>3</sub> de la tarde (Figura 3c). El desarrollo de una brisa más débil, como se mencionó anteriormente, junto con la reducción de las emisiones de precursores del AMB debida al fin de semana (ver las concentraciones de NO<sub>x</sub> en la Figura S1.3), probablemente contribuyó a este patrón. Este comportamiento se observa comúnmente durante los fines de semana de verano, con la Plana de Vic exhibiendo típicamente niveles más bajos de O<sub>3</sub> en comparación con los días laborables (Massagué et al., 2019).

En los días siguientes, las concentraciones máximas de O<sub>3</sub> en la ciudad disminuyeron, pero se mantuvieron significativamente más que en los días previos al episodio (Figura 3c), posiblemente debido a las mencionadas recirculaciones de O<sub>3</sub> y el estancamiento de las masas de aire sobre el área de Barcelona. Esta situación contribuyó a superar el IT en dos estaciones costeras relativamente cercanas los días 7 y 8 de junio (Figura 3a). Para el día 9, las concentraciones de O<sub>3</sub> en la ciudad volvieron a los niveles previos al episodio (no mostrado), a causa del cambio en las condiciones meteorológicas.

#### **4.2.3 Resultados de modelización**

##### ***Análisis de trayectorias***

Los resultados del análisis RAMS/HYPACT (Figura S1.4) muestran dos grupos de trayectorias de llegada a Barcelona (Ciutadella). En primer lugar, las trayectorias durante 6 de junio cruzaron la Cuenca del Mediterráneo Occidental con vientos del este y sureste durante el periodo del 3 al 5, llegando a Barcelona desde el este y el sur, siguiendo el giro mediterráneo (Figura S1.4a-e). Y, en segundo lugar, durante el día 7, las trayectorias pasaron por el sur de Francia los días 5 y 6 con vientos del oeste, y luego atravesaron el Golfo de León con los vientos de Tramontana (Figura S1.4c-e).



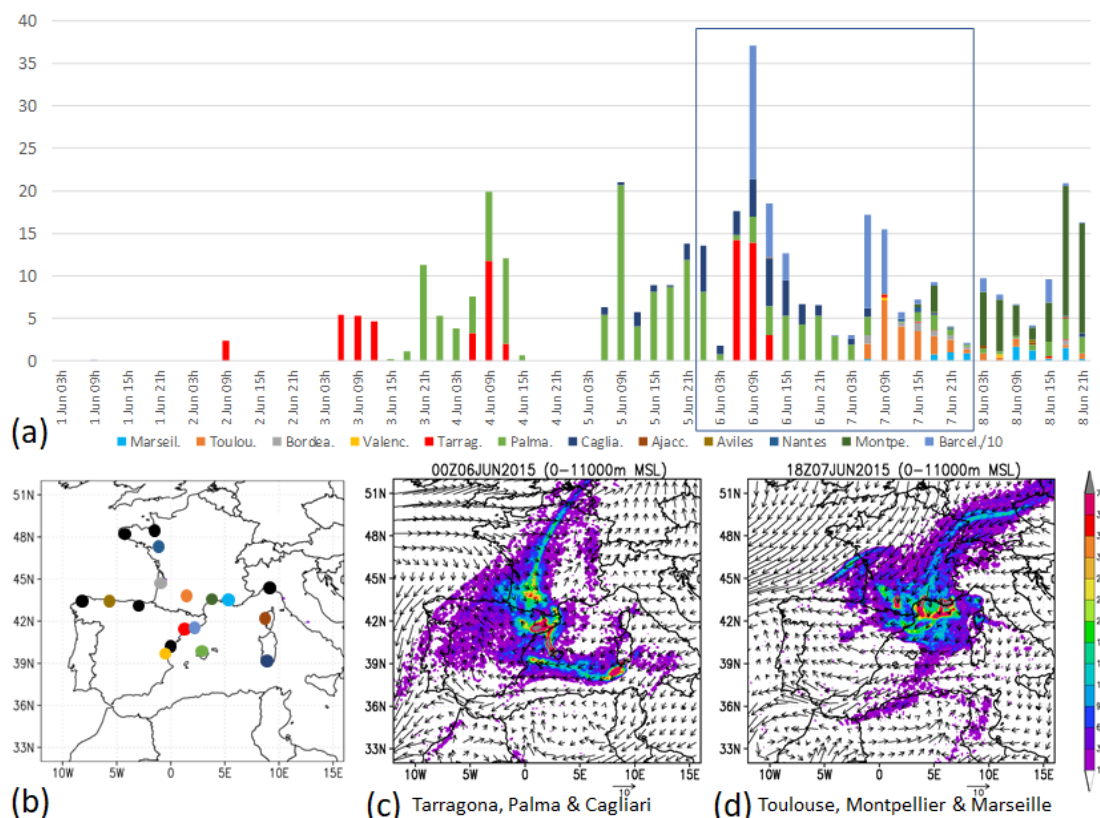


Figura 4. Episodio 2015. (a) Evolución temporal de los impactos (número de partículas trazadoras) emitidas desde las ciudades mostradas en el mapa (b) y que llegan a la capa límite planetaria de Barcelona (Ciudadella) en trayectorias "forward". Los impactos del punto de emisión "Barcelona" se dividen por 10 debido a la proximidad al sitio receptor. Las ciudades que no están representadas en (a) tienen una contribución insignificante, y se muestran como puntos negros en el mapa. Las fuentes en (a) utilizan el mismo código de colores que en el mapa (b). (c-d) Carga de partículas trazadoras (0–11000 m) que impactan Barcelona durante el fin de semana desde tres ciudades mediterráneas seleccionadas con un impacto principal el 6 de junio (c) desde el este y el sur, y (d) tres fuentes más en el sur de Francia con un impacto principal el día 7 desde el norte

La evolución temporal de las partículas trazadoras (Figura 4a) emitidas en trayectorias hacia adelante (*forward*) desde 18 ciudades (puntos de colores en la Figura 4b) que llegan a la capa límite planetaria de Barcelona, indica que los impactos más altos se originaron en múltiples fuentes, incluyendo Marsella, Toulouse, Tarragona, Palma de Mallorca, Cagliari, Montpellier y la propia Barcelona. Esto contrasta con los días anteriores, donde el origen era únicamente mediterráneo: desde el este (Palma, Cagliari) y el sur (Tarragona).

La animación en la Figura S1.5 muestra una simulación de dispersión de un penacho originado en Barcelona con transporte hacia el norte antes del 6 de junio y sin circulación de emisiones costeras sobre la Cuenca del Mediterráneo Occidental. A partir del 6 de junio, ya con la Tramontana presente, se desarrolló una recirculación de brisas terrestres y marítimas a lo largo de la costa barcelonesa. El penacho experimentó una rotación completa, colocando a Barcelona en el centro de una zona de convergencia, recibiendo contaminación del Golfo de León, y de áreas al este y sureste, transportadas por las brisas marinas y el giro mediterráneo. Estas aportaciones se combinaron con las emisiones locales de la costa este de España. El hallazgo clave de estos análisis es la convergencia de un conjunto de múltiples fuentes el día del episodio,

ubicadas al noroeste de la ciudad (sur de Francia), al este (en otras ciudades mediterráneas), al sur (Tarragona) y en Barcelona misma.

### **Modelo fotoquímico**

Los resultados de la simulación fotoquímica del 5 de junio se muestran en las Figuras 5 y S1.6. El modelo reproduce brisas marinas intensas a lo largo de la costa catalana, en concordancia con las observaciones locales. Estas brisas transportaron el penacho del AMB hacia el noreste, alcanzando casi los Pirineos (Figura S1.6). La sección vertical en la misma figura también revela una acumulación de  $O_3$  al norte de los Pirineos (círculo marcado el 5 de junio a las 16 UTC en la Figura S1.6). La presencia de altas presiones sobre las Islas Baleares sugiere subsidencia de las capas superiores sobre el mar. Por la tarde, las masas de aire en altura estancadas sobre Barcelona, contribuyeron a la acumulación de  $O_3$  (Figura S1.6), en línea con los resultados de ERA-INTERIM. Es importante destacar que la Figura 5 indica un transporte localizado de  $O_3$  desde Barcelona/Girona hacia el Golfo de León.

En la madrugada del 6 de junio (día del episodio en Barcelona), esta contribución se sumó al  $O_3$  del Golfo de León y regresó sobre la costa catalana coincidiendo con el inicio del viento de Tramontana (Figura 5), en consonancia con los resultados de los análisis de retrotrayectorias. En este punto, ya no hubo acumulación de  $O_3$  al norte de los Pirineos (círculo el 6 de junio a las 00 UTC en la Figura S1.6). Durante el 6 de junio, se observó el impacto en la ciudad de las masas de aire transportadas del día anterior (Figura 5), además de la recirculación vertical de  $O_3$  (Figura S1.6). En línea con las observaciones locales, las brisas simuladas no fueron intensas, y esto parece interrumpir parcialmente la dinámica del eje-Besòs y facilitar el aumento de  $O_3$  en la ciudad. Además, se debe considerar el posible impacto del efecto del fin de semana.

Las simulaciones muestran recirculaciones verticales de  $O_3$  hacia el mar los días 7 y 8, junto con niveles bajos de  $O_3$  en el Golfo de León. En esta ocasión, el viento de Tramontana muestra un transporte limitado de  $O_3$  (Figura 5 y S1.6). El  $O_3$  acumulado en altitudes elevadas y sobre la superficie del mar (en su mayoría de días anteriores) parece desplazarse hacia el suroeste, causando impacto aquellas zonas (Figura 5 y S1.6). Esto es coherente con las mediciones en superficie de  $O_3$ , cuyas concentraciones disminuyeron en la ciudad de Barcelona, pero aún se mantuvieron altas en otras ciudades costeras donde se superaron los IT de la Directiva, como Tarragona. El 8 de junio, se observa un patrón de transporte similar sobre la Cuenca del Mediterráneo Occidental con una ligera disminución de las concentraciones de  $O_3$ , probablemente debido en parte a la recuperación de las emisiones de compuestos consumidores de  $O_3$  de días laborables. Este patrón persistió hasta el 9 y 10 de junio (no se muestra), momento en el cual la Tramontana cesó y los vientos del este transportaron el  $O_3$  superficial hacia el oeste, inhibiendo los procesos de acumulación de los días anteriores.

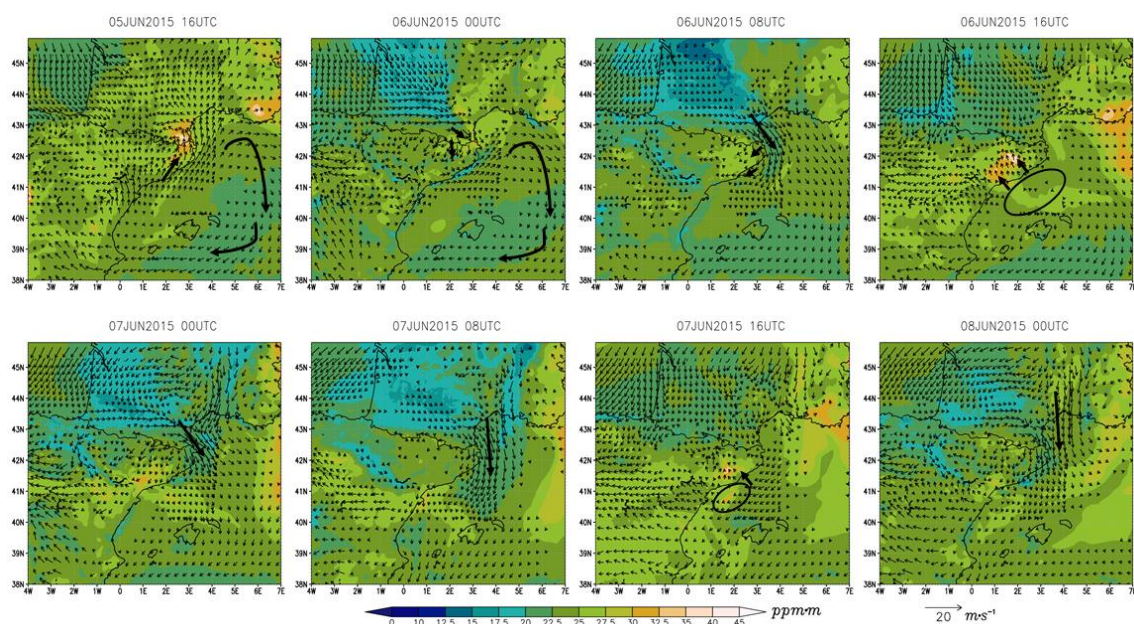


Figura 5. Episodio 2015. Concentraciones simuladas de  $O_3$  (escala de colores) integradas a 0-500 m sobre el nivel del suelo y campos de viento promedio (vectores) entre 0-500 m sobre el nivel del suelo. No se representan velocidades del viento  $<2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

### 4.3 Episodio de 2018 (4 y 5 de agosto)

#### 4.3.1 Contexto meteorológico

##### *Situación Sinóptica*

Del 1 al 3 de agosto, persistieron vientos del noreste (1000-900 hPa) sobre el oeste del continente europeo, desde la península de Jutlandia hasta el norte de la península ibérica (Figura 6), dando lugar a los vientos de Tramontana en la zona de estudio. Este flujo, asociado a sistemas de alta presión sobre Escandinavia, se extendió a través de una amplia cresta noreste-suroeste hasta la península ibérica y el norte de África. En la tarde del día 3, el anticiclón retrocedió desde Jutlandia, fortaleciéndose al oeste de Irlanda el 4 y 5 (días del episodio). En consecuencia, los vientos del noreste giraron hacia el norte a lo largo de la costa atlántica europea, mientras que la Tramontana persistió, impulsada por la diferencia de presiones entre el sur de Francia y el Mediterráneo. El reanálisis ERA-Interim muestra vientos del este en el Estrecho de Gibraltar del 1 al 5 de agosto, junto con los vientos de Tramontana, siguiendo la continuidad del flujo en la capa límite marina de la Cuenca del Mediterráneo Occidental (como se describe en in't Veld et al., 2021). Este flujo, más evidente durante la noche, se dirigió zonas de relativamente menores presiones del Golfo de Cádiz, siguiendo la costa este de la península ibérica. El 6 de agosto, a medida que las altas presiones en superficie se debilitaron en el Golfo de Vizcaya y el oeste de Francia y el anticiclón se desplazó hacia el oeste de Portugal, las condiciones meteorológicas experimentaron un cambio, precediendo la aproximación de un frente atlántico por el oeste de la península ibérica, marcando el final del período de Tramontana y el declive del episodio.



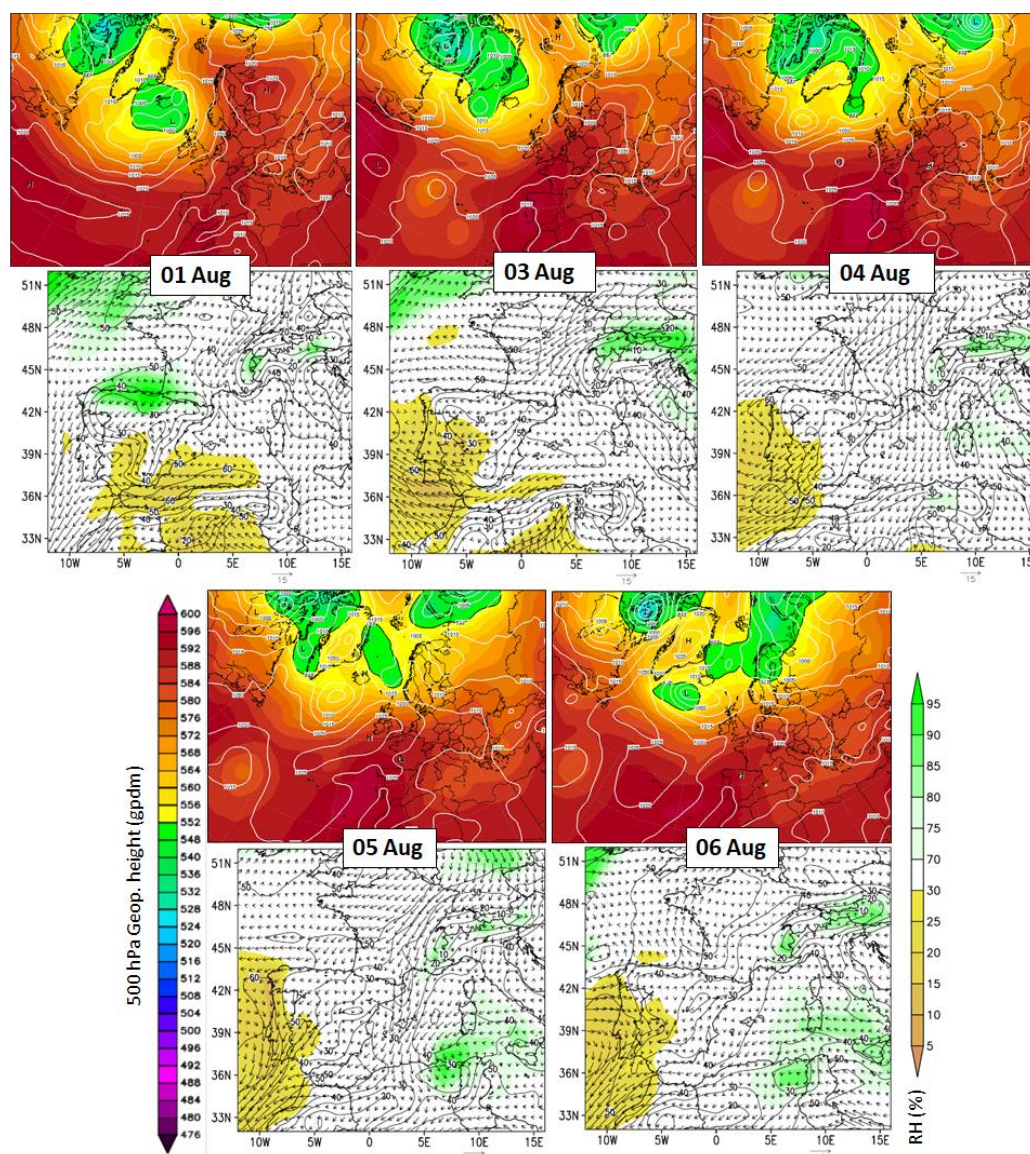


Figura 6. Episodio 2018. Para cada día, (arriba) Reanálisis del Sistema de Pronóstico Climático para alturas geopotenciales de 500 hPa y presión media al nivel del mar (hPa) a las 00 UTC, (abajo) Reanálisis ERA-INTERIM (ECMWF) (resolución de 0,75°) de concentraciones de O<sub>3</sub> (ppb, líneas de contorno; 1 ppb  $\approx$  2  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  al nivel del mar), humedad relativa (colores sombreados) y campos de viento a 950-850 hPa.

### Observaciones locales

El episodio de calor más intenso de 2018 ocurrió desde los primeros días de agosto hasta el 8, con regiones costeras, incluyendo Barcelona, experimentando temperaturas excepcionalmente altas, algunas de las cuales establecieron récords. Las temperaturas máximas en la ciudad durante los días del episodio (Figura S2.2b) estuvieron condicionadas por vientos suaves del norte-noreste, que limitaron el efecto moderador de las brisas marinas del sur, las cuales se debilitaron durante el episodio, como se discute a continuación (Meteocat, 2022).

Los radiosondeos realizados en Barcelona (Figura S2.1) muestran brisas marinas bien desarrolladas del 1 al 3 de agosto, también observadas en las estaciones de Barcelona y Parets (Figura S2.2a y c). En niveles superiores de la atmósfera, el viento cambió a un patrón de norte el 2 de junio a las 12 UTC, lo que probablemente resultó en la entrada de masas de aire



contaminado en niveles superiores (Torre-Pascual et al., 2023). El 3 y 4 de agosto, las alturas de la capa de mezcla fueron altas, entre 2000 y 3000 m sobre el nivel del suelo en la ciudad (no hay datos disponibles del 5). El patrón de vientos observado en superficie los días 4 y 5 es diferente de los días anteriores, sugiriendo probablemente un desarrollo más débil de la brisa marina durante ese período (Figura S2.2a y c), una observación también sugerida por las simulaciones del modelo fotoquímico (ver más abajo).

El 6 y 7 de agosto, el cambio meteorológico previamente mencionado se hizo evidente en las mediciones superficiales, con una disminución de las temperaturas máximas ( $-6^{\circ}\text{C}$ ), aumento de la humedad relativa (+30–35%) y radiación solar más débil ( $-11\%$ ) en comparación con los días del episodio (Figura S2.2).

#### **4.3.2 Concentraciones de ozono en superficie**

A principios de agosto de 2018, las concentraciones de  $\text{O}_3$  fueron elevadas a nivel regional. Por ejemplo, las estaciones del sur de Francia alcanzaron niveles extremos de  $\text{O}_3$ , con varias superaciones del AT al norte de Marsella (Figura 7a), y la costa atlántica de la península ibérica registró concentraciones anormalmente altas, según Torre-Pascual et al. (2023). Las concentraciones en las estaciones de fondo en el área de estudio del 1 al 3 de agosto fueron altas, ya que las estaciones de fondo en Barcelona (Ciutadella, Fabra y V. Hebron) registraron concentraciones de hasta  $140\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figura 7b). La Dinámica del eje-Besòs parece estar bien establecida, causando concentraciones diurnas de  $\text{O}_3$  muy altas (hasta  $214\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  en la Plana de Vic) y múltiples superaciones del IT (Figura 7a y c). Durante el 3 de agosto, las concentraciones máximas de  $\text{O}_3$  disminuyeron en la Plana de Vic, pero aún se mantuvieron cerca del IT

Durante el episodio en Barcelona (4 y 5 de agosto), varias estaciones en la ciudad y el AMB registraron concentraciones de  $\text{O}_3$  muy altas, alcanzando hasta  $197\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figura 7a). En la estación suburbana de Fabra en Barcelona, se observaron concentraciones excepcionalmente altas durante la noche del 4 al 5 de agosto. A lo largo del eje-Besòs, aunque las concentraciones de  $\text{O}_3$  se mantuvieron altas y cercanas al IT, fueron significativamente más bajas en comparación con los días 1 y 2 de agosto, y no se observó un gradiente de  $\text{O}_3$  (Figura 7c), lo que apunta a la interrupción de la Dinámica del eje-Besòs. Esto puede atribuirse parcialmente, al igual que en el episodio de 2015, a un desarrollo reducido de las brisas durante los días del episodio y a las menores emisiones de precursores durante el fin de semana en el AMB, como indican las bajas concentraciones de  $\text{NO}_x$  observadas (Figura S2.3).

La aproximación del frente atlántico el lunes 6 de agosto causó el declive del episodio en Barcelona. Las concentraciones diurnas de  $\text{O}_3$  cayeron a un rango de  $80\text{--}140\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figura 7b), especialmente en estaciones de baja altitud, probablemente debido en parte a la restauración de las emisiones locales de compuestos consumidores de  $\text{O}_3$  típicas de los días laborables. La Dinámica del eje-Besòs parece reestablecerse, mostrando de nuevo un marcado gradiente de concentraciones de  $\text{O}_3$  en las estaciones más al norte de la ciudad y concentraciones de hasta  $206\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  en la Plana de Vic (Figura 7c).

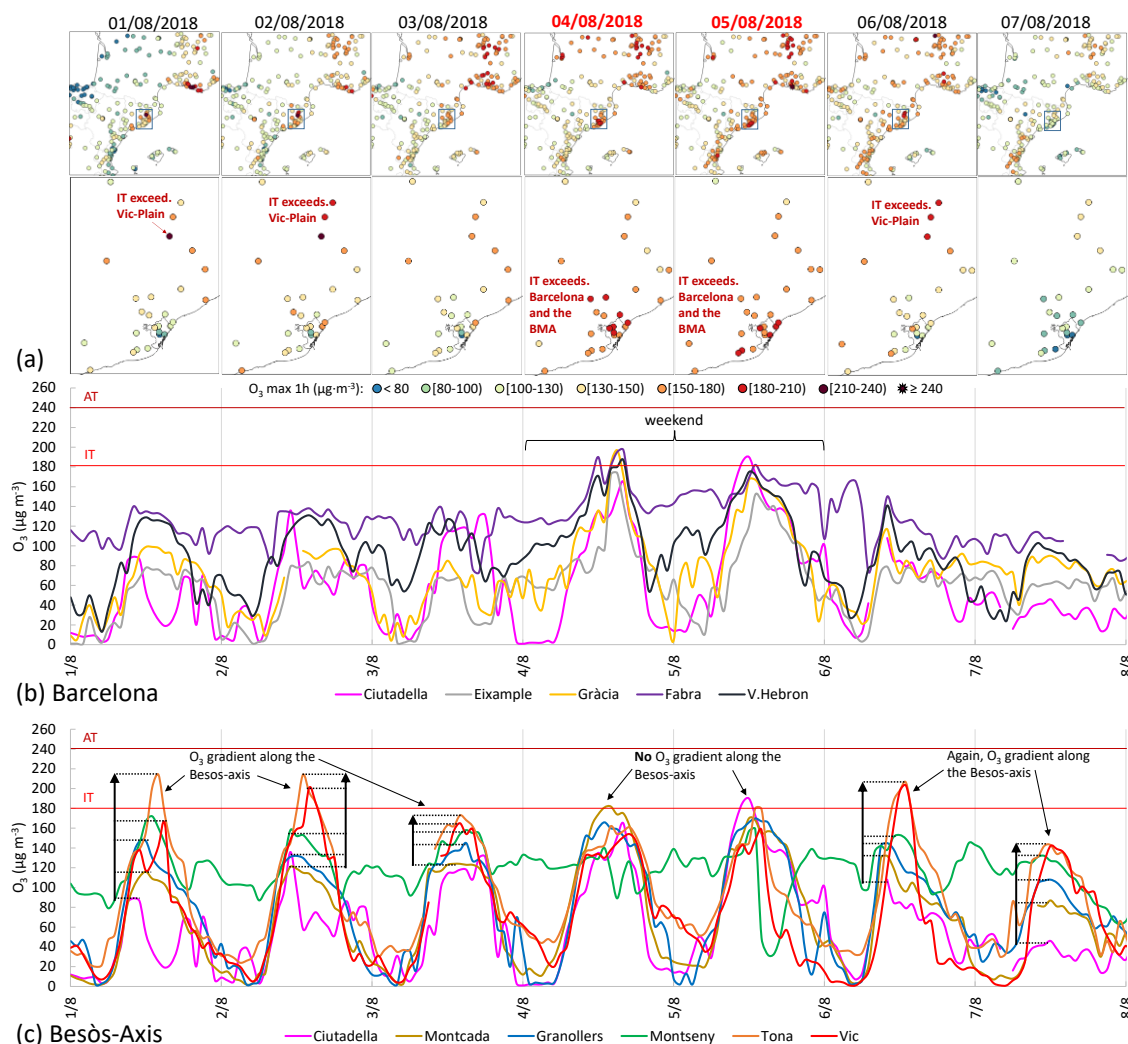


Figura 7. Episodio 2018. (a) Distribución espacial de las concentraciones horarias máximas de  $O_3$ . Ciclos diarios de  $O_3$  observados en estaciones: (b) ciudad de Barcelona (sin datos de P.Reial), (c) a lo largo del eje-Besòs, ordenadas por distancia creciente a Barcelona: Ciutadella, Montcada, Granollers, Montseny, Tona y Vic. Las líneas horizontales en rojo representan los Umbrales de Información y Alerta de la Directiva (IT y AT).

#### 4.3.3 Resultados de modelización

##### Análisis de trayectorias

Los análisis RAMS/HYPACT (Fig. S2.4) muestran la llegada de trayectorias de trazadores desde Europa central a Barcelona (Fabra) el 4 y 5 de agosto (días del episodio), cruzando Francia. Las masas de aire entraron en el Mediterráneo occidental, siguiendo los vientos de Tramontana asociados con altas presiones relativas sobre Europa. Además, las circulaciones de brisa marina durante el día a lo largo de la costa este de Iberia generaron flujos del sur, potencialmente recirculando precursores y  $O_3$  y añadiendo nuevas fuentes, incluyendo la ciudad de Tarragona y un breve impacto proveniente de Castellón.

La Figura 8b muestra la evolución temporal de las partículas de trazadores emitidas en trayectorias *forward* desde una selección de 14 ciudades alcanzando la capa límite planetaria de Barcelona (Ciutadella). La influencia de Toulouse, que representa la llegada precursores del sur de Francia, fue característica durante todo el período de Tramontana. La influencia de

Tarragona, ocurrió casi todos los días, pero no de manera sostenida. Durante el episodio (marcado con un cuadrado en la Figura 8b), se observa una convergencia de múltiples fuentes de diversas regiones, resultando en concentraciones generales más altas, de manera similar al episodio de 2015. Las principales fuentes en los días del episodio fueron de Europa central, el sur de Francia y la costa sureste de Iberia (Figura 8c-d).

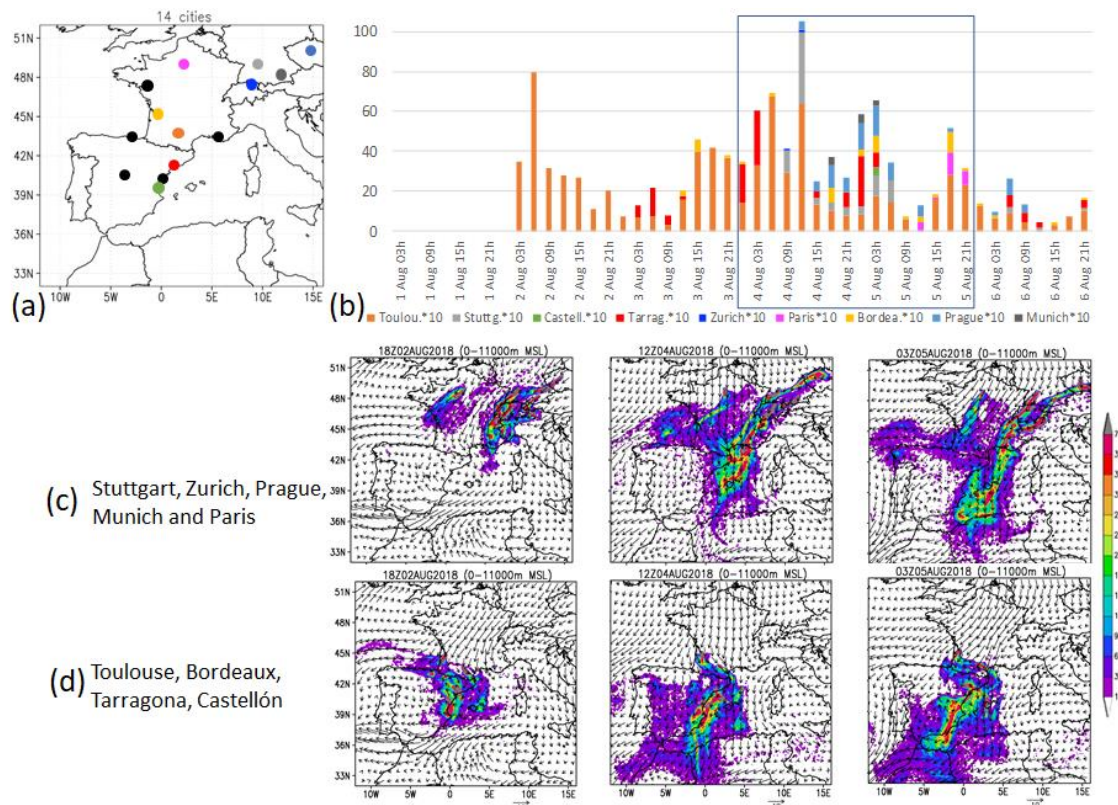


Figura 8. Episodio 2018. (b) Evolución temporal de los impactos (número de partículas trazadoras) emitidos desde las ciudades mostradas en (a) llegando a la capa límite planetaria de Barcelona (Ciudadella) en trayectorias “forward”. Las ciudades no representadas en el gráfico de barras tienen una contribución insignificante, mostradas como puntos negros en el mapa. (c) Carga de partículas trazadoras (0-11000 m) impactando en Barcelona emitidas desde Stuttgart, Zurich, Praga, Múnich y París y (d), Toulouse, Burdeos, Tarragona y Castellón.

### Modelo fotoquímico

Resultados del modelo fotoquímico se muestran en las Figuras 9 y S2.5. El modelo reproduce la presencia de la Tramontana y la acumulación de  $O_3$  a niveles medios de la troposfera en la mayor parte de Iberia durante los días 2 y 3 de agosto (consultar Torre-Pascual et al., 2023). Se observa el transporte de masas de aire contaminado que ingresan al Mediterráneo occidental desde el Golfo de León (Figura 9), en línea con los resultados de las trayectorias. En estos días, las simulaciones reproducen las brisas y los flujos de retorno en la costa este (Figura 9 y S2.5), causando un aumento del  $O_3$  sobre el mar frente a Barcelona, como también indica el reanálisis ERA-INTERIM (Figura 6). Estos mecanismos causaron una acumulación de  $O_3$  en la superficie, resultado tanto del transporte sobre el mar como de la producción local.

Los resultados indican que tanto el 4 como el 5 de agosto (días del episodio), la ciudad de Barcelona se vio afectada por la llegada de masas de aire contaminado desde Europa a través del Golfo de León (Figura 9 y S2.5), en línea con los análisis de trayectorias. Además, las contribuciones de  $O_3$  desde el sur (por ejemplo, desde Tarragona) el 4 de agosto (Figura 9), y la

acumulación de  $O_3$  sobre el mar debido a las recirculaciones verticales de los días anteriores, parecen impactar en la ciudad. Los flujos de retorno continuaron mezclando  $O_3$  de niveles superiores con el situado por debajo, lo que contribuyó a una mayor acumulación en la superficie. Además, la intensidad del episodio probablemente fue influenciada nuevamente por la debilitación de las brisas marinas el 4 de agosto (Figura 9), sugerido también por observaciones locales, lo que resultó en una menor penetración tierra adentro de masas de aire contaminado con respecto a días anteriores. Este patrón es similar al episodio de 2015. Del mismo modo, como se vio en el evento de 2015, el efecto del fin de semana también debe ser considerado, lo que contribuyó a una menor titración de  $O_3$ .

El lunes 6 de agosto, las concentraciones de  $O_3$  disminuyeron debido al cambio meteorológico y la recuperación de las emisiones de compuestos consumidores de  $O_3$ . El declive del episodio se refleja en las simulaciones con la finalización de los vientos de Tramontana y en la falta de contribuciones discernibles de  $O_3$  desde Europa (6 de agosto a las 00 UTC en la Figura 9).

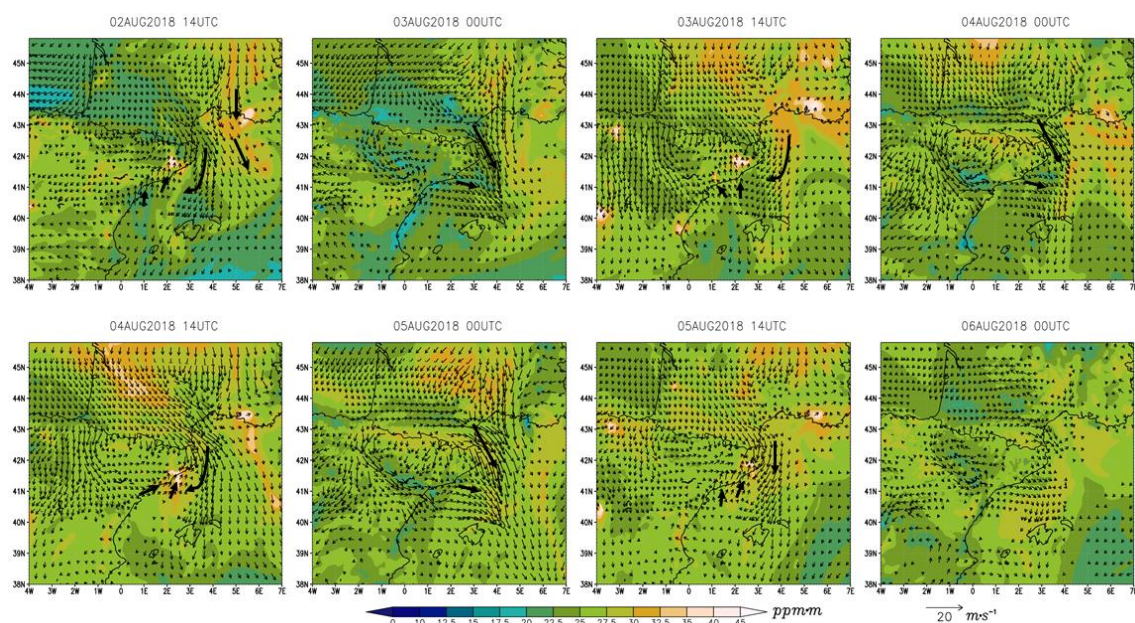


Figura 9. Episodio 2018. Concentraciones simuladas de  $O_3$  (escala de colores) integradas a 0-500 m sobre el nivel del suelo y campos de viento promedio (vectores) entre 0-500 m sobre el nivel del suelo. Las velocidades del viento  $<2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  no se representan.

#### 4.4 Episodio de 2019 (29 de junio)

##### 4.4.1 Contexto meteorológico

##### *Situación Sinóptica*

Entre el 20 y el 25 de junio, un centro de bajas presiones se separó de la corriente principal de oeste desplazándose hacia el noroeste de la península ibérica, debilitándose en la superficie durante su trayectoria (no mostrado). Para el 25 de junio, éste persistió como una baja presión en niveles superiores, aislada del frente polar. Al mismo tiempo, se desarrolló una cresta de altas presiones sobre la Cuenca del Mediterráneo Occidental después de que los vientos cálidos del sur (africanos) asociados avanzaran por delante del mencionado centro de bajas presiones en el sector del Atlántico, lo que indujo un evento de ola de calor en el este de la península ibérica,



incluyendo la ciudad de Barcelona (Figura 10). Esta cresta se muestra particularmente bien definido el 25 y 26 de junio, mediante la observación de vientos del sur en niveles medios troposféricos sobre la localización de sondeo de Barcelona (Figura S3.1). A niveles más bajos, bajas presiones en superficie en las costas de Portugal y el Golfo de Vizcaya, asociadas con la mencionada baja en niveles superiores, y presiones en superficie relativamente más altas en la Cuenca del Mediterráneo Occidental, causaron la inhibición de vientos de Tramontana, suprimiendo la pulsación diurna en la Cuenca del Mediterráneo Occidental (Gangoiti et al., 2001). Esta situación causó una circulación constante del este desde el Mediterráneo central hasta la costa este de la península ibérica hasta el 27 de junio (Figura 10), posiblemente contribuyendo a la acumulación de  $O_3$  (55-60 ppb,  $\sim 110\text{--}120\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) como también muestra el reanálisis de ERA-INTERIM. Ello fue probablemente debido al transporte de precursores de  $O_3$  desde Italia y el norte de África.

El 28 de junio, el centro de bajas presiones del Atlántico inició su desplazamiento hacia el norte para integrarse nuevamente con una vaguada de frente polar al noroeste de Irlanda el 30 de junio. Durante esta transición, el flujo de Tramontana se activó y los vientos del oeste y noroeste prevalecieron hasta una altura de 1000 a 1500 m (Figura S3.1, desde el 28 de junio a las 12 UTC hasta el 29 de junio), lo que causó una disminución drástica de la humedad en las estaciones superficiales y temperaturas máximas del período, incluso durante la noche (ver la siguiente sección). El régimen de brisa marina y la convergencia hacia el interior (SO, en la Figura S3.1) mostraron un grosor muy limitado (250 m) el 28 de junio a las 12 UTC, influenciado por un flujo de Tramontana más seco y cálido. Estos vientos del oeste, asociados con la Tramontana, continuaron soplando durante el día siguiente. Esta situación favoreció el desarrollo de flujos de retorno después del inicio de los vientos costeros del este y sureste durante el régimen de brisa marina el 29 de junio, con la consiguiente acumulación de contaminación en la costa, como se discute en la siguiente sección 3.4.3. Es necesario destacar que la situación sinóptica durante la el desarrollo y pico de este episodio fue similar a la del episodio de 2015 previamente descrito. El 30 de junio, la situación cambió con el inicio de vientos del sur más intensos por encima de los 1000 m de altura (Figura S3.1), impidiendo la formación de flujos de brisa marina de retorno y favoreciendo las condiciones de ventilación.

### ***Observaciones locales***

El flujo persistente del este antes del episodio se observa en la superficie con vientos NE-E constantes y relativamente intensos ( $5\text{--}9\ \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) el 25 y 26 de junio (Figura S3.2), situación que, junto con los vientos del sur por encima de los 1000 m de altura (Figura S3.1), probablemente favoreció la dispersión de contaminantes hacia el noroeste. La situación sinóptica descrita causó que Cataluña experimentara una intensa ola de calor del 27 al 30 de junio (Meteocat, 2022), alcanzando temperaturas máximas el 28-29 de junio. Las temperaturas en Barcelona aumentaron progresivamente a más de  $36^\circ\text{C}$  el 28 de junio (Figura S3.2d). Durante la noche antes del episodio, las temperaturas anormalmente altas persistieron, posiblemente debido a los vientos secos observados en los radiosondeos (29 de junio a las 00 UTC en la Figura S3.1) y a la humedad relativa mínima absoluta. Interpretamos esto como un episodio de Foehn de los vientos de Tramontana en la ladera de las montañas, en dirección paralela a la costa al oeste y noroeste de la ciudad. El 30 de junio, las condiciones en superficie cambiaron, con una disminución de las temperaturas máximas en  $5^\circ\text{C}$  y una humedad máxima llegando hasta el 90%.

Esto coincidió con el inicio de los vientos del este marinos a niveles más bajos (el 29 y 30 de junio) y los mencionados vientos del sur en niveles superiores el 30 de junio (Figura S3.1).

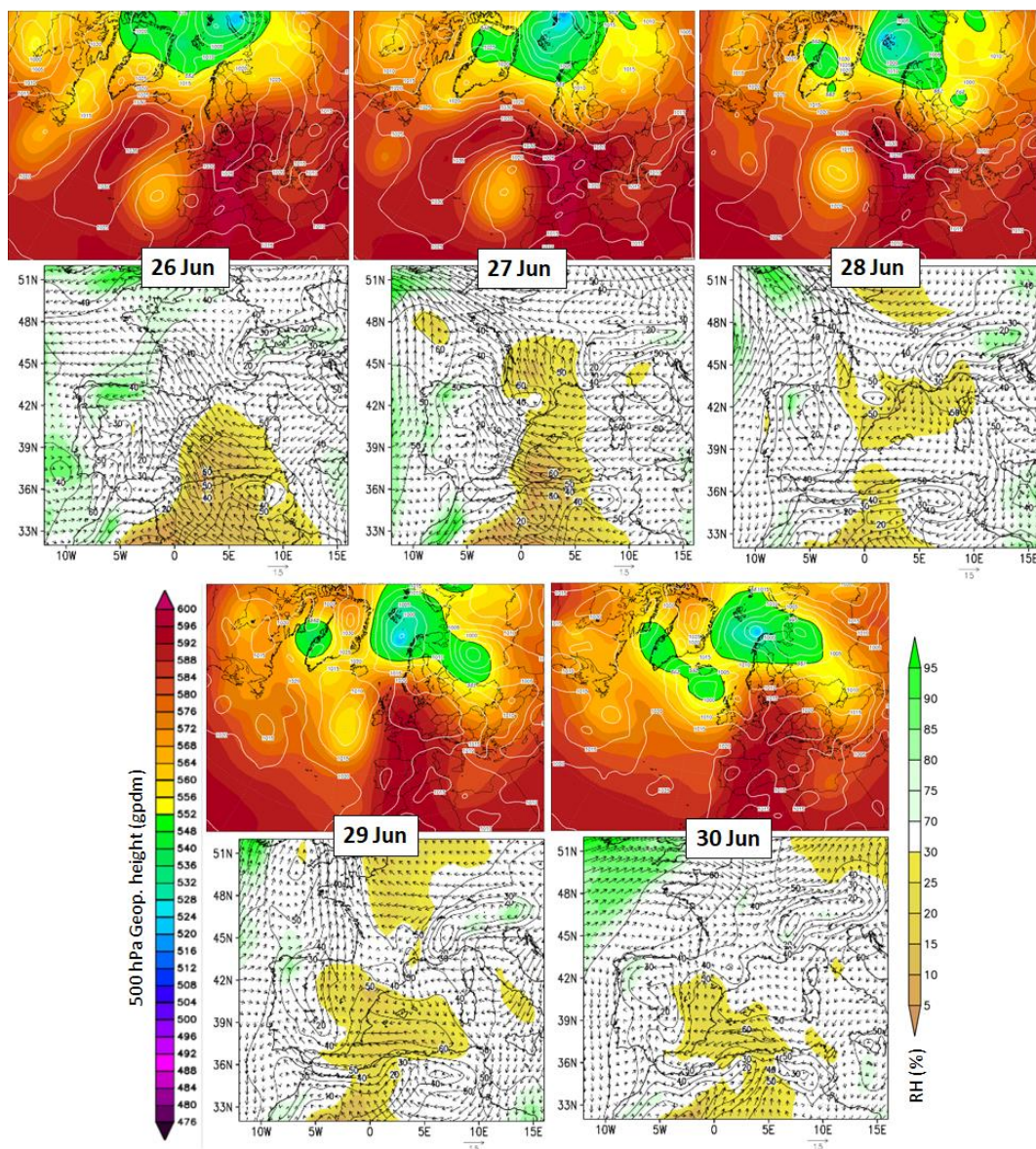


Figura 10. Episodio 2019. Para cada día, (arriba) Reanálisis del Sistema de Pronóstico Climático para alturas geopotenciales de 500 hPa y presión media al nivel del mar (hPa) a las 00 UTC, (abajo) Reanálisis ERA-INTERIM (ECMWF) (resolución de 0,75°) de concentraciones de  $O_3$  (ppb, líneas de contorno; 1 ppb  $\approx 2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  al nivel del mar), humedad relativa (colores sombreados) y campos de viento en el nivel de 950-850 hPa.

#### 4.4.2 Concentraciones de ozono en superficie

El 25 y 26 de junio, los niveles de  $O_3$  en el área de estudio fueron moderados para esta época del año (Figura 11a), donde en Barcelona, las concentraciones ( $<110 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) mostraron poca variación durante todo el día (Figura 11b). Este patrón estable se atribuye a las condiciones de favorables para la dispersión antes mencionadas, que mantuvieron bajos los niveles de  $\text{NO}_x$  (Figura S3.2), debilitando o eliminando así la titración nocturna. El 27 de junio, se restauró la titración nocturna habitual en Barcelona (Figura 11b), y parece desarrollarse la Dinámica del eje-Besòs (Figura 11c) con concentraciones de  $O_3$  de hasta  $193 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ .

El 28 de junio, las concentraciones de  $O_3$  aumentaron significativamente a lo largo del eje-Besòs, donde la estación de Montseny registró niveles extremos de  $O_3$  ( $263 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ), y las concentraciones se acercaron al AT en la Plana de Vic (Figura 11a). Simultáneamente, el AT se superó en estaciones a lo largo del eje-NE (Figura 11a), apuntando a una de las tres posibles rutas de transporte del penacho del AMB (Diéguez et al., 2009). Jaén et al. (2021), quienes también estudiaron este episodio de 2019, indicaron que los altos niveles de  $\text{NO}_x$  probablemente favorecieron la producción de  $O_3$  en estas áreas a sotavento (de régimen de formación  $\text{NO}_x$ -limitado). De hecho, se observaron muy altos niveles de  $\text{NO}_2$  por la mañana en la ciudad, alcanzando hasta  $233 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (tanto en superficie, Figura S3.3; como en columna troposférica, Figura S3.4). Estos elevados niveles de  $\text{NO}_2$  podrían deberse la operación salida vacacional, ya que la fecha coincidió con un viernes previo a las vacaciones para una parte significativa de la población. Además, las emisiones de un incendio en Ribera d'Ebre (Tarragona) a partir del 27 de junio en adelante (claramente observado por TROPOMI, Figura S3.4), podrían haber contribuido a los mencionados niveles inusualmente altos de  $O_3$  en la estación de Montseny ubicada en altitud. Sin embargo, después de simulaciones y análisis posteriores de trayectorias, concluimos que el penacho del incendio pasó por encima de la ciudad de Barcelona a una altitud superior a 1500 m sobre el nivel del mar, muy por encima de la capa límite planetaria en el día del episodio, lo que sugiere que no tuvo un efecto directo en los niveles de  $O_3$  en la ciudad.

El sábado 29 de junio (episodio en Barcelona), se registraron concentraciones extremadamente altas de  $O_3$  en la ciudad, con niveles de hasta  $236 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  y en donde casi todas las estaciones activas superaron el AT (Figura 11a). Resulta destacable que las concentraciones de  $O_3$  en Barcelona, especialmente las registradas en Fabra, muestran un máximo relativo a las 10 UTC (período de baja producción fotoquímica), seguido del pico absoluto alrededor de las 15 UTC, coincidiendo con la hora habitual de ocurrencia de máximos de  $O_3$ .

En las áreas al suroeste del AMB, varias estaciones superaron el IT, con una estación superando el AT (Gavà, Figura 11a). Jaén et al. (2021) atribuyeron este patrón a un cambio en el las condiciones de viento, que desviaron el penacho del AMB (compuesto por emisiones recirculadas y nuevas) hacia el oeste en lugar de hacia el norte, lo que se ajusta a los vientos diurnos ligeros del este observados en superficie (Figura S3.2a) y a los resultados del modelo (ver abajo). Como consecuencia, los ciclos diarios de  $O_3$  sugieren una ruta alternativa del penacho del AMB (Diéguez et al., 2009), a lo largo del eje-Llobregat en lugar del eje-Besòs (Figura 11c y d).

En los días siguientes, el episodio se debilitó debido al cambio de condiciones meteorológicas. Esto se hace evidente por la disminución significativa de las concentraciones de  $O_3$  en la ciudad particularmente en estaciones situadas a baja altura, con niveles de  $O_3$  similares a los días previos al episodio (Figura 11a).

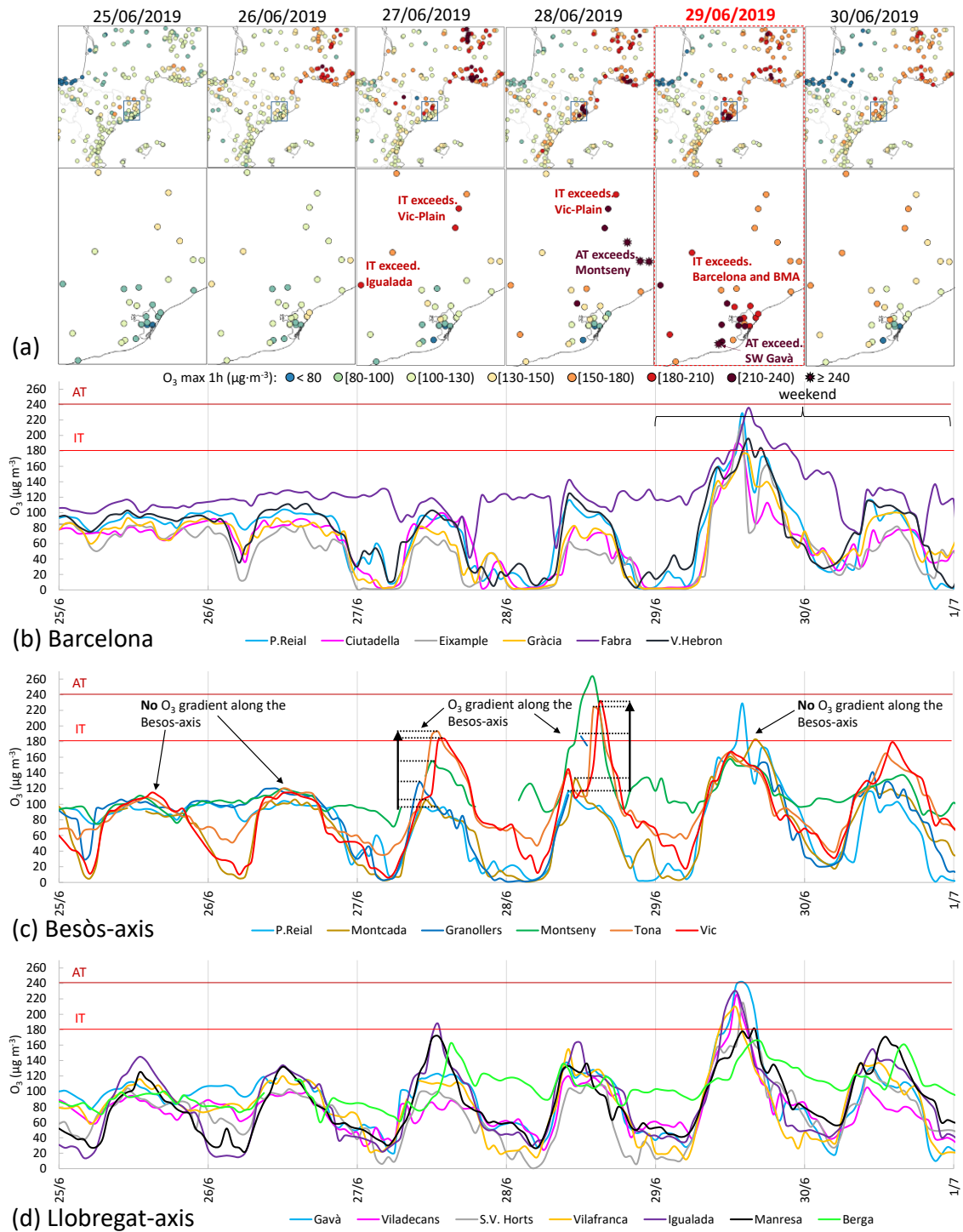


Figura 11. Episodio 2019. (a) Distribución espacial de las concentraciones horarias máximas de O<sub>3</sub>. Ciclos diarios de O<sub>3</sub> en estaciones: (b) ciudad de Barcelona, (c) a lo largo del eje-Besòs, ordenadas por distancia creciente a Barcelona: P.Reial, Montcada, Granollers, Montseny, Tona y Vic. Algunos datos horarios faltan en Granollers y Montseny, (d) a lo largo del eje-Llobregat. Las líneas horizontales rojas representan los umbrales de Información y Alerta de la Directiva (IT y AT).



#### 4.4.3 Resultados de modelización

##### *Análisis de trayectorias*

Las análisis RAMS/HYPACT (Fig. S3.5) revelan dos grupos de trayectorias de llegada a Barcelona (Fabra) el 29 de junio. El primer grupo cruzó la Cuenca del Mediterráneo Occidental con los vientos del este mencionados durante el 26 al 27 de junio y también provino de Europa central con vientos del norte. El segundo grupo, durante el 28 y 29 de junio, provino del sur, siguiendo la costa (contribuciones "Mediterráneas") con la circulación del Giro del Mediterráneo y desde el norte con la entrada característica a través del Golfo de León, barriendo el sur de Francia (contribuciones continentales europeas).

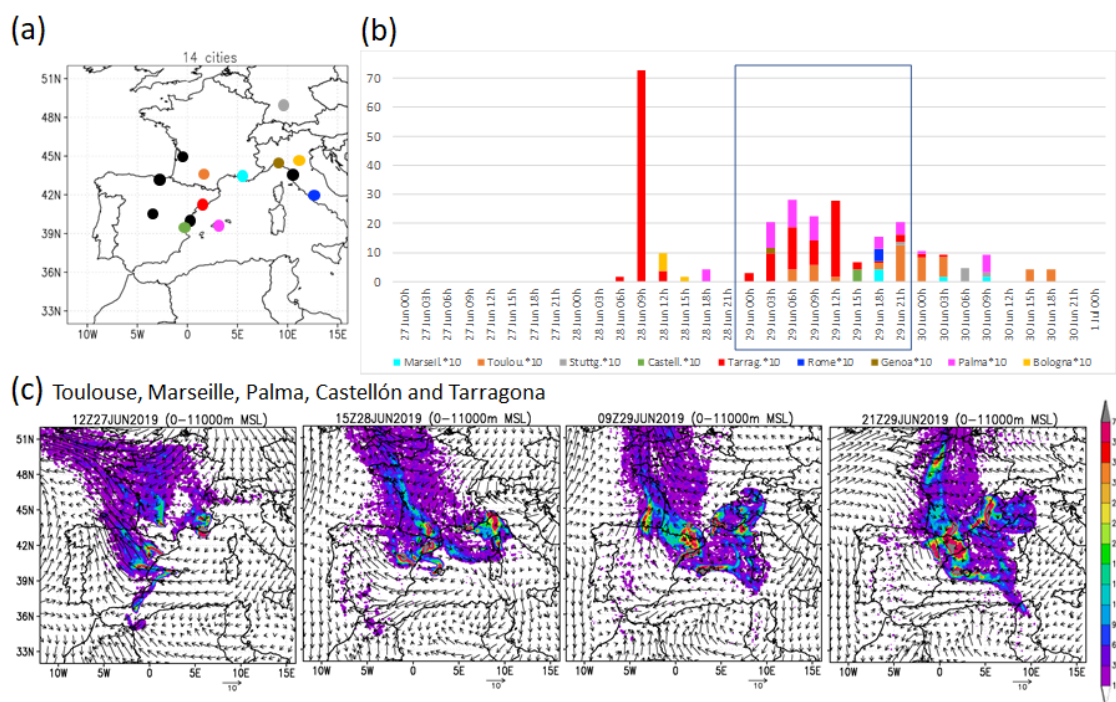


Figura. 12. Episodio 2019. (b) evolución temporal de impactos (número de partículas trazadoras) emitidas desde ciudades mostradas en (a) llegando a la capa límite planetaria de Barcelona (Fabra). Para tener en cuenta las variaciones en la intensidad del impacto entre Tarragona y otras ciudades, las concentraciones de las otras ciudades se han multiplicado por 10. Las ciudades no representadas en el gráfico de barras (b) tienen una contribución insignificante, mostrada como puntos negros en el mapa (a). (c) Carga de partículas trazadoras (0-11000 m) impactando en Barcelona emitida desde cinco ciudades seleccionadas: Toulouse, Marsella, Palma, Castellón y Tarragona.

La evolución temporal de las partículas trazadoras emitidas en trayectorias *forward* desde 14 ciudades seleccionadas (Fig. 12b) muestra que la capa límite planetaria de Barcelona recibió impactos de múltiples fuentes, como también se observó en los otros dos episodios analizados. La ciudad se encuentra en una zona de convergencia de vientos del norte (vientos de Tramontana que transportan contaminación desde Marsella y Toulouse) y vientos del sur (vórtice anticiclónico vespertino con convergencia en el interior, que transporta contaminantes desde Tarragona, Castellón y Palma). También aparecen trazas de Roma, Bolonia, Génova y Stuttgart, aunque en menor medida (con emisiones más altas sobre Barcelona). La Figura 12c muestra la carga total de partículas (0-11000 m) emitida desde 5 de las 14 ciudades (Toulouse, Marsella, Palma, Castellón y Tarragona) antes del episodio (izquierda) y durante el episodio

(derecha). El penacho muestra un desplazamiento inicial hacia el oeste (27 de junio) dentro del régimen persistente de vientos del este, pero durante el 28 y 29 de junio, el inicio de la Tramontana y las circulaciones de la Cuenca del Mediterráneo Occidental forzaron su convergencia en Barcelona desde el sur, este y norte. Por lo tanto, los resultados indican nuevamente una convergencia de múltiples fuentes de los principales contribuyentes en Francia, España e Italia.

### **Modelo fotoquímico**

Los resultados de la simulación fotoquímica indican altas concentraciones de  $O_3$  el 27 de junio a lo largo del eje del Besòs, consistente con las concentraciones observadas en superficie (Figura 13). El 28 de junio y por la mañana, las concentraciones simuladas de  $O_3$  aumentaron ligeramente y se desplazaron hacia el noreste, en comparación con el día anterior, y se ubicaron en un área relativamente calma. Esto fue causado por la convergencia de los vientos del suroeste y Tramontana, lo que sugiere acumulación de  $O_3$  durante la noche.

El 28 de junio, las brisas marinas no penetraron tan hacia el interior como durante el día anterior. La circulación inducida por el giro anticiclónico diurno de las Islas Baleares llevó el penacho del AMB a través del eje-Besòs en dirección noreste, coincidiendo con las superaciones del IT observadas en superficie (Figura 11a). Durante la noche del 28 al 29, los vientos de tramontana causaron un retorno del penacho hacia el mar. Este penacho podría haberse enriquecido con  $O_3$  o precursores provenientes de Francia, como se infiere de los altos niveles de  $NO_2$  mostrados en la Figura S3.4. La simulación muestra altos niveles integrados de  $O_3$  sobre el AMB durante toda la noche con situación de poca ventilación, lo que resultó en concentraciones relativamente altas a la mañana siguiente (Figura 13).

El 29 de junio (día del episodio), frente a la costa de Barcelona, sobre el mar, TROPOMI detectó niveles altos de  $NO_2$  y esto es consistente con la titración de  $O_3$  en la superficie mostrada en la simulación (paneles superiores en la Figura S3.6). Esto se debió más probablemente a una brisa marina nocturna muy ligera que transportó precursores hacia el mar y las emisiones asociadas a la operación salida mencionadas en la sección anterior. Durante la mañana y el mediodía, con brisas marinas relativamente débiles, toda la masa de aire contaminada por  $O_3$  que fue transportada por la tramontana durante el día anterior, combinada con emisiones frescas de  $NO_x$  a lo largo de la costa, ingresó al AMB, lo que llevó a las muy elevadas concentraciones de  $O_3$ .

Las observaciones de  $O_3$  en superficie de la ciudad (Figura 11), que como se comenta más arriba mostraron dos picos de concentración, merecen especial atención. El primer pico fue causado por la fumigación de una masa de aire contaminada por  $O_3$  antes del mediodía (paneles inferiores en la Figura S3.6), ubicada en niveles superiores en una capa relativamente cálida y seca, desacoplada de la superficie durante la noche (Figura S3.1). Estas observaciones destacan la presencia de contaminación por  $O_3$  en altura conteniendo contaminación recirculada causada el día anterior (28 de junio) con el inicio de los vientos del noroeste de la tramontana y la convergencia de la brisa marina (vientos del este) en la franja costera.

El 30 de junio, los vientos en altura cambiaron al sur y suroeste, aumentando también su intensidad y persistiendo durante varios días (Figura S3.1). En la superficie, las brisas marinas penetraron más hacia el interior, sin flujos de retorno significativos debido a la intensidad de los

vientos en niveles superiores. La simulación reprodujo este comportamiento con la posterior disminución de  $O_3$  en el AMB (no mostrada) con el posterior declive del episodio asociado.

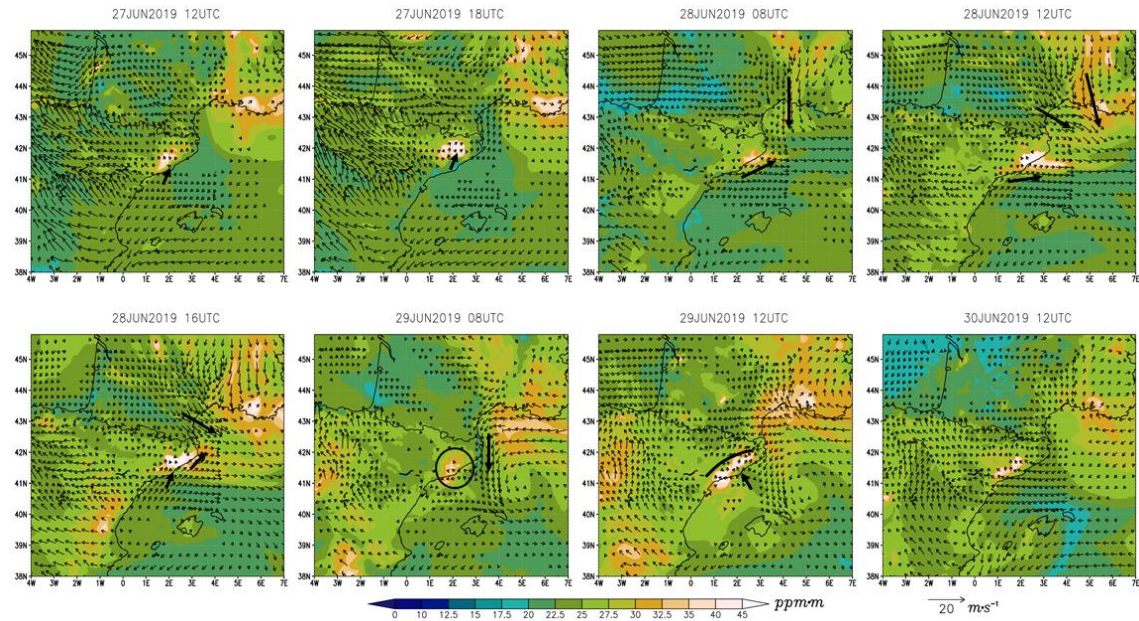


Figura 13. Episodio 2019. Concentraciones simuladas de  $O_3$  (escala de colores) integradas a 0-500 m sobre el nivel del suelo y campos de viento promedio (vectores) entre 0-500 m sobre el nivel del suelo. No se representan velocidades del viento  $<2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

## **5. ANÁLISIS CONJUNTO Y CONCLUSIONES**

Desde al menos el año 2000, la ciudad de Barcelona ha experimentado tres episodios severos de ozono ( $O_3$ ) en los que se superó el Umbral horario de Información de la UE ( $180 \mu g \cdot m^{-3}$ ). Estos episodios, registrados durante los veranos de 2015, 2018 y 2019, revisten especial importancia, dado que ocurrieron en la segunda área urbana más poblada del país. Este estudio tiene como objetivo analizar de manera exhaustiva la fenomenología de estos episodios utilizando medidas experimentales y herramientas de modelización, para identificar los factores que los desencadenan, además de ofrecer información para mejorar la su predicción.

Un resultado relevante es que los factores contribuyentes a los tres episodios son en su mayoría comunes. A continuación, se resumen los más significativos, y se añaden cuantificaciones de las contribuciones de  $O_3$  en algunos de estos factores, cuyo proceso de estimación se detalla en la Sección S4 (material suplementario). Así pues, los episodios son causados por la combinación de los siguientes factores:

### **1. Acumulación previa de $O_3$ en las regiones costeras adyacentes a Barcelona**

Esta acumulación es parcialmente atribuible a procesos de recirculación vertical y acumulación ocurridos en los días previos al episodio (Querol et al., 2017). Esta contribución se combina con el aporte regional de  $O_3$  bien transportado por vientos persistentes del este en condiciones de Tramontana inhibida en los días previos (observado en a los episodios de 2015 y 2019), o bien por con la presencia de  $O_3$  en niveles medios de la troposfera a escala regional de meso-escala como se observó durante el episodio de 2018 (ver Torre-Pascual et al., 2023). Además, las temperaturas más altas de lo habitual durante los tres episodios (declaradas como olas de calor en los episodios de 2018 y 2019), podrían haber intensificado las concentraciones de  $O_3$  a través de varios mecanismos (Porter y Heald, 2019).

### **2. Efecto “fin de semana”**

En todos los casos, el episodio se registra en sábado y/o domingo, donde el cambio en los patrones de emisión de contaminantes durante el fin de semana, parece causar un incremento de aproximadamente  $15 \mu g \cdot m^{-3}$  en los niveles de  $O_3$  (ver p.ej., Heuss et al., 2003). Esta cuantificación se encuentra en un rango similar a los hallazgos de Castell-Balaguer et al. (2012) en un área urbana mediterránea (Valencia) situada en una cuenca aérea cuya fenomenología de  $O_3$  es comparable a la del área de estudio (Querol et al., 2016).

### **3. Presencia de Tramontana durante el episodio**

En todos los episodios, predominan las condiciones meteorológicas de Tramontana, comenzando el día del episodio (en el caso de 2015) o el día anterior (en los episodios de 2018 y 2019). Estas condiciones (Gangoiti et al., 2001) pueden conllevar una inhibición o debilitamiento de las brisas de verano además de forzar una convergencia sobre la ciudad de masas de aire contaminado de diversas fuentes, como se explicará en el siguiente factor incluido el penacho metropolitano local. En todos los casos, estas condiciones también inducen a la

movilización del O<sub>3</sub>, previamente acumulado, a lo largo de las áreas costeras (ver Factor 1) hacia la ciudad.

#### 4. Convergencia multirregional de masas de aire contaminado

Este factor es evidente en todos los episodios, con contribuciones de O<sub>3</sub> con origen en al menos dos de las siguientes áreas fuente (ver Sección S4): (i) sur de Francia o Europa continental, transportadas a través del Golfo de León (+20 µg·m<sup>-3</sup>), el interior del Mediterráneo (+30–35 µg·m<sup>-3</sup>), y/o regiones costeras del este de España (+25–30 µg·m<sup>-3</sup>), incluida la ciudad de Barcelona.

La combinación de estos factores implica una contribución de al menos 45–65 µg·m<sup>-3</sup> de O<sub>3</sub> proveniente de áreas externas que convergen en la ciudad. Estos aportes se suman al efecto fin de semana (15 µg·m<sup>-3</sup>) y a los niveles de fondo, que ya han iniciado una acumulación durante los días anteriores (Factor 1).

Ciertos factores son fácilmente observables o pueden preverse. Primeramente, la observación de procesos de recirculación y acumulación (deducibles del análisis de ciclos diarios de O<sub>3</sub> observados en ciertas estaciones de monitoreo), junto con la proximidad a fines de semana o días festivos, cuyos cambios en las emisiones pueden causar un “efecto fin de semana”. Además, ciertos factores relacionados con la meteorología pueden anticiparse, incluyendo olas de calor o temperaturas inusualmente altas, brisas debilitadas/ausentes, estancamiento de masas de aire en altura y/o presencia de vientos de Tramontana en la Cuenca del Mediterráneo Occidental. Considerar y comprender los posibles efectos de estos factores y sus interacciones en la fenomenología del O<sub>3</sub> puede contribuir a la predicción de episodios elevados de O<sub>3</sub> en la ciudad.

Es importante que los modelos reproduzcan con precisión los procesos que hemos identificado en este estudio. Un paso posterior implica cuantificar en detalle las diversas contribuciones de O<sub>3</sub> y sus precursores, comprender sus orígenes y los sectores emisores clave, entre otros aspectos. Otra dirección futura a explorar es determinar si estos episodios se volverán más frecuentes en un contexto de calentamiento global y disminución de emisiones de precursores de O<sub>3</sub>. Esta consideración surge del hecho de que estos episodios han ocurrido sólo en los últimos años, excluyendo los períodos de pandemia y post-pandemia en los que no se han producido.

## 6. AGRADECIMIENTOS

Este estudio cuenta con el soporte del Ministerio de Transición Ecológica y Reto Demográfico (MITERD, en el marco del Plan Nacional de Ozono. El equipo del IDAEA-CSIC también agradece el apoyo recibido por parte de la Generalitat de Catalunya (AGAUR 2021 SGR 00447). El equipo de UPV/EHU agradece el apoyo: GIA grupo de investigación consolidado (GIU21/050) (<https://www.ehu.eus/es/web/gia>), y al Ministerio de Universidades y la UE por la beca Margarita Salas Grant (MARSA21/23) de Eduardo Torre-Pascual, fundada por Next Generation EU. También se agradece a Yolanda Sola (Universidad de Barcelona, Facultad de Física) por proporcionar datos de radiosondeos, Ana Rodríguez-García por el apoyo en la validación de los

modelos fotoquímicos, a la Agencia europea del Medio Ambiente (AEMA) por proporcionar datos de calidad del aire de estaciones de monitoreo europeas, a Meteocat por proporcionar datos meteorológicos en superficie, a la Agencia Espacial Europea (ESA) por proporcionar datos de NO<sub>2</sub> de teledetección por satélite (TROPOMI) y Wetterzentrale.de por los mapas sinópticos y QGIS por su software en abierto de SIG.

## **7. BIBLIOGRAFÍA**

- Barros, N., Borrego, C., Toll, I., Soriano, C., Jiménez, P., and Baldasano, J. M.: Urban Photochemical Pollution in the Iberian Peninsula: Lisbon and Barcelona Airsheds, *J. Air Waste Manage.* 53, 347–359, 2003.
- Castell, N., Mantilla, E., and Millán, M. M.: Analysis of tropospheric ozone concentration on a Western Mediterranean site:
- Castellon (Spain), *Environ. Monit. Assess.*, 136, 3–11, 2008.
- Castell-Balaguer, N., Téllez, L. & Mantilla, E. Daily, seasonal and monthly variations in ozone levels recorded at the Turia river basin in Valencia (Eastern Spain): *Environ Sci Pollut Res* 19, 3461–3480. <https://doi.org/10.1007/s11356-012-0881-5>, 2012.
- Chevalier, A., Gheusi, F., Delmas, R., Ordonez, C., Sarrazat, C., Zbinden, R., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J.M. : Influence of altitude on ozone levels and variability in the lower troposphere: a ground-based study for western Europe over the period 2001–2004. *Atmos. Chem. Phys.* 7, 4311–4326, 2007.
- Crippa, M., Guizzardi, D., Muntean, M., Schaaf, E., Dentener, F., van Aardenne, J. A., Monni, S., Doering, U., Olivier, J. G. J., Pagliari, V., and Janssens-Maenhout, G.: Gridded emissions of air pollutants for the period 1970–2012 within EDGAR v4.3.2, *Earth System Science Data*, 10(4), 1987–2013, <https://doi.org/10.5194/essd-10-1987-2018>, 2018.
- Dieguez, J. J., Millán, M., Padilla, L., and Palau, J. L.: Estudio y evaluación de la contaminación atmosférica por ozono troposférico en España, CEAM Report for the Ministry of Agriculture, Food and Environment, INF FIN/O3/2009, 372 pp., 2009.
- Dieguez, J. J., Calatayud, V., and Mantilla, E.: CEAM Report for the Ministry of Agriculture, Food and Environment, Fundación Biodiversidad, Informe Final, Memoria Técnica Proyecto CONOZE, CONTaminación por OZono en España, 137 pp., 2014.
- EEA: Air quality in Europe – 2015 report, EEA Report, No 5/2015, ISSN 1977-8449, 57 pp., 2015.
- EEA: Air quality in Europe–2020 report, European Environment Agency. EEA Report, No 09/2020 (ISSN 1977-8449), 160 pp. doi: 10.2800/786656, 2020.
- EC. Directive 2008/50/EC, Of The European Parliament And Of The Council of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe <http://eur-lex.europa.eu/legal-content/ES/TXT/?uri=CELEX:32008L0050>, last access: 30 December 2022, 2008.
- EPA: U.S. Environmental Protection Agency. SPECIATE Version 4.5. Database Development Documentation. EPA/600/R-16/294, [https://www.epa.gov/sites/default/files/2016-09/documents/speciate\\_4.5.pdf](https://www.epa.gov/sites/default/files/2016-09/documents/speciate_4.5.pdf), 2016.



- Escudero, M., Segers, A., Kranenburg, R., Querol, X., Alastuey, A., Borge, R., de la Paz, D., Gangoiti, G., and Schaap, M.: Analysis of summer O<sub>3</sub> in the Madrid air basin with the LOTOS-EUROS chemical transport model, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 14211–14232, <https://doi.org/10.5194/acp-19-14211-2019>, 2019.
- Fowler, D., Pilegaard, K., Sutton, M. A., Ambus, P., Raivonen, M., et al.: Atmospheric composition change: Ecosystems-Atmosphere interactions, *Atmos. Environ.*, 43, 5193–5267, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.07.068>, 2009.
- Gangoiti, G., Millán, M. M., Salvador, R., and Mantilla, E.: Long range transport and recirculation 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, 2001.
- Gangoiti, G. Alonso, L., Navazo, M., Albizuri, A. Perez-Landa, G., Matabuena, M., Valdenebro, V. et al.: Regional transport of pollutants over the Bay of Biscay: analysis of an ozone episode under a blocking anticyclone in west-central Europe *Atmos. Environ.*, 36, 8, pp. 1349-1361, [10.1016/S1352-2310\(01\)00536-2](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00536-2), 2002.
- Gangoiti, G., Albizuri, A., Alonso, L., Navazo, M., Matabuena, M., et al: Sub-continental transport mechanisms and pathways during two ozone episodes in northern Spain. *Atmos. Chem. Phys.*, 6, pp. 1469-1484., 2006.
- Gangoiti, G., Sáez de Cámara, E., Alonso, L., Navazo, Gómez, M.C., Iza, J., García, J. A., Ilardia, J. L., and Millán M.M.: Origin of the water vapor responsible for the European extreme rainfalls of August 2002: 1. High-resolution simulations and tracking of air masses. *J. Geophys. Res.*, 2011.
- GBD: Global Burden of Disease Study 2016 Cause-Specific Mortality 1980–2016, Seattle, United States: Institute for Health Metrics and Evaluation (IHME), 2016.
- Gencat: Llista de superacions i informes anuals. *Medi Ambient i Sostenibilitat.*, 2022. [https://mediambient.gencat.cat/ca/05\\_ambits\\_dactuacio/atmosfera/qualitat\\_de\\_laire/avaluacio/campanya\\_ozo/Llista-superacions-i-informes-anuals/](https://mediambient.gencat.cat/ca/05_ambits_dactuacio/atmosfera/qualitat_de_laire/avaluacio/campanya_ozo/Llista-superacions-i-informes-anuals/). Last accessed on 2022-07-14, 2022.
- Gorelick, N., Hancher, M., Dixon, M., Ilyushchenko, S., Thau, D., Moore, R.: Google Earth Engine: planetary-scale geospatial analysis for everyone. *Remote Sens. Environ.* 202, 18–27., 2017.
- Guo, Y., Gasparrini, A., Armstrong, B. G., Tawatsupa, B., Tobias, A., et al.: Temperature variability and mortality: a multi-country study, *Environ. Health Persp.*, 124, 1554–1559, 2017.
- Heuss, J.M., Kahlbaum, D.F., Wolff, G.T.: Weekday/Weekend ozone differences: what can we learn from them? *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 53, pp. 772-788, 2003.
- Holzworth, G. C.: Estimates of mean maximum mixing depths in the contiguous United States, *Mon. Weather Rev.*, 92, 235–242, 1964.
- In't Veld, M., Carnerero, C., Massagué, J., Alastuey, A., de la Rosa, J., et al: Understanding the local and remote source contributions to ambient O<sub>3</sub> during a pollution episode using a combination of experimental approaches in the Guadalquivir valley, Southern Spain. *Science of The Total Environment*. 777. 144579. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.144579>, 2021.
- IPCC: Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge

University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2391 pp., doi:10.1017/9781009157896, 2021.

Jaén, C. Udina, M., Bech, J.: Analysis of two heat wave driven ozone episodes in Barcelona and surrounding region: Meteorological and photochemical modeling. *Atmospheric Environment*, 146, 118037. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2020.118037>, 2021.

Jiménez, P., Parra, R., Gassó, S., Baldasano, J.M.: Modeling the ozone weekend effect in very complex terrains: a case study in the Northeastern Iberian Peninsula. *Atmos. Env.*, 39, 3, 429-444. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.09.065>, 2005.

Kalabokas, P., Hjorth, J., Foret, G., Dufour, G., Eremenko, M., Siour, G., Cuesta, J., and Beekmann, M.: An investigation on the origin of regional springtime ozone episodes in the western Mediterranean, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 3905–3928, <https://doi.org/10.5194/acp-17-3905-2017>, 2017.

Langner, J., Engardt, M., Baklanov, A., Christensen, J. H., Gauss, M., Geels, C., Hedegaard, G. B., Nuterman, R., Simpson, D., Soares, J., Sofiev, M., Wind, P., and Zakey, A.: A multi-model study of impacts of climate change on surface ozone in Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 10423–10440, doi:10.5194/acp-12-10423-2012, 2012.

Massagué, J., Carnerero, C., Escudero, M., Baldasano, J. M., Alastuey, A., and Querol, X.: 2005–2017 ozone trends and potential benefits of local measures as deduced from air quality measurements in the north of the Barcelona metropolitan area, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 7445–7465, <https://doi.org/10.5194/acp-19-7445-2019>, 2019.

Massagué, J., Escudero, M., Alastuey, A., Mantilla, E., Monfort, E., Gangoiti, G., Pérez García-Pando, C., and Querol, X.: Spatiotemporal variations of tropospheric ozone in Spain (2008–2019). *Env. Int.*, 176, 107961, <https://doi.org/10.1016/j.envint.2023.107961>, 2023.

Meteocat: Butlletí climàtic mensual. Servei Meteorològic de Catalunya <https://www.meteo.cat/wpweb/climatologia/el-clima-ara/butlleti-mensual/>, Last accessed on 2022-06-01., 2022.

MITMA: Áreas Urbanas en España, 2021. Ministerio de Transportes, Movilidad y Agencia Urbana, DG de Vivienda y Suelo. NIPO: 796-20-112-X. <https://www.mitma.gob.es/portal-del-suelo-y-politicas-urbanas/atlas-estadistico-de-las-areas-urbanas>, Last accesses: 2022-10-10, 2021.

Millán M.M., Salvador R., Mantilla E., and Kallos G.: Photooxidant dynamics in the Mediterranean basin in summer: Results from European research projects, *Journal of Geophysical Research* 102, 8811-8823, 1997.

Millán M.M., Mantilla E., Salvador R., Carratalá A., Sanz M.J., Alonso L., Gangoiti G., and Navazo M.: Ozone Cycles in the Western Mediterranean Basin: Interpretation of Monitoring Data in Complex Coastal Terrain, *Journal of Applied Meteorology*, 39: 487-508, 2000.

Millán, M. M., Sanz, M. J., Salvador, R., and Mantilla, E.: Atmospheric dynamics and ozone cycles related to nitrogen deposition in the western Mediterranean, *Environ. Pollut.*, 118, 167–186, 2002

Millán, M. M.: Extreme hydrometeorological events and climate change predictions in Europe, *J. Hydrol.*, 518B, 206–224, 2014.



Monks P.S., Archibald A.T., Colette A., Cooper O., Coyle M., et al.: Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 8889-8973, 2015.

Observatori Fabra: Secció Meteorològica.

<http://www.fabra.cat/meteo/resums/resums2015.html>. Last accessed on 2022-08-01., 2022.

OMS: Regional Office for Europe: Review of evidence on health aspects of air pollution—REVIHAAP project: technical report, WHO Regional Office for Europe, Copenhagen 302 pp., [http://www.euro.who.int/\\_data/assets/pdf\\_file/0004/193108/REVIHAAP-Final-technical-report-final-version.pdf?ua=1](http://www.euro.who.int/_data/assets/pdf_file/0004/193108/REVIHAAP-Final-technical-report-final-version.pdf?ua=1), last access: 5 April 2022, 2013a.

OMS: Regional Office for Europe: Health Risks of Air Pollution in Europe—HRAPIE Project: Recommendations for Concentration-Response Functions for Cost-Benefit Analysis of Particulate Matter, Ozone and Nitrogen Dioxide, Copenhagen, 65 pp., available at: [http://www.euro.who.int/\\_data/assets/pdf\\_file/0017/234026/e96933.pdf?ua=1](http://www.euro.who.int/_data/assets/pdf_file/0017/234026/e96933.pdf?ua=1) (last access: 5 April 2022), 2013b.

OMS: Global Air Quality Guidelines. Particulate matter (PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>), ozone, nitrogen dioxide, sulphur dioxide and carbon monoxide. Geneva: World Health Organization, available at: <https://www.who.int/publications/i/item/9789240034228> (last access 25 January 2021), 2021.

Pay, M. T., Gangoiti, G., Guevara, M., Napelenok, S., Querol, X., Jorba, O., and Pérez García-Pando, C.: Ozone source apportionment during peak summer events over southwestern Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 5467–5494, <https://doi.org/10.5194/acp-19-5467-2019>, 2019.

Pérez C. et al.: Summertime re-circulations of air pollutants over the north-eastern Iberian coast observed from systematic EARLINET lidar measurements in Barcelona. *Atmospheric Environment* 38 (2004) 3983–4000, 2004.

Porter, W. C. and Heald, C. L.: The mechanisms and meteorological drivers of the summertime ozone–temperature relationship, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 13367–13381, <https://doi.org/10.5194/acp-19-13367-2019>, 2019.

Pu X., Wang T., Huang X., Melas D., Zanis P., Papanastasiou D., Poupkou A. Enhanced surface ozone during the heat wave of 2013 in yangtze river Delta region, China *Sci. Total Environ.*, 603, pp. 807-816., 2017.

Querol X., Alastuey A., Orio A., Pallares M., Reina F., Dieguez J. J., Mantilla E., Escudero M., Alonso L., Gangoiti G., Millán M.: On the origin of the highest ozone episodes in Spain, *Science of the Total Environment*, 572, 379-389, 2016.

Querol X., Gangoiti G., Mantilla E., Alastuey A., Minguillón M. C., et al.: Phenomenology of high-ozone episodes in NE Spain, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17, 2817-2838, 2017.

Ramboll Environment and Health: User's Guide: Comprehensive Air Quality Model with Extensions. Version 6.5, Novato, California, [https://camx-wp.azurewebsites.net/Files/CAMxUsersGuide\\_v6.50.pdf](https://camx-wp.azurewebsites.net/Files/CAMxUsersGuide_v6.50.pdf), 2018.

Seco, R., Peñuelas, J., Filella, I., Llusà, J., Molowny-Horas, R., Schallhart, S., Metzger, A., Müller, M., and Hansel, A.: Contrasting winter and summer VOC mixing ratios at a forest site in the

Western Mediterranean Basin: the effect of local biogenic emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 13161–13179, <https://doi.org/10.5194/acp-11-13161-2011>, 2011.

Sillman, S.: The relation between ozone, NO<sub>x</sub> and hydrocarbons in urban and polluted rural environments. *Atmos Environ* 33: 1821–1845. DOI: [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(98\)00345-8](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(98)00345-8), 1999.

Sillman, S., and He, D.: Some theoretical results concerning O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-VOC chemistry and NO<sub>x</sub>-VOC indicators, *J. Geophys. Res.*, 107(D22), 4659, doi:10.1029/2001JD001123, 2002.

Solberg, S., Bergström, R., Langner, J., Laurila, T., Lindskog, A.: Changes in Nordic surface ozone episodes due to European emission reductions in the 1990s. *Atmos. Environ.* 39, 179–192, 2005

Toll, I. and Baldasano, J. M.: Modeling of photochemical air pollution in the Barcelona area with highly disaggregated anthropogenic and biogenic emissions, *Atmos. Environ.*, 34, 3069–3084, [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(99\)00498-7](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00498-7), 2000.

Torre-Pascual, E., Sáez de Cámara, E., Gangoiti, G., and Zuazo, I.: Biogenic VOC Emission Modeling for Spain: Adaptation of the National Forest Inventory as Input for MEGANv3, *Air Pollution Modeling and its Application XXVII*, Mensink, C., Volker, M. (Eds.), 45–50, Springer, [https://doi.org/10.1007/978-3-662-63760-9\\_7](https://doi.org/10.1007/978-3-662-63760-9_7), 2021.

Torre-Pascual, E., Gangoiti, G., Rodríguez-García, A., Sáez de Cámara, E., Ferreira, J., Gama, C., Gómez, M. C., Zuazo, I., García, J. A., and de Blas, M.: Analysis of an intense O<sub>3</sub> pollution episode in the Atlantic Coast of the Iberian Peninsula using photochemical modelling: characterization of transport pathways and accumulation processes, *EGU sphere* [preprint], <https://doi.org/10.5194/egusphere-2023-387>, 2023.

Valverde, V., Pay, M.T., Baldasano, J.M.: Ozone attributed to Madrid and Barcelona on-road transport emissions: characterization of plume dynamics over the Iberian Peninsula. *Sci. Total Environ.* 543, 670–682., 2016.

Van Geffen, J., Eskes, H.J., Boersma, K.F., Maasakkers, J.D., Veefkind, J.P.: TROPOMI ATBD of the total and tropospheric NO<sub>2</sub> data products. Royal Netherlands Meteorological Institute, #S5P-KNMI-L2-0005-RP, Issue 1.4.0, 2019.

Vautard, R., Beekmann, M., Desplat, J., Hodzic, A., and Morel, S.: Air quality in Europe during the summer of 2003 as a prototype of air quality in a warmer climate, *CR Geosci.*, 339, 747–763, <https://doi.org/10.1016/j.crte.2007.08.003>, 2007.

Veefkind, J.P., Aben, I., McMullan, K., Förster, H., de Vries, J., Otter, G., Claas, J., Eskes, H.J., De Haan, J.F., Kleipool, Q., Van Weele, M.: TROPOMI on the ESA Sentinel-5 Precursor: a GMES mission for global observations of the atmospheric composition for climate, air quality and ozone layer applications. *Remote Sens. Environ.* 120, 70–83. <https://doi.org/10.1016/j.rse.2011.09.027>, 2012.

## MATERIAL SUPLEMENTARIO

## S1. Episodio 2015 (6 junio)

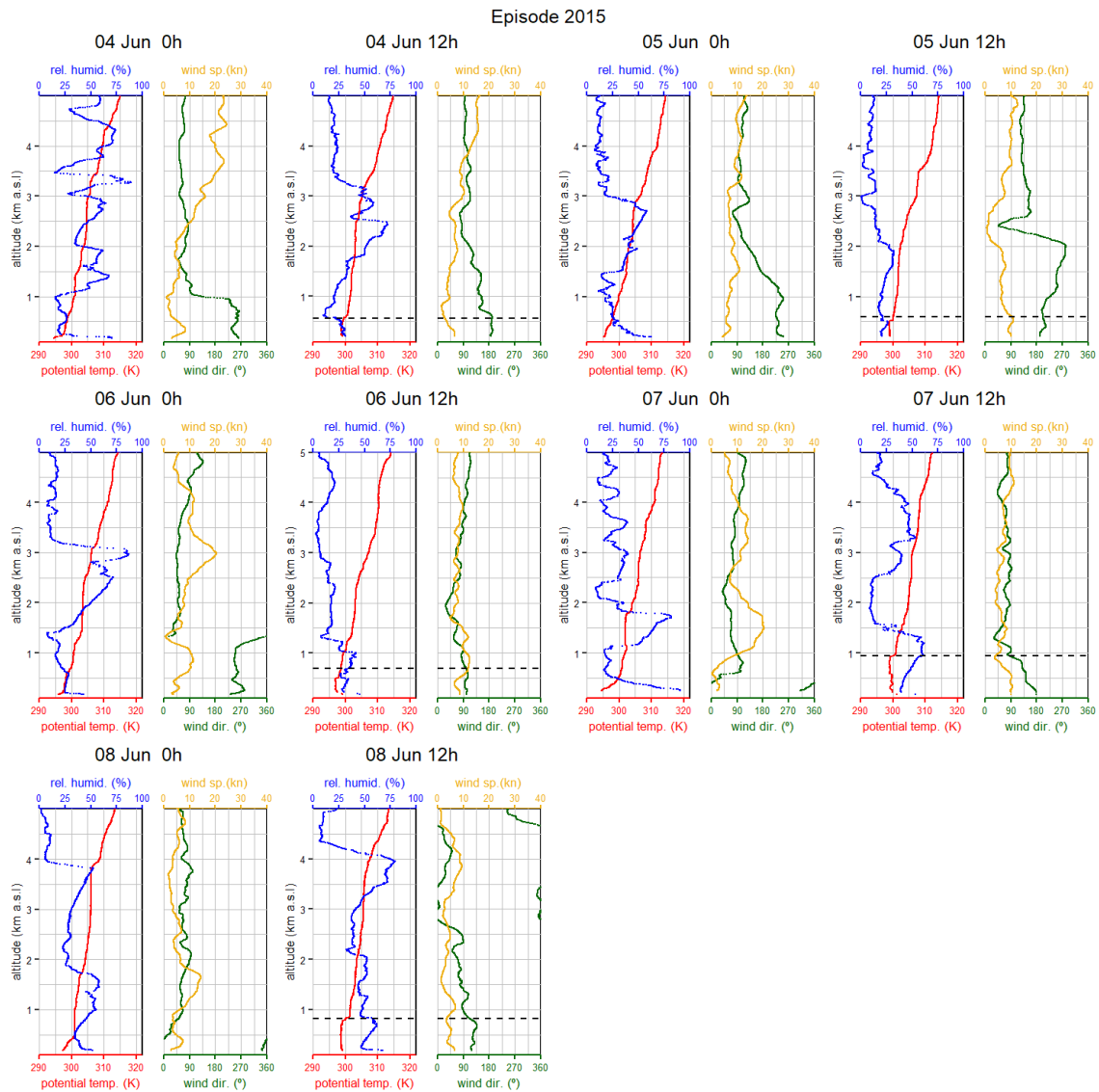


Figura S1.1. Datos de los radiosondeos (episodio 2015). Los datos de medianoche y mediodía muestran la temperatura potencial, la humedad relativa, la dirección y velocidad del viento en Barcelona (0-5000 metros sobre el nivel del mar). Las líneas punteadas horizontales representan la altura de la capa de mezcla (MLH). Las MLH se calculan solo para los datos de mediodía.

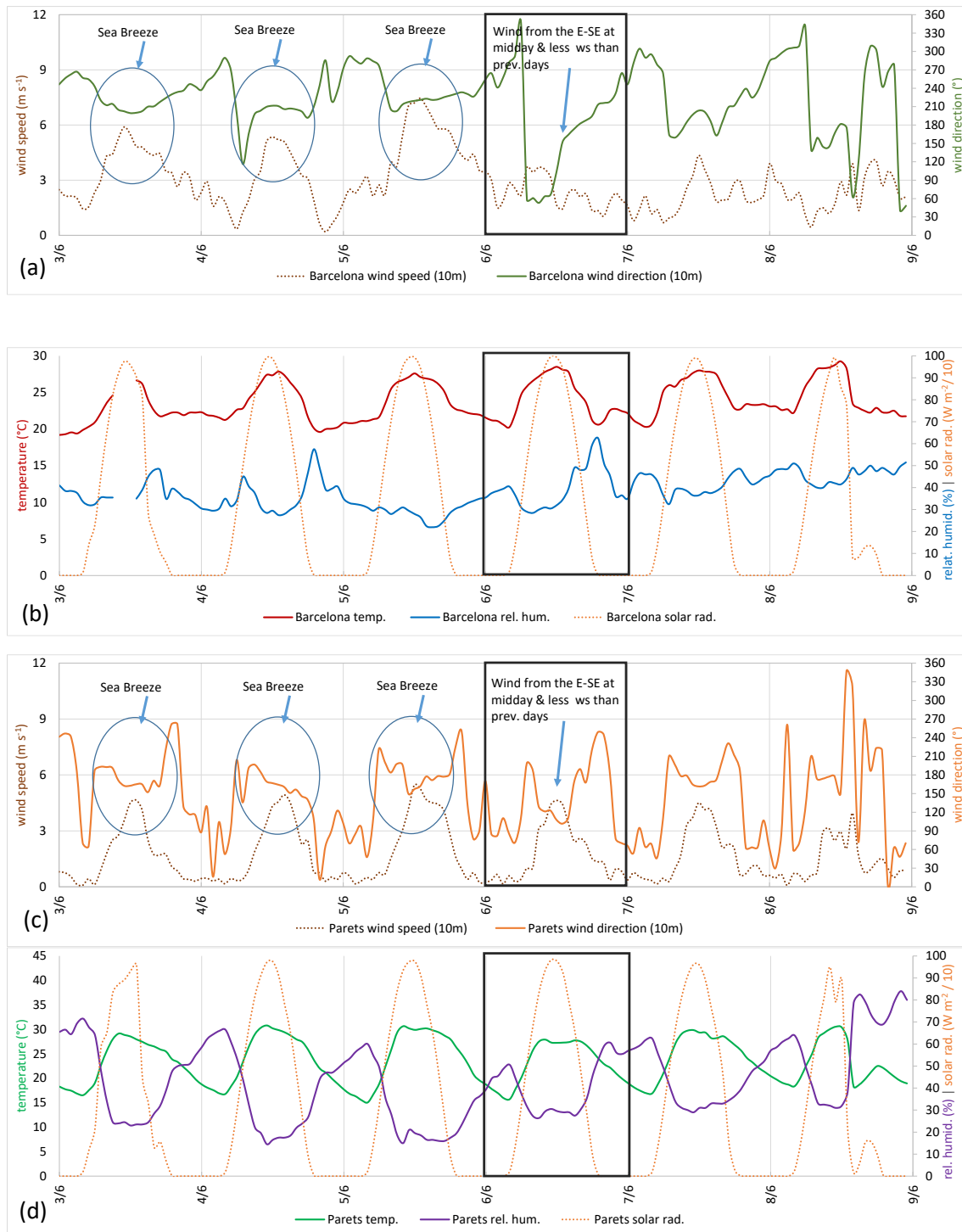


Figura S1.2. Parámetros meteorológicos en superficie (episodio de 2015). (a): Velocidad y dirección del viento en Barcelona (10 metros sobre el nivel del suelo). (b): Temperatura, humedad relativa y radiación solar en Barcelona. (c): Velocidad y dirección del viento en Parets (25 km al norte, sotavento de Barcelona) a 10 metros sobre el nivel del suelo. (d): Temperatura, humedad relativa y radiación solar en Parets.

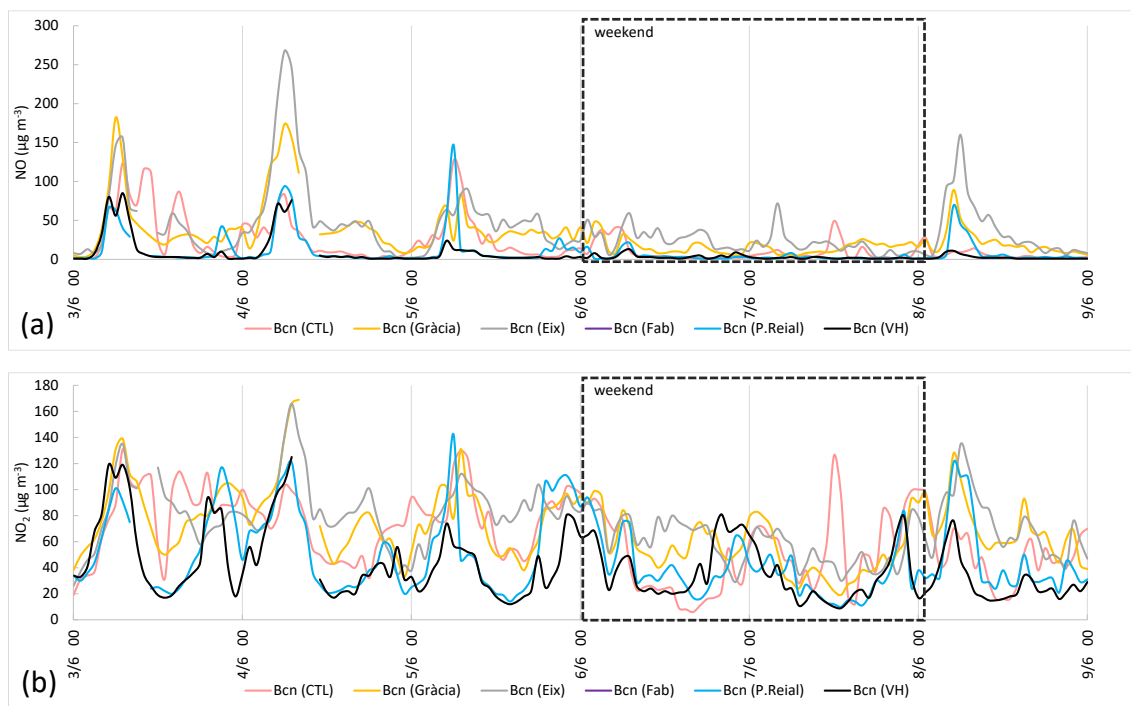


Figura S1.3. Concentraciones de NO y (b) de NO<sub>2</sub> observadas en Barcelona durante el período del 3 al 8 de junio de 2015. Se observa el efecto del fin de semana en las concentraciones.

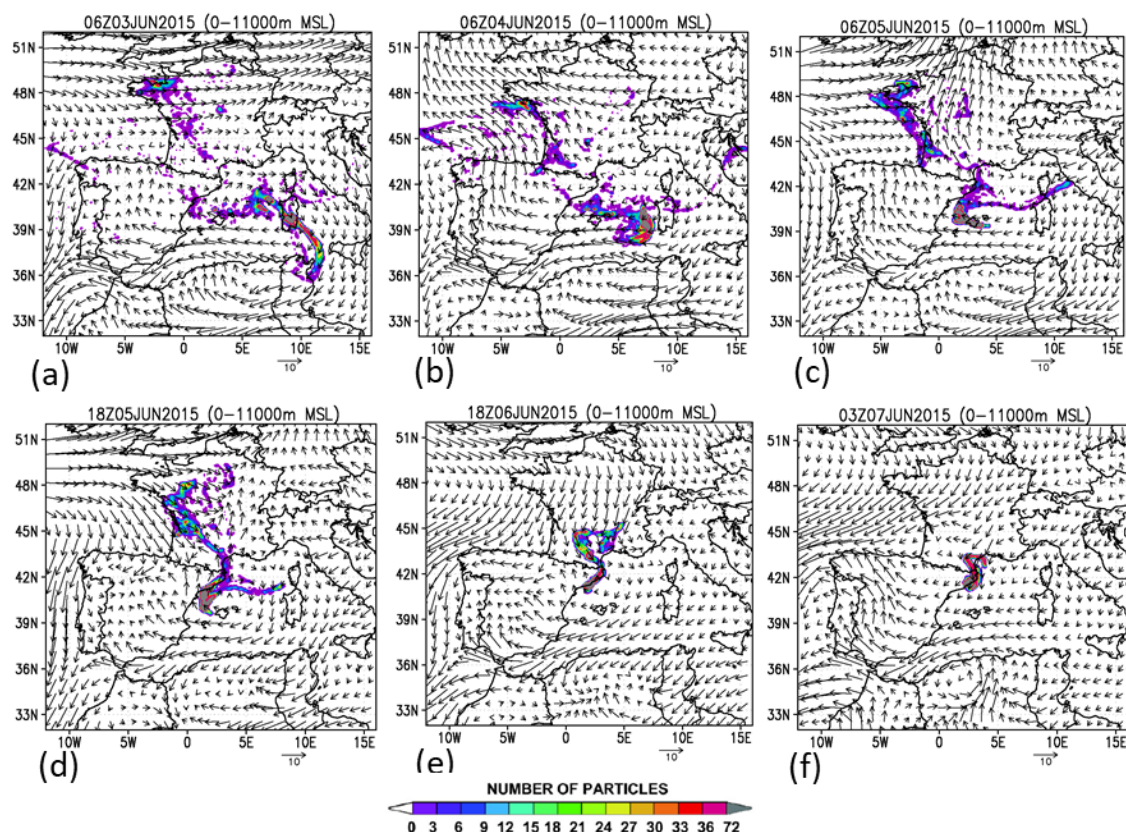


Figura S1.4. Retro trayectorias de RAMS/HYPACT de llegada a Barcelona (Ciutadella) el 6 de junio (día del episodio) y el 7 de junio. Los vectores representan el viento promedio de 0 a 1000 metros sobre el nivel del suelo (niveles sigma), y las áreas coloreadas representan el número total de partículas acumuladas en la vertical del sitio. (a-d) cruzando el Mediterráneo Occidental con vientos del este y sureste durante el 3-5 de junio, y desde Francia con vientos del oeste el 5 de junio, (e,f) Desde el sur, a lo largo de la costa este de España (influencia mediterránea) con la circulación del Giro del Mediterráneo, y desde el norte, a través del Golfo de León, barriendo el sur de Francia.



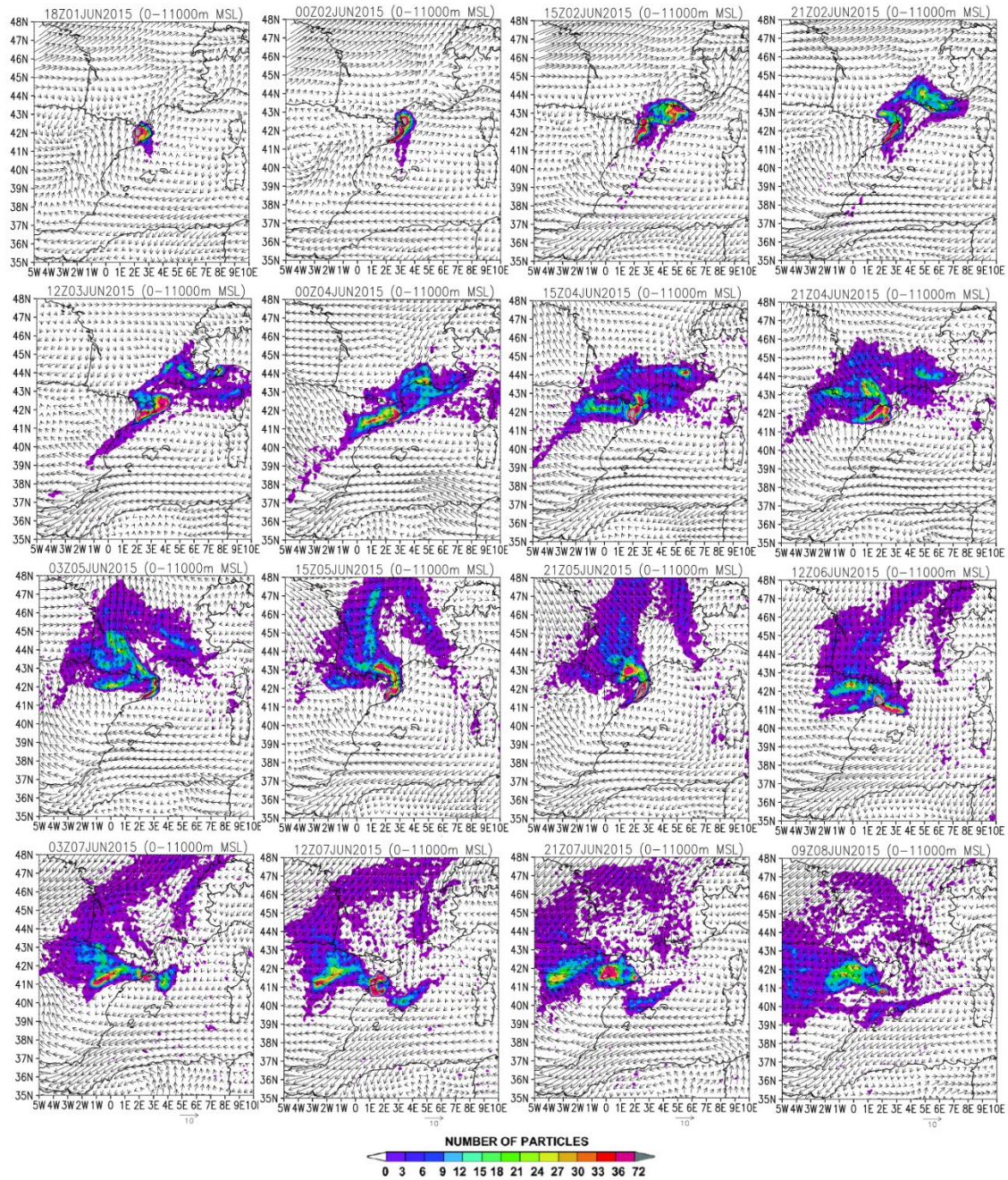


Figura S1.5. Secuencia de dispersión del penacho de Barcelona (emitido desde el Eixample) junto con el campo de vientos promedio 0-800m de altura, que explican ese transporte. Antes del día 6 de junio el transporte es hacia el norte y no hay recirculación (mar-tierra) de las emisiones propias. El día 6 y posteriores (coincidiendo con la Tramontana) hay recirculación mar-tierra en la costa de Barcelona. El penacho da un giro completo a lo largo de todos los días y Barcelona está ubicada en el centro de una zona de convergencia de las entradas del Golfo de León, que circulan hacia el Sur paralelas a la costa durante la noche y se unen a las aportaciones propias y a las mediterráneas desde el S y SE, con las brisas de mar y el giro mediterráneo.



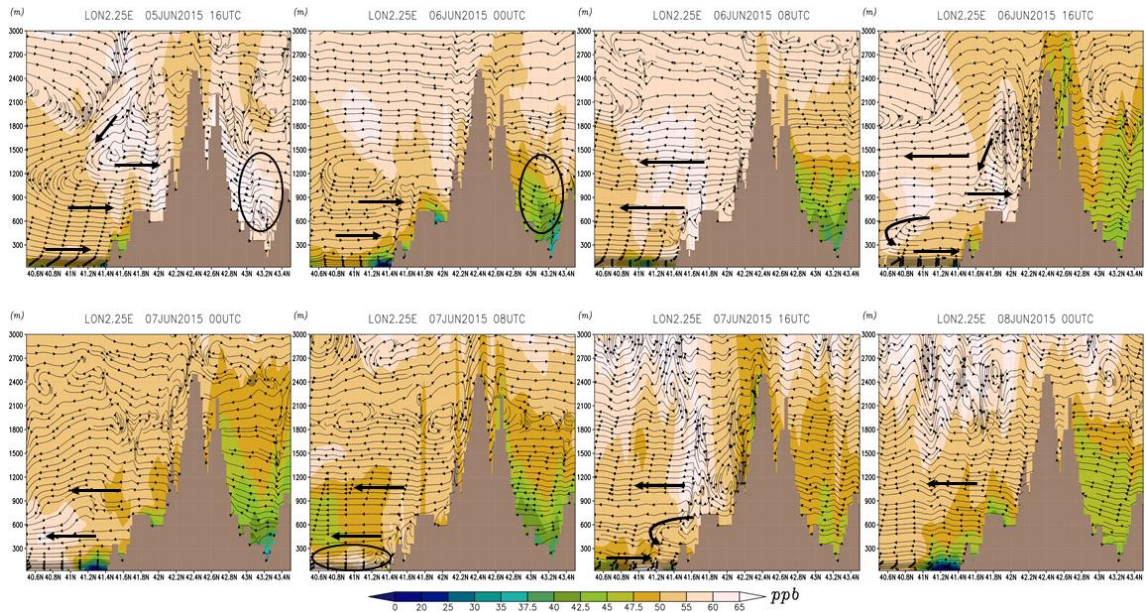


Figura S1.6. Episodio 2015.  $O_3$  simulado a lo largo de la sección transversal Barcelona-Vic. Vientos horizontales proyectados junto con vientos verticales. Las concentraciones se expresan en ppb ya que son independientes de la altitud ( $1 \text{ ppb} \approx 2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  al nivel del mar).

## S2. Episodio 2018 (4 y 5 de agosto)

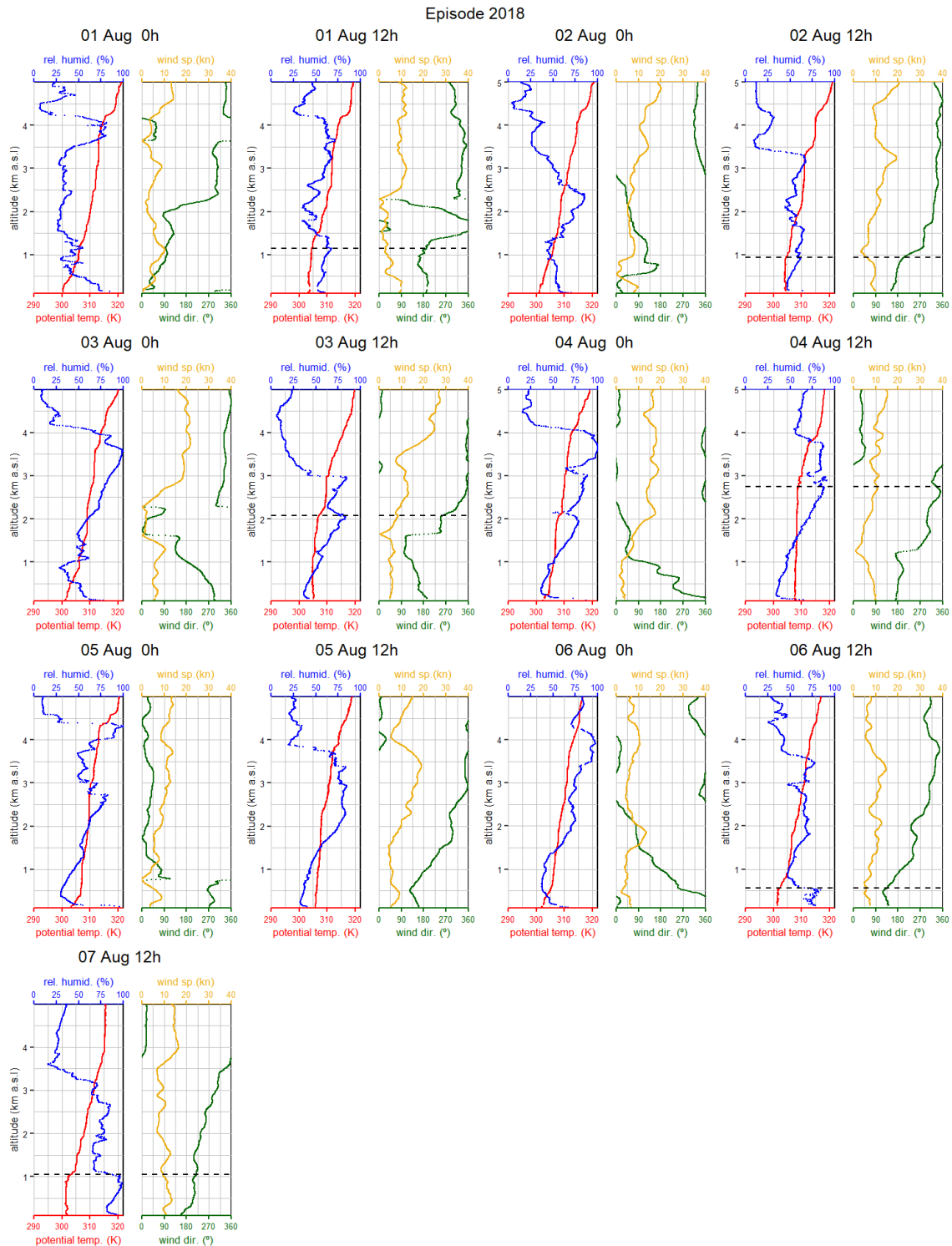


Figura S2.1. Datos de los radiosondeos (episodio 2018). Los datos de medianoche y mediodía muestran la temperatura potencial, la humedad relativa, la dirección y velocidad del viento en Barcelona (0-5000 metros sobre el nivel del mar). Las líneas punteadas horizontales representan la altura de la capa de mezcla (MLH). Las MLH se calculan solo para los datos de mediodía, algunos de los MLHs faltan debido a problemas técnicos. No existen datos para la noche del día 7.

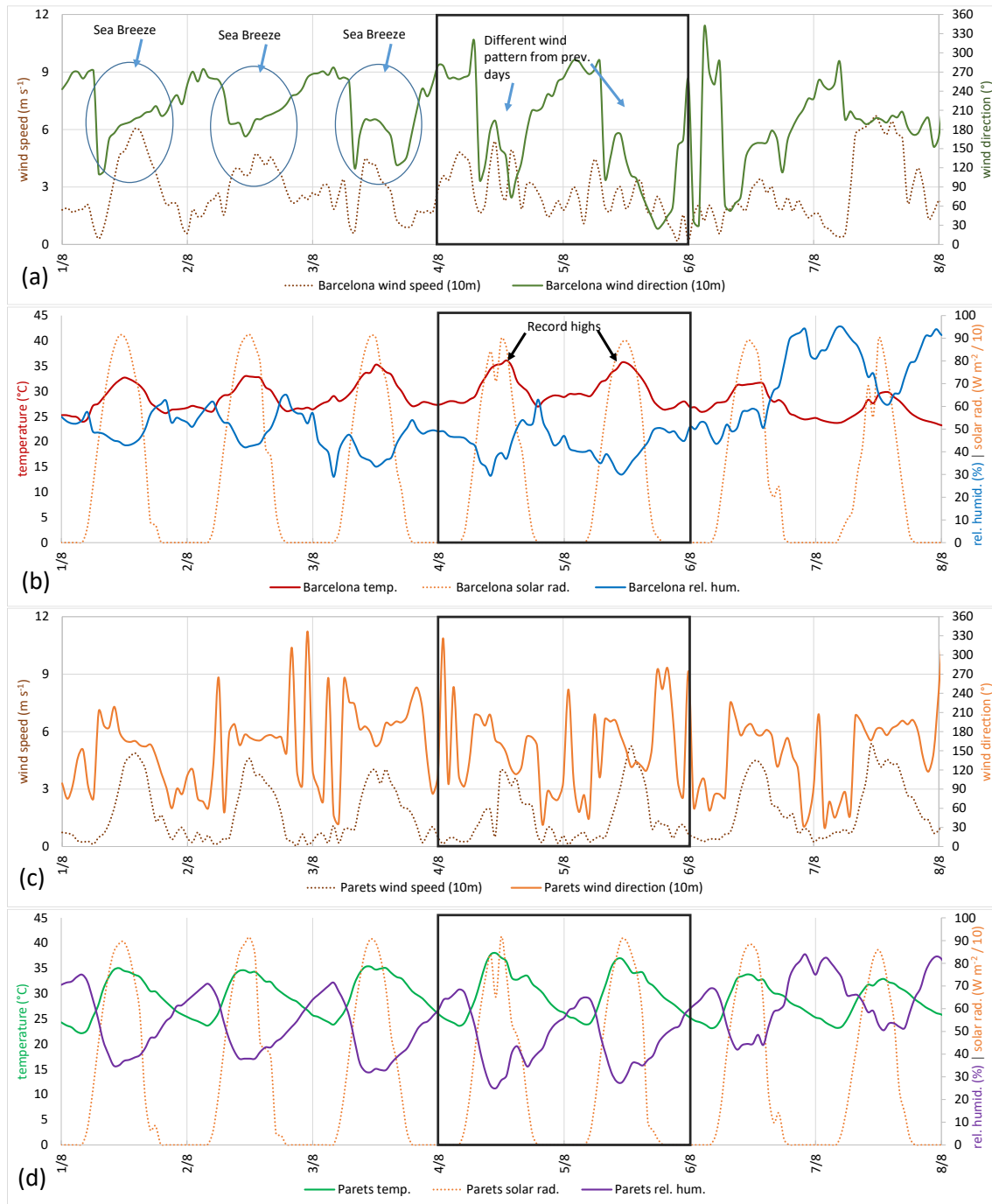


Figura S2.2. Parámetros meteorológicos en superficie (episodio de 2018). (a): Velocidad y dirección del viento en Barcelona (10 metros sobre el nivel del suelo). (b): Temperatura, humedad relativa y radiación solar en Barcelona. (c): Velocidad y dirección del viento en Parets (25 km al norte, sotavento de Barcelona) a 10 metros sobre el nivel del suelo. (d): Temperatura, humedad relativa y radiación solar en Parets.

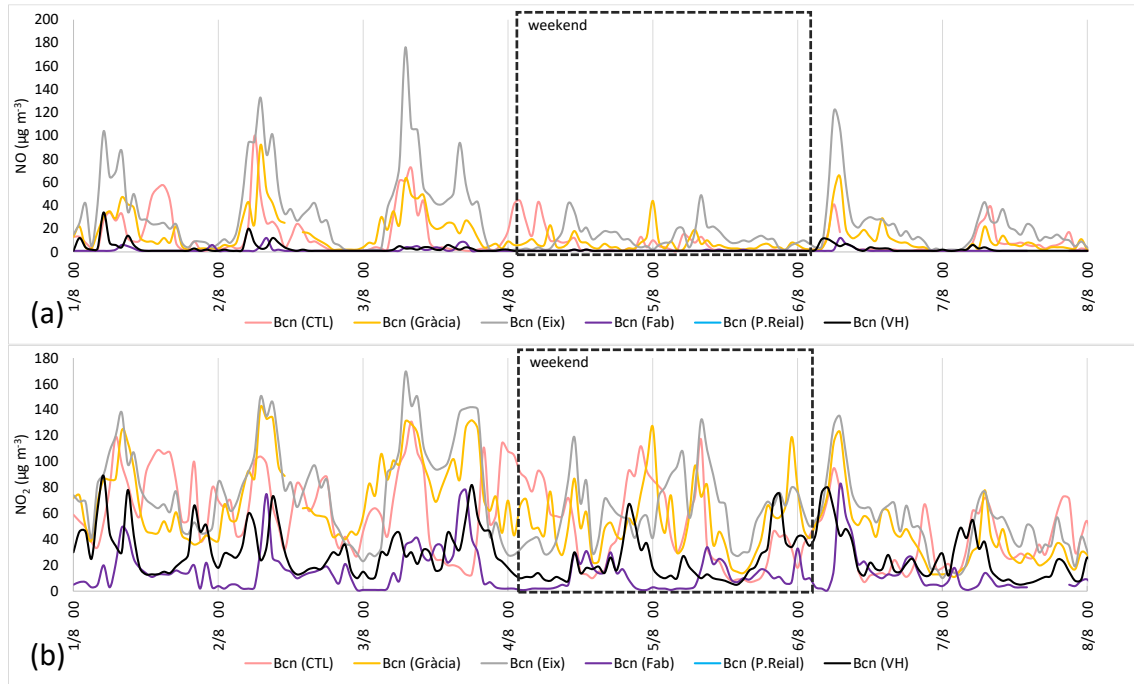


Figura S2.3. Concentraciones de NO y (b) de NO<sub>2</sub> observadas en Barcelona durante el período del 1 al 8 de agosto de 2018. Se observa el efecto del fin de semana en las concentraciones.

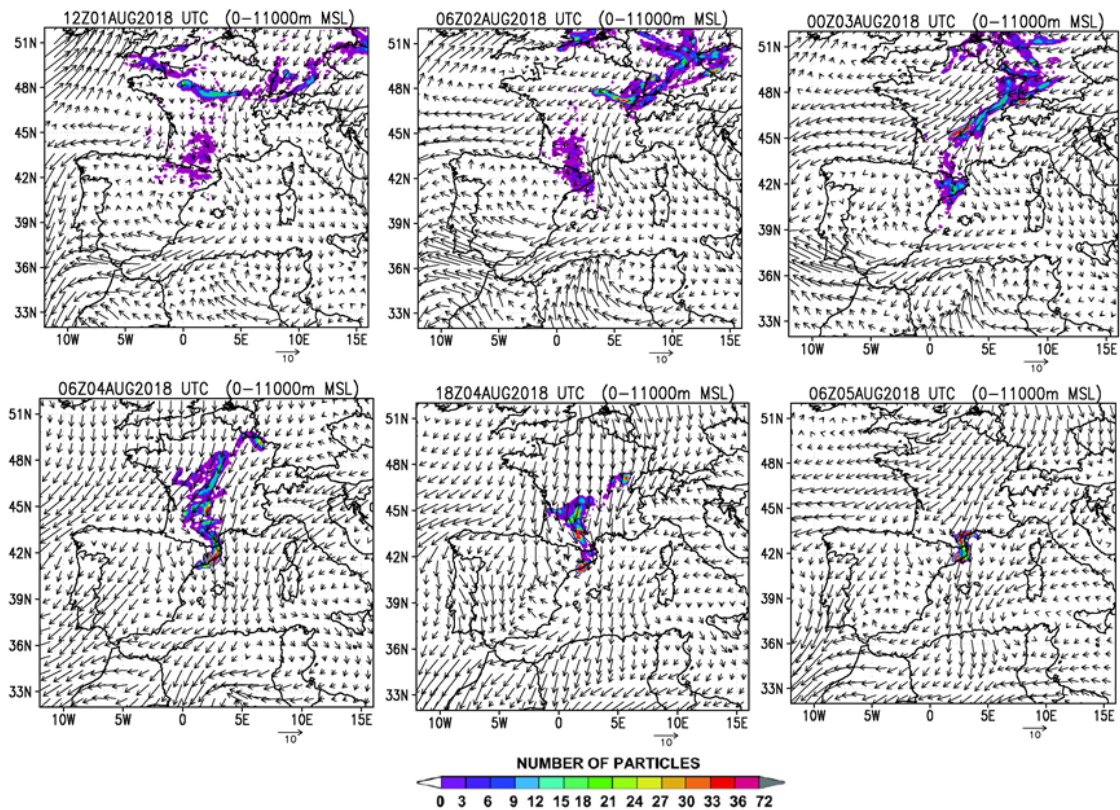


Figura S2.4. Episodio de 2018. Retrotraectorias de RAMS/HYPACT de llegada a Barcelona (Fabra) el 4 y 5 de agosto de 2018 (días del episodio). Los vectores representan el viento promedio de 0 a 1000 metros sobre el nivel del suelo (niveles sigma), y las áreas sombreadas representan el número total de partículas acumuladas en la vertical del sitio. En la fila superior, antes del episodio, en la fila inferior, durante el episodio.



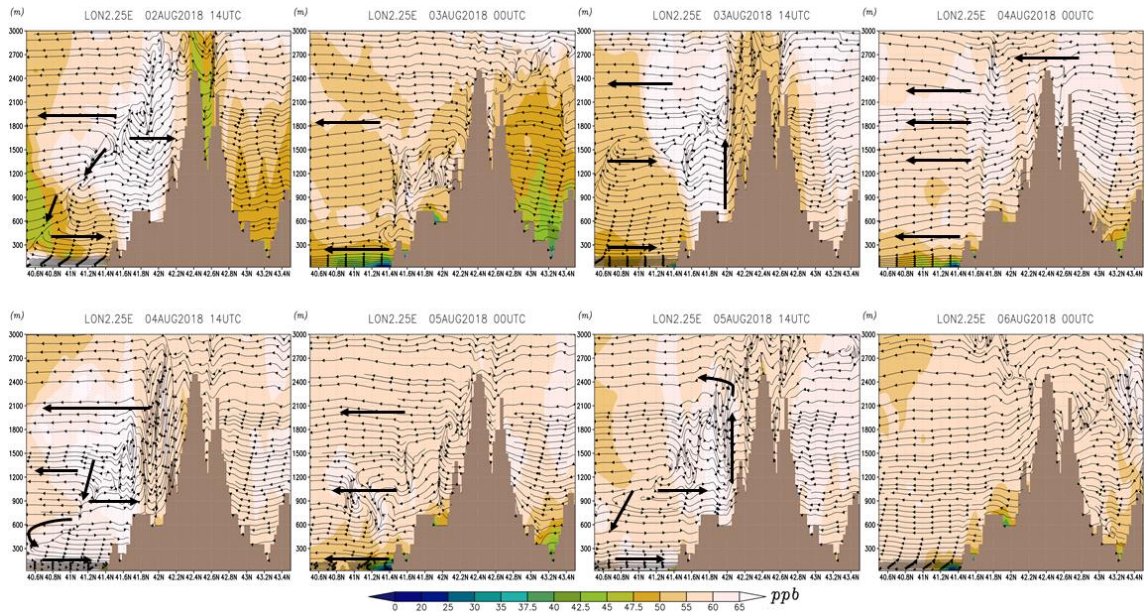


Figura S2.5. Episodio 2018.  $O_3$  simulado a lo largo de la sección transversal Barcelona-Vic. Vientos horizontales proyectados junto con vientos verticales. Las concentraciones se expresan en ppb ya que son independientes de la altitud ( $1 \text{ ppb} \approx 2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  al nivel del mar).

## S3. Episodio 2019 (29 de junio)

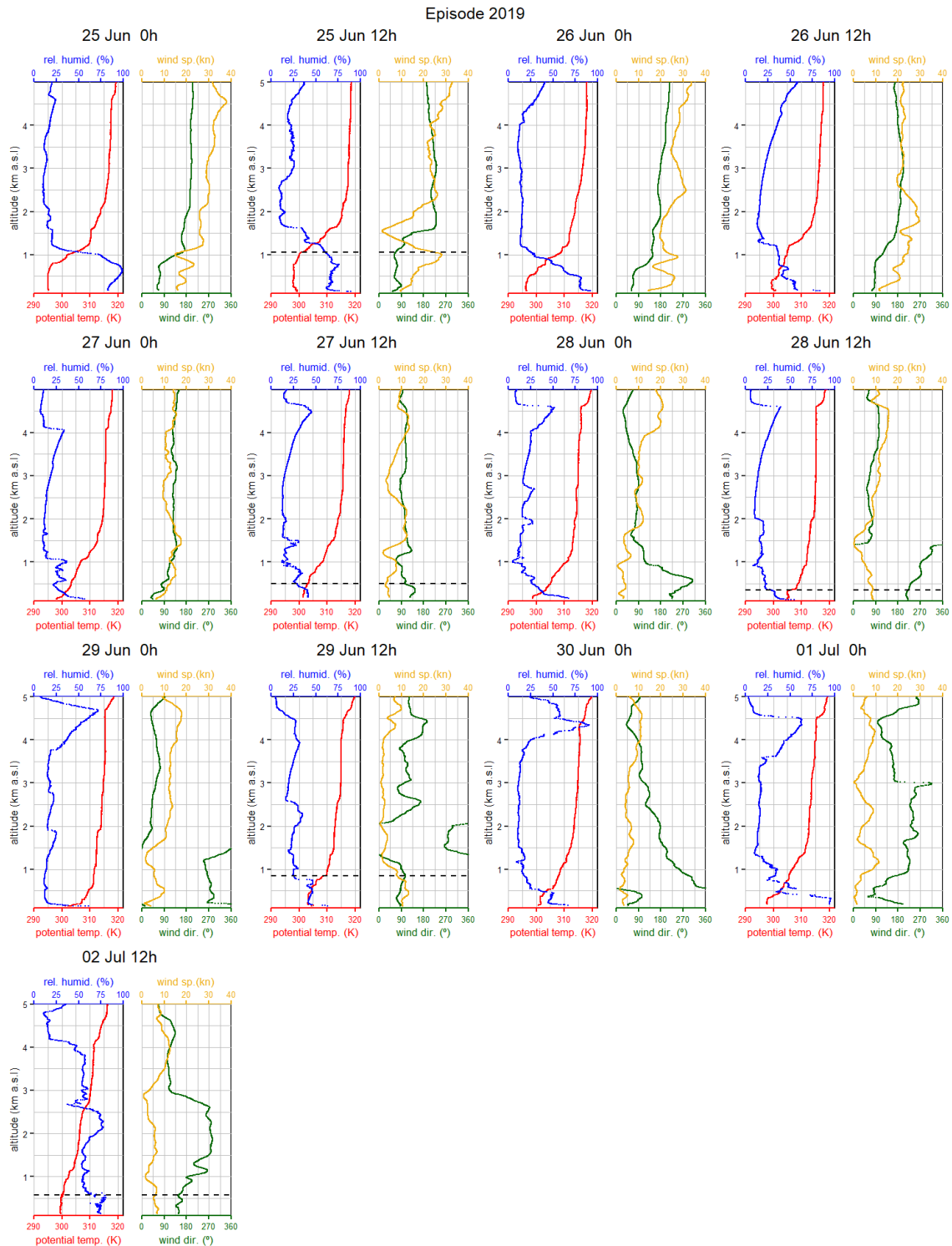


Figura S3.1. Datos de los radiosondeos (episodio 2019). Los datos de medianoche y mediodía muestran la temperatura potencial, la humedad relativa, la dirección y velocidad del viento en Barcelona (0-5000 metros sobre el nivel del mar). Las líneas punteadas horizontales representan la altura de la capa de mezcla (MLH). Las MLH se calculan solo para los datos de mediodía, algunos de los MLHs faltan debido a problemas técnicos. No existen datos para el mediodía del día 30 de junio ni 1 de julio ni para la noche del día 2.

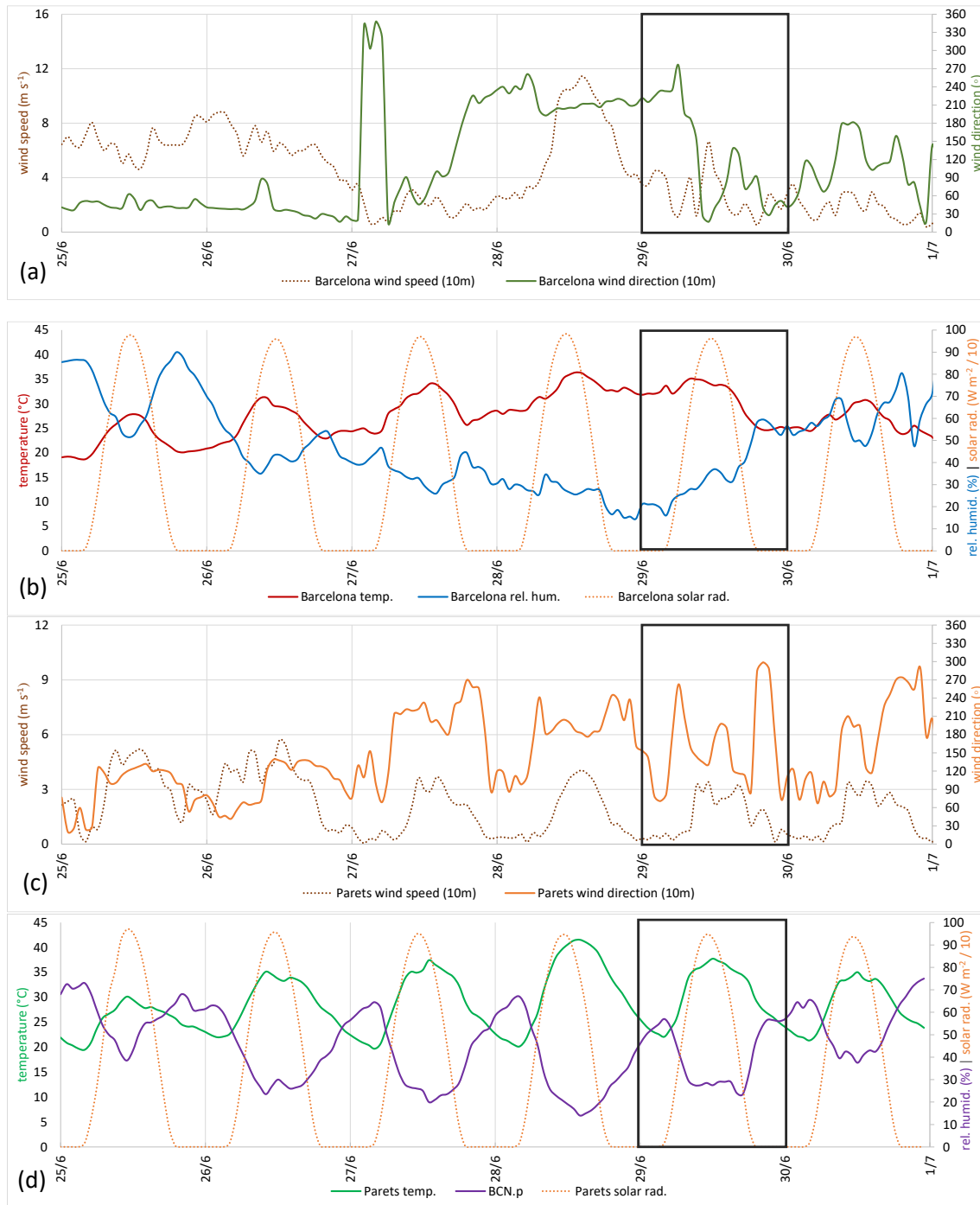


Figura S3.2. Parámetros meteorológicos en superficie (episodio de 2019). (a): Velocidad y dirección del viento en Barcelona (10 metros sobre el nivel del suelo). (b): Temperatura, humedad relativa y radiación solar en Barcelona. (c): Velocidad y dirección del viento en Parets (25 km al norte, sotavento de Barcelona) a 10 metros sobre el nivel del suelo. (d): Temperatura, humedad relativa y radiación solar en Parets.

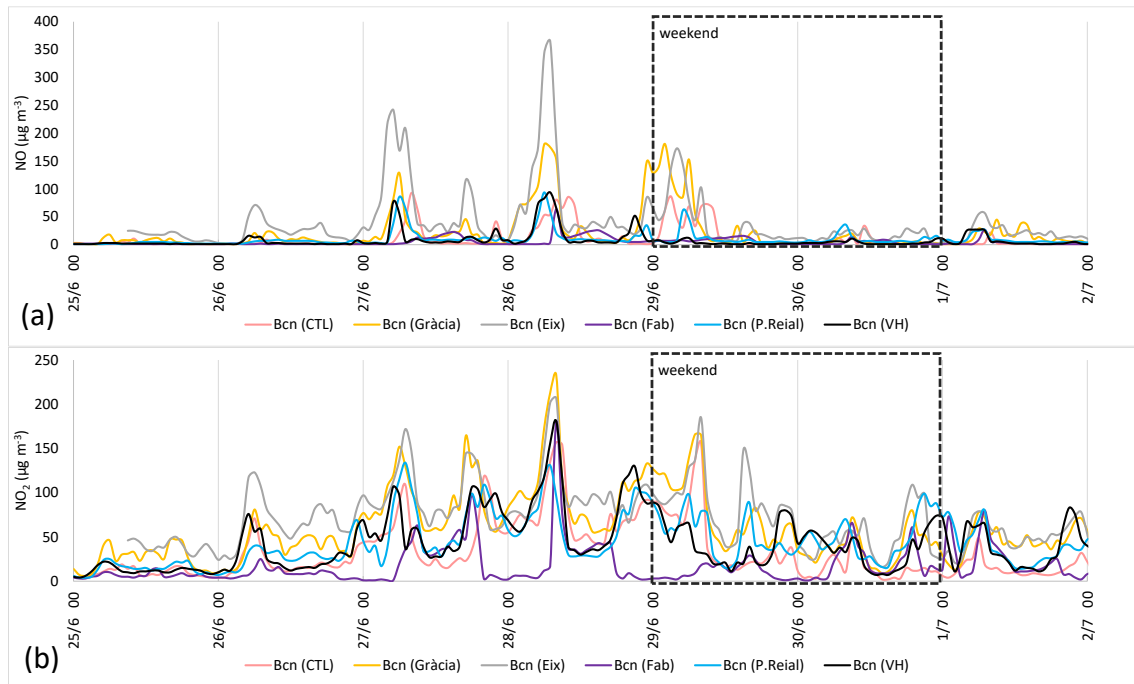


Figura S3.3. Concentraciones de NO y (b) de NO<sub>2</sub> observadas en Barcelona durante el período del 25 de junio al 2 de julio de 2019. Se observa el efecto del fin de semana en las concentraciones.

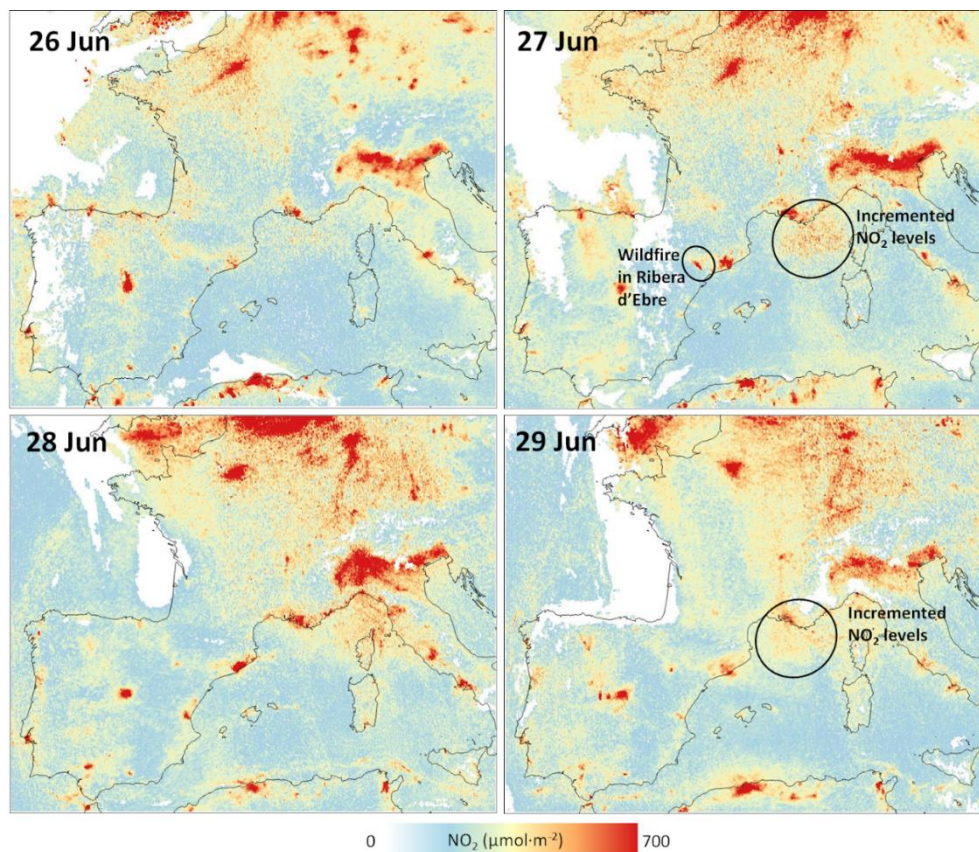


Figura S3.4. Concentraciones de NO<sub>2</sub> observadas en columna troposférica obtenidas de TROPOMI-ESA durante el episodio de 2019.



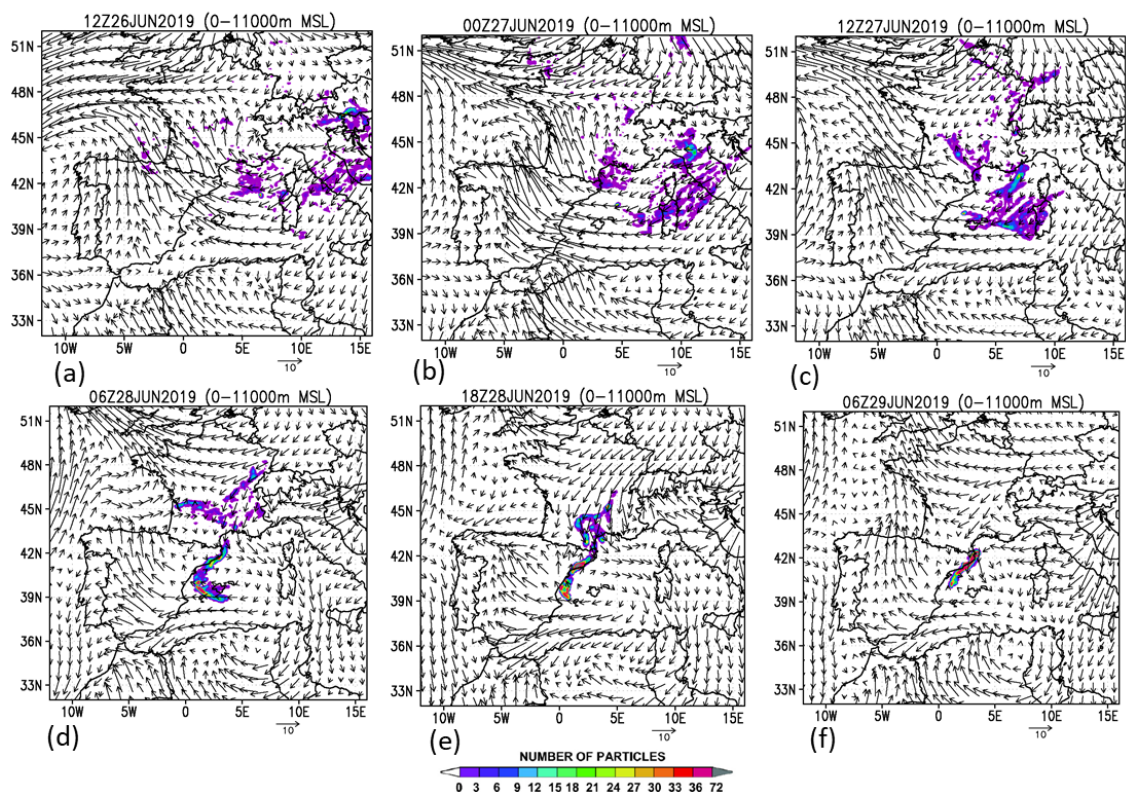


Figura S3.5. Retro trayectorias de RAMS/HYPACT de llegada a Barcelona (Fabra) el 29 de junio (día del episodio). Los vectores representan el viento promedio de 0 a 1000 metros sobre el nivel del suelo (niveles sigma), y las áreas sombreadas representan el número total de partículas acumuladas en la vertical del sitio. (a-c) Cruzando el Mediterráneo Occidental con vientos del este, y desde Europa Central con vientos del norte. (d-f) Desde el sur, siguiendo la costa (aportes mediterráneos) con la circulación del Giro del Mediterráneo, y desde el norte, con una entrada característica a través del Golfo de León, barriendo el sur de Francia (contribuciones de Europa continental).

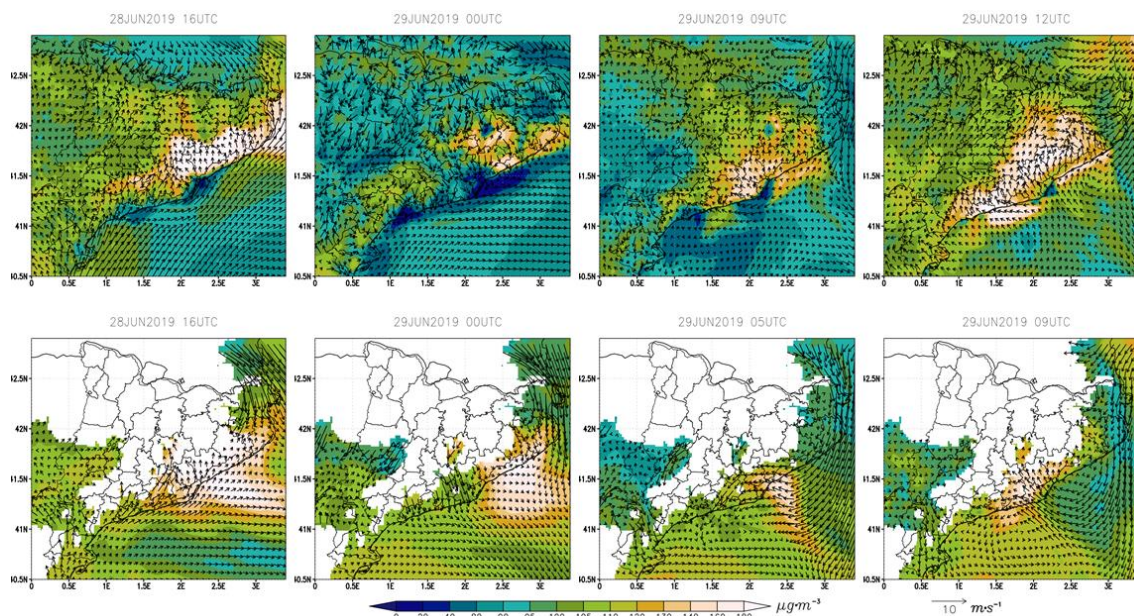


Figura S3.6. Episodio 2019. (Fila superior) Concentraciones simuladas de  $O_3$  (escala de colores) y campos de viento promedio (vectores) a nivel del suelo y (fila inferior) a 600 metros sobre el nivel del suelo.



#### S4. Estimaciones de contribuciones de ozono durante los episodios

Esta sección complementa el último apartado del manuscrito principal (Sección 5) al detallar el proceso involucrado en la estimación de varias contribuciones de  $O_3$  que potencialmente contribuyeron a las concentraciones anormalmente altas de  $O_3$  durante los episodios en la ciudad. Como suposición general, consideramos que cada contribución estimada de  $O_3$  (por ejemplo, la contribución de  $O_3$  del efecto del fin de semana) permanece consistente en todos los episodios.

Las estimaciones propuestas aquí se basan en los resultados del estudio (consultar la Sección 4) y las variaciones en las concentraciones de  $O_3$  en días consecutivos. Para determinar estas variaciones, se han extraído gráficamente los valores de concentración de  $O_3$  de la zona central pico de cada día (ver ciclos diarios en las Figuras 3b, 7b y 11b) y se han comparado estos valores en días consecutivos. Reconociendo la considerable variabilidad en los niveles de  $O_3$  en las seis estaciones de la ciudad, se han seleccionado específicamente datos de dos a tres estaciones para cada episodio. Esta selección tiene como objetivo capturar niveles representativos de  $O_3$  en la ciudad, excluyendo deliberadamente estaciones con valores extremos, tanto altos como bajos, con el fin de mejorar la representatividad general del conjunto de datos para cada episodio específico.

Para simplificar, se agrupan las diferentes ciudades (o fuentes) identificadas en los análisis de trayectorias (Secciones 4.2.3, 4.3.3 y 4.4.3) en tres áreas geográficas principales. Estas áreas fuente incluyen "Norte", abarcando fuentes del sur de Francia (Toulouse, Montpellier, Marsella, etc.), entrando en la cuenca mediterránea a través del Golfo de León; "Sur", que incluye fuentes de la costa este española (Tarragona, Castellón, Valencia, etc.); y "Este", que comprende fuentes del interior del Mediterráneo ubicadas al este del área de estudio (Palma, Cagliari, Roma e incluso tráfico marítimo).

Es útil mencionar las posibles implicaciones que las condiciones meteorológicas de Tramontana (Gangoiti et al., 2001) pueden tener en el contexto de este estudio. Estas "condiciones de Tramontana", consistentemente observadas en todos los episodios analizados, se caracterizan por brisas costeras de menor intensidad de lo habitual para la temporada (e incluso inhibidas) con recirculaciones costeras, vientos en altitud que favorecen la inversión de la brisa marina y un aumento de la convergencia de masas de aire sobre Barcelona. Estas convergencias, que son el resultado de las circulaciones costeras siguiendo el chorro de León (*Lion jet*), conducen a vientos disminuidos dentro de la zona de convergencia. Estas condiciones pueden variar con ocurrencia de dichas condiciones de Tramontana debido a la evolución de la corriente en chorro y las recirculaciones variables en la zona de estela (*wake zone*) entre la corriente en chorro y la costa de Barcelona. Estas recirculaciones pueden facilitar, a su vez, el transporte de masas de aire desde una o una combinación de las áreas o regiones fuente mencionadas anteriormente.

Durante el episodio de junio de 2015, las concentraciones en superficie de  $O_3$  en Barcelona alcanzaron 80–110  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  el viernes 5 (Figura 3b). Según el contexto meteorológico detallado en la Sección 4.2.1, en este día no hubo condiciones de Tramontana ni convergencia de masas de aire de múltiples áreas fuente (convergencia multirregional), y la dinámica del eje del Besòs (Sección 4.2.2) estaba bien desarrollada. Las condiciones de Tramontana comenzaron el sábado 6 (episodio en Barcelona), persistiendo hasta el martes 9. En este contexto, las brisas fueron más cortas de lo habitual, confinadas a áreas costeras, y el retorno fue más favorecido por la componente N–NW de la Tramontana. El sábado 6, las contribuciones más significativas de  $O_3$  se originaron en la conjunción de las áreas fuente "Sur" (en este caso, Tarragona) y "Este"

(principalmente Palma, Cagliari) (Figura 4a), dando como resultado concentraciones de  $O_3$  de  $160\text{--}180\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . El domingo 7, las contribuciones fueron predominantemente del área "Norte" (Toulouse, Montpellier, Marsella), en contraste con las contribuciones combinadas "Sur" y "Este" del día anterior, con concentraciones de aproximadamente  $\sim 130\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . El lunes 8, las concentraciones de  $O_3$  alcanzaron  $110\text{--}120\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figura 3b). Dadas las condiciones meteorológicas similares a las del día anterior, donde la dinámica del eje del Besòs no se había restablecido, y las contribuciones también provinieron del área "Norte", aunque con una distribución diferente al domingo 7 (Toulouse tuvo una contribución relativamente menor y Montpellier mayor), se asumió que estas contribuciones eran de la misma magnitud que las del día anterior. En consecuencia, se considera plausible que la diferencia entre las concentraciones de  $O_3$  el domingo 7 y el lunes 8 represente la contribución del efecto fin de semana ( $\sim 15\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

La diferencia observada de  $\sim 75\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  de  $O_3$  entre los niveles del viernes 5 (sin condiciones de Tramontana) y el sábado 6 (con condiciones de Tramontana) probablemente se deba a los efectos combinados de las contribuciones de las áreas fuente "Sur" y "Este", junto con el efecto fin de semana que afectó el sábado 6. Restando la contribución del efecto fin de semana recientemente estimada ( $\sim 15\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) de este gradiente de  $O_3$ , se estima que la contribución acumulativa de las áreas fuente "Sur" y "Este" durante la convergencia inducida por Tramontana es de  $\sim 60\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  ( $75\text{--}15\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ). De manera similar, la contribución del área fuente "Norte" durante el domingo 7 se puede estimar calculando la diferencia en los niveles de  $O_3$  entre este día y el viernes 5, restando nuevamente la contribución del efecto fin de semana. Esto resulta en una contribución aproximada de  $\sim 20\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  ( $130\text{--}15\text{--}95\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) del área "Norte" bajo condiciones de convergencia de Tramontana.

Las estimaciones derivadas del episodio de junio de 2015 pueden ser evaluadas frente a las concentraciones observadas en el episodio de junio de 2019. Como se indica en la Sección 4.4.1, las condiciones de Tramontana ocurrieron el viernes 28 y el sábado 29 (episodio en Barcelona), y la diferencia entre los niveles de  $O_3$  en estos dos días fue de  $\sim 100\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figura 11b). El viernes 28, hubo una influencia del área fuente "Sur" (principalmente de Tarragona), concentrada en las primeras horas de la mañana. Sin embargo, esta influencia no pareció afectar los niveles de  $O_3$  durante las horas centrales del día, como se indica por la ausencia de traza discernible en la ciudad en aquellas horas (Figura 12b). El sábado 29, las contribuciones de todas las fuentes, incluyendo "Norte", "Sur" y "Este", se combinaron (Figura 12b), dando como resultado el mayor aumento en  $O_3$  en el día del episodio en comparación con el día anterior entre los tres episodios. Las contribuciones estimadas acumulativas para el episodio de 2015, que incluyen  $\sim 15\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  del efecto fin de semana, contribuciones combinadas de "Sur" y "Este" de  $\sim 60\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , y la contribución de "Norte",  $\sim 20\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , suman  $\sim 95\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . Esta contribución, se alinea aproximadamente con el aumento observado entre el viernes 28 y el sábado 29 durante el episodio de 2019. Esta consistencia sugiere que las contribuciones estimadas para el episodio de 2015 podrían explicar efectivamente las contribuciones de  $O_3$  durante el episodio de 2019, dando respaldo a la validez de la metodología de estimación.

Es importante distinguir las contribuciones de  $O_3$  transportado desde las áreas fuente "Sur" y "Este", que, según la estimación anterior, suman aproximadamente  $\sim 60\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . En el episodio de agosto de 2018, las condiciones de Tramontana prevalecieron tanto el día antes del episodio (viernes 3) como en los dos días del episodio (sábado 4 y domingo 5), según se describe en la Sección 4.3.1. El viernes 3, donde las concentraciones alcanzaron  $120\text{--}130\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figura 7b), no existió convergencia multirregional (Figura 8b), ya que la contribución provinió únicamente

del área fuente "Norte" (en este caso, Toulouse). Sin embargo, el sábado 4, las concentraciones alcanzaron  $\sim 170\text{--}180\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figura 7b), con la ocurrencia de convergencia multirregional. Esto implicó contribuciones de una extensa área en Europa central (incluyendo Stuttgart, Praga, etc.), además de una contribución del área "Sur" (principalmente Tarragona) (Figura 8). La diferencia observada de  $\sim 50\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  en las concentraciones en superficie en Barcelona entre el viernes 3 y el fin de semana podría atribuirse a la suma de la contribución del efecto fin de semana ( $\sim 15\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ), la contribución del área "Sur" y una contribución multirregional "nueva", no proveniente del arco Marsella-Montpellier sino de Europa central. Dada la contribución observada del área "Norte" el viernes 3 (Figura 8), se asume una contribución adicional de  $\sim 5\text{--}10\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  para dar cuenta de esta contribución de Europa central. Considerando este ajuste, la contribución estimada del área "Sur" es de  $\sim 25\text{--}30\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . Restando esta contribución de la combinación "Sur" + "Este" ( $60\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) mencionada anteriormente, se puede atribuir una contribución de  $\sim 30\text{--}35\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  al área fuente "Este".

Estas estimaciones indican aportes elevados de  $\text{O}_3$  desde las áreas fuente mediterráneas "Sur" y "Este" con contribuciones algo menores pero significativas del "Norte", además de las atribuidas al efecto fin de semana:

- Norte (a través del Golfo de León):  $20\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
- Este (o fuentes interiores del Mediterráneo):  $30\text{--}35\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
- Sur (Tarragona y otras fuentes costeras mediterráneas españolas):  $25\text{--}30\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
- Efecto fin de semana:  $15\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Considerando los tres episodios, en los cuatro días de excesos extraordinarios en la ciudad, ocurrió consistentemente una confluencia de factores. Estos factores abarcan ocurrencia de fin de semana, convergencia multirregional que involucra masas de aire contaminado de al menos dos de las tres áreas fuente mencionadas anteriormente, y una situación meteorológica de Tramontana, entre otros.

## S5. Configuración del modelo fotoquímico

La configuración general del modelo puede encontrarse en Torre-Pascual et al. (2023) y las configuraciones específicas para este estudio, se detallan a continuación.

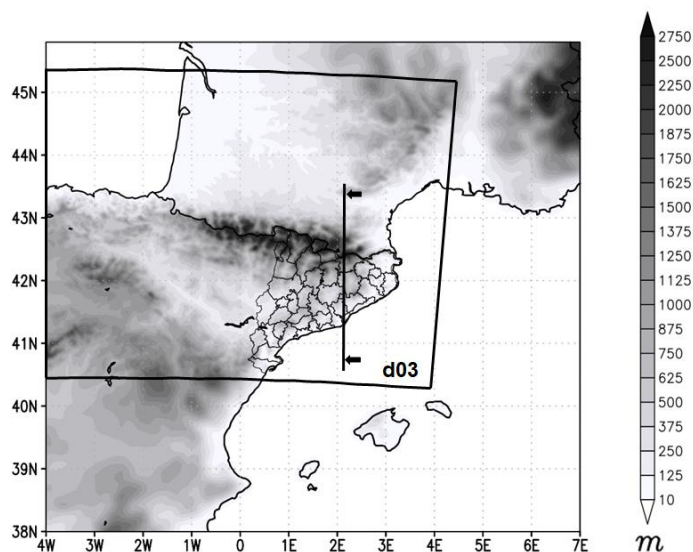


Figura S5.1. Cobertura espacial simulada mostrada en el informe principal dentro de d02 (9 km) -Península Ibérica- y vista parcial del dominio d03 (3 km) -Norte de la Península Ibérica- en su mapa topográfico. La línea muestra la extensión de la sección transversal atmosférica analizada en Barcelona.

Table S5.1. Niveles verticales definidos para la simulación WRF y correspondencia con los niveles de CAMx.

WRF level number	CAMx level number	WRF $\eta$ level	Approximate height of the CAMx layer interface AGL (m)
1	1	1	Surface
2	2	0.9975	20
3	3	0.9950	40
4	4	0.9925	60
5	5	0.9900	80
6	6	0.9875	100
7	7	0.9850	120
8	8	0.9800	150
9	9	0.9700	235
10	10	0.9550	355
11	11	0.9400	480
12	12	0.9250	590
13	13	0.9100	730
14	14	0.8950	850
15	15	0.8800	1000
16	16	0.8650	1100
17	17	0.8500	1250
18	18	0.8350	1400

19	19	0.8200	1500
20	20	0.8050	1650
21	21	0.7900	1800
22	22	0.7750	1900
23	23	0.7600	2000
24	24	0.7450	2200
25	25	0.7300	2400
26	26	0.7150	2500
27	27	0.7000	2700
28	28	0.6850	2800
29	29	0.6700	2950
30	30	0.6550	3100
31	31	0.6400	3300
32	32	0.6250	3500
33	33	0.6100	3650
34	34	0.5950	3800
35	35	0.5800	4000
36	36	0.5650	4150
37	37	0.5500	4300
38	38	0.5350	4500
39	39	0.5200	4700
40	40	0.5000	4900
41	41	0.4800	5200
42	42	0.4600	5500
43	43	0.4400	5750
44	44	0.4200	6000

Tabla S5.2. Resumen de las parametrizaciones de WRF

Parameter	Option
Shortwave Radiation	MM5 Shortwave radiation scheme (Dudhia, 1989)
Longwave Radiation	Rapid Radiative Transfer Model (RRTM) (Mlawer et al., 1997)
Surface Model	Noah LSM (Alapaty et al., 2008)
Microphysics	WSM6 (Hong & Lim, 2006)
PBL	Yonsei University (YSU) (Hong, Noh & Dudhia, 2006)
SST	OISST (Reynolds et al., 2007)

Tabla S5.3. Características espaciales de los dominios usados en WRF y CAMx

Domain	Spatial Resolution	WRF Number of grids	CAMx Number of grids
d01	27 km × 27 km	162 × 162	160 × 160
d02	9 km × 9 km	195 × 150	193 × 148
d03	3 km × 3 km	393 × 186	389 × 182



## S6. Validación de las simulaciones del modelo fotoquímico

En esta sección, se presentan los resultados de la validación del modelo fotoquímico. Para cada episodio, se ha cuantificado el desempeño de las simulaciones del modelo de concentración de  $O_3$  a nivel del suelo en comparación con las observaciones en estaciones de calidad del aire. Nuestro enfoque se centró en evaluar el rendimiento del modelo en el área de estudio, que incluye Barcelona y las áreas circundantes (ver Figura 1 del manuscrito principal). Hemos calculado los siguientes parámetros estadísticos, comúnmente utilizados: *Mean Bias (MB)*, *Mean Error (ME)*, *Index of Agreement (IOA)*, y *Pearson correlation coefficient (r)*, que se muestran en la Tabla S6.1., para el período de días de los episodios mostrados en el informe principal.

Tabla S6.1. Métricas estadísticas utilizadas para la validación del modelo fotoquímico.

Metrics for validation	Equation
Mean Bias (MB)	$\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (Model_i - Obs_i)$
Mean Error (ME)	$\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N  Model_i - Obs_i $
Root Mean Square Error (RMSE)	$\sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (Model_i - Obs_i)^2}$
Index of Agreement (IOA)	$1 - \frac{N \cdot RMSE^2}{\sum_{i=1}^N ( Model_i - \overline{Obs}  +  Obs_i - \overline{Obs} )^2}$
Pearson correlation coefficient (r)	$\frac{\sum_{i=1}^N (Model_i - \overline{Model}) \cdot (Obs_i - \overline{Obs})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (Model_i - \overline{Model})^2} \cdot \sqrt{\sum_{i=1}^N (Obs_i - \overline{Obs})^2}}$

Para cada episodio, se presenta un conjunto de figuras que muestran los resultados más significativos: la distribución espacial de los parámetros estadísticos para cada estación y los diagramas de violín (*violin plots*) que muestran su distribución.

La distribución y los valores de los parámetros estadísticos para los tres episodios son similares y se encuentran dentro de las métricas establecidas en otros estudios de modelización fotoquímica (Bessagnet et al., 2016; Oikonomakis et al., 2018). El *valor de r* para todas las estaciones fue de 0.75, 0.71 y 0.66 para los años 2015, 2018 y 2019, respectivamente; y el IOA mediano fue de 0.78, 0.76 y 0.79. El modelo CAMx tiende a subestimar las concentraciones de  $O_3$  en esta región, con valores medianos de *MB* de -3.81 (2015), -9.40 (2018) y -6.01 (2019). Sin embargo, observamos diferentes distribuciones espaciales en el MB. Las estaciones ubicadas en Barcelona, en el área urbana, muestran una subestimación más pronunciada, con valores de MB de hasta  $-40 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ . La baja resolución de las emisiones ( $0.1^\circ \times 0.1^\circ$ ) utilizadas en esta simulación hace que las emisiones urbanas de  $\text{NO}_x$  desde Barcelona se distribuyan homogéneamente sobre las celdas simuladas cerca de la ciudad. Por lo tanto, el modelo reproduce una mayor titración de  $O_3$ . Por el contrario, en las estaciones alrededor de Barcelona, el desempeño es significativamente mejor, con valores de MB más cercanos a cero y un ME menor.

Episodio 2015

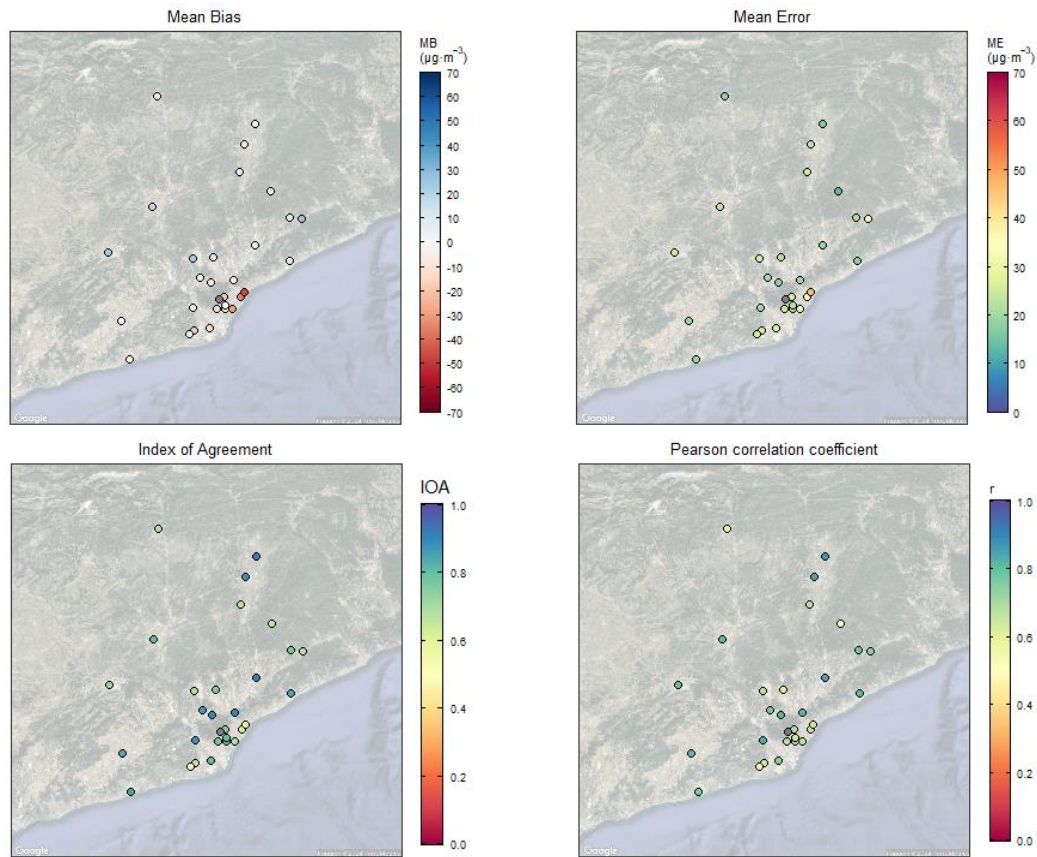


Figura S6.1. Distribución espacial de los valores de Mean Bias (MB), Mean Error (ME), Index of Agreement (IOA), y Pearson correlation coefficient (r) para el episodio de 2015.

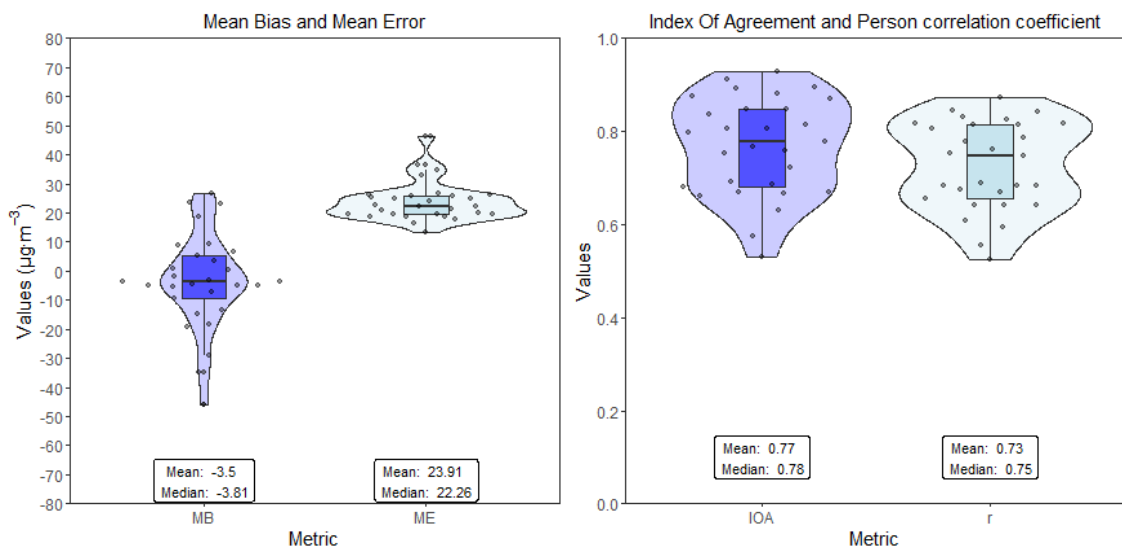


Figura S6.2. Diagramas “violin” o Violin plots para las métricas (MB, ME, IOA, y r) calculadas para las estaciones de calidad del aire en el episodio de 2015. Las cajas describen del primer al tercer cuartil y la línea horizontal dentro de las cajas representa la mediana. Los “bigotes” o whiskers se extienden hasta 1,5 veces el rango intercuartil. Cada punto representa una estación y las líneas curvas representan la forma de la distribución de los datos.

## Episodio 2018

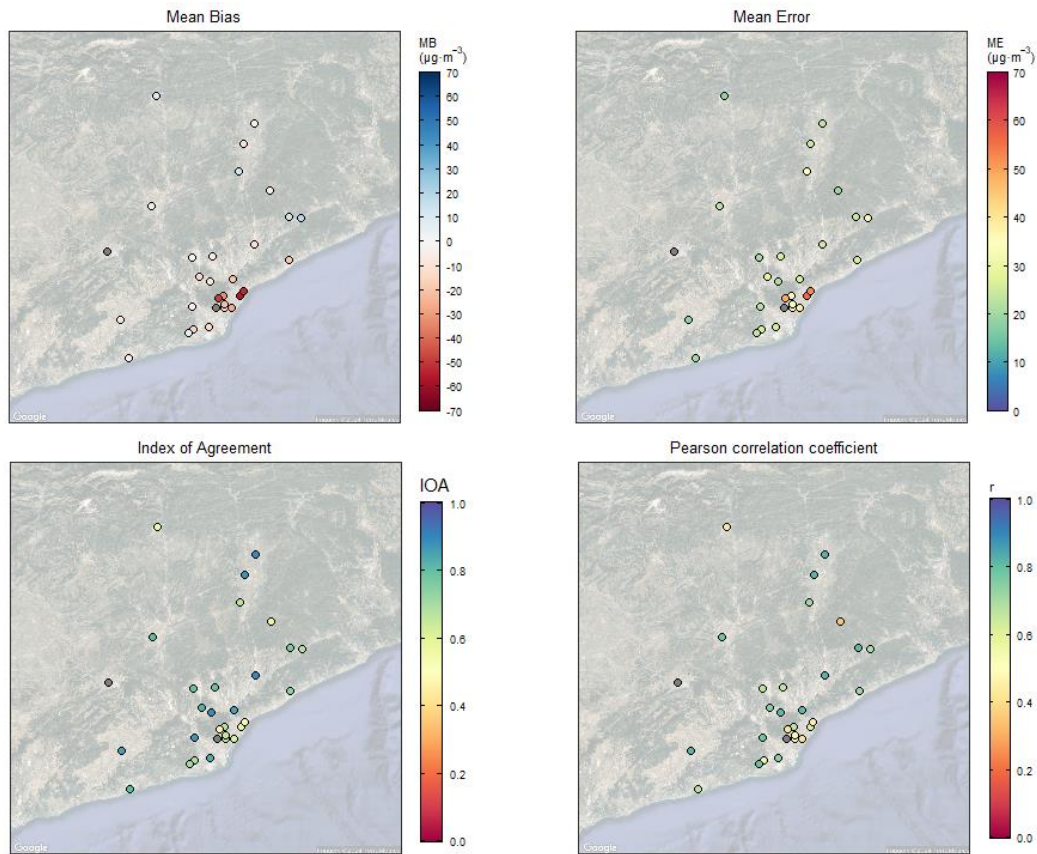


Figura S6.3. Distribución espacial de los valores de Mean Bias (MB), Mean Error (ME), Index of Agreement (IOA), y Pearson correlation coefficient (r) para el episodio de 2018.

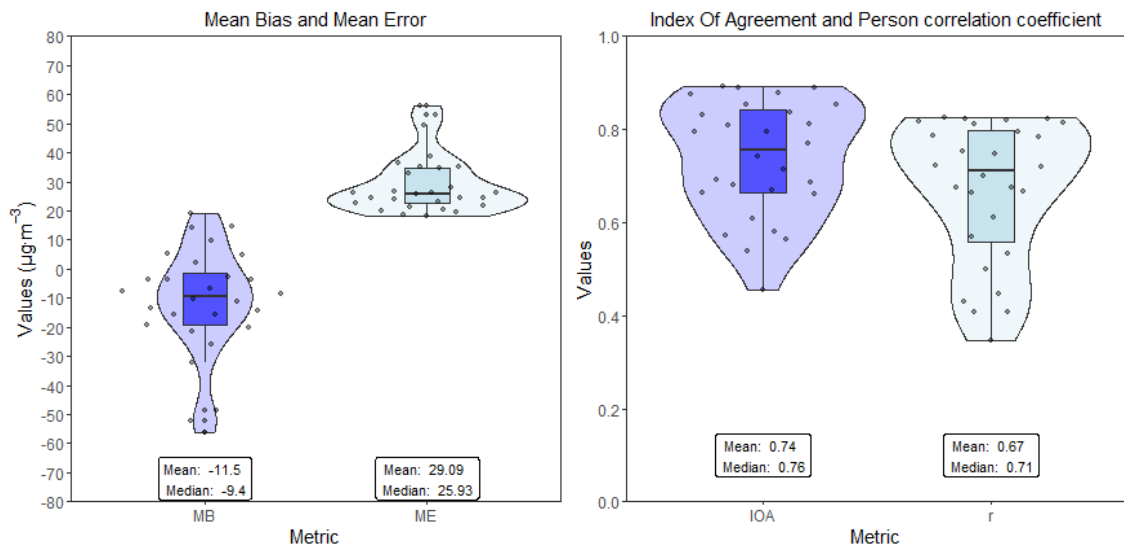


Figura S6.4. Diagramas “violin” o Violin plots para las métricas (MB, ME, IOA, y r) calculadas para las estaciones de calidad del aire en el episodio de 2018. Las cajas describen del primer al tercer cuartil y la línea horizontal dentro de las cajas representa la mediana. Los “bigotes” o whiskers se extienden hasta 1,5 veces el rango intercuartil. Cada punto representa una estación y las líneas curvas representan la forma de la distribución de los datos.

Episodio 2019

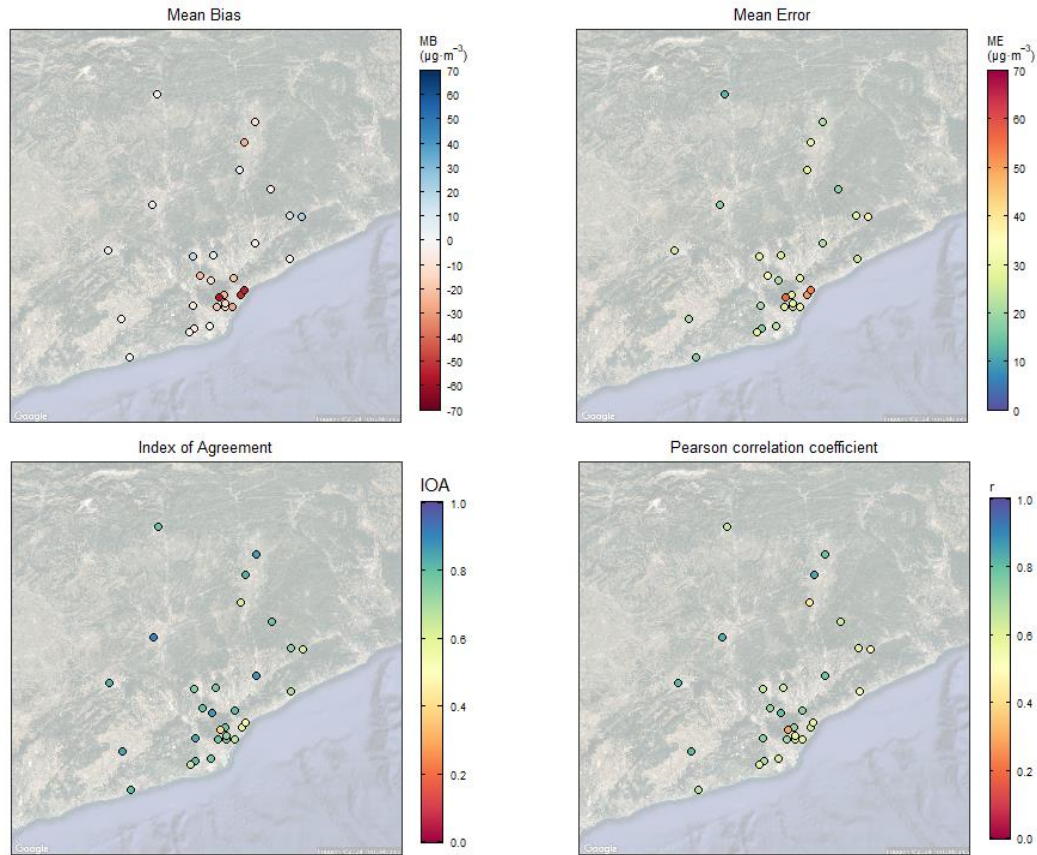


Figura S6.5. Distribución espacial de los valores de Mean Bias (MB), Mean Error (ME), Index of Agreement (IOA), y Pearson correlation coefficient ( $r$ ) para el episodio de 2019.

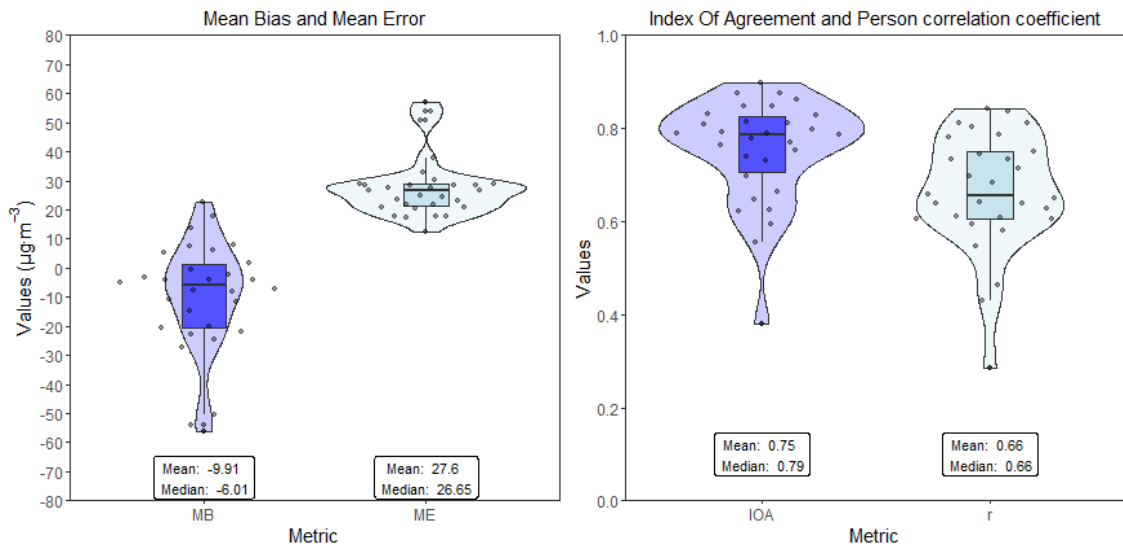


Figura S6.6. Diagramas “violin” o Violin plots para las métricas (MB, ME, IOA, y  $r$ ) calculadas para las estaciones de calidad del aire en el episodio de 2019. Las cajas describen del primer al tercer cuartil y la línea horizontal dentro de las cajas representa la mediana. Los “bigotes” o whiskers se extienden hasta 1,5 veces el rango intercuartil. Cada punto representa una estación y las líneas curvas representan la forma de la distribución de los datos.

## Referencias del material suplementario

Alapaty, K., Niyogi, D., Chen, F., Pyle, P., Chandrasekar, A., and Seaman, N.: Development of the Flux-Adjusting Surface Data Assimilation System for Mesoscale Models, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 47(9), 2331-2350, <https://doi.org/10.1175/2008JAMC1831.1>, 2008.

Bessagnet, B., Pirovano, G., Mircea, M., Cuvelier, C., Aulinger, A., Calori, G., et al.: Presentation of the EURODELTA III intercomparison exercise – evaluation of the chemistry transport models' performance on criteria pollutants and joint analysis with meteorology, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(19), 12667-12701, <https://doi.org/10.5194/acp-16-12667-2016>, 2016.

Dudhia, J.: Numerical Study of Convection Observed during the Winter Monsoon Experiment Using a Mesoscale Two-Dimensional Model, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 46(20), 3077-3107, [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1989\)046<3077:NSOCOD>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1989)046<3077:NSOCOD>2.0.CO;2), 1989.

Hong, S. and Lim, J.: The WRF Single-Moment 6-Class Microphysics Scheme (WSM6), *Journal of the Korean Meteorological Society*, 42, 129-151, 2006.

Hong, S.-Y., Noh, Y., and Dudhia, J.: A New Vertical Diffusion Package with an Explicit Treatment of Entrainment Processes, *Monthly Weather Review*, 134, 2318-2341, <http://dx.doi.org/10.1175/MWR3199.1>, 2006.

Mlawer, E. J., Taubman, S. J., Brown, P. D., Iacono, M. J., and Clough, S. A.: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102(D14), 16663-16682, <https://doi.org/10.1029/97JD00237>, 1997.

Oikonomakis, E., Aksoyoglu, S., Ciarelli, G., Baltensperger, U., and Prévôt, A. S. H.: Low modeled ozone production suggests underestimation of precursor emissions (especially NO<sub>x</sub>) in Europe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(3), 2175-2198, <https://doi.org/10.5194/acp-18-2175-2018>, 2018.

Reynolds, R. W., Smith, T. M., Liu, C., Chelton, D. B., Casey, K. S., and Schlax, M. G.: Daily high-resolution-blended analyses for sea surface temperature, *Journal of Climate*, 20, 5473–5496, <http://doi:10.1175/JCLI-D-14-00293.1>, 2007.

Torre-Pascual, E., Gangoiti, G., Rodríguez-García, A., Sáez de Cámara, E., Ferreira, J., Gama, C., Gómez, M. C., Zuazo, I., García, J. A., and de Blas, M.: Analysis of an intense O<sub>3</sub> pollution episode in the Atlantic Coast of the Iberian Peninsula using photochemical modelling: characterization of transport pathways and accumulation processes, *EGUsphere* [preprint], <https://doi.org/10.5194/egusphere-2023-387>, 2023