

15 AÑOS DE LA EVOLUCIÓN DEL MP_{2.5} EN SANTIAGO, CHILE: 1998 A 2012

Héctor Jorquera^{1,2}, Francisco Barraza^{3,5}, Fabrice Lambert^{3,5}, Ana María Villalobos¹, y Laura Gallardo^{4,5}

1 Departamento de Ingeniería Química y Bioprocesos, Pontificia Universidad Católica de Chile, Santiago, Chile

2 Centro de Desarrollo Urbano Sustentable (CEDEUS), Pontificia Universidad Católica de Chile, Santiago, Chile

3 Instituto de Geografía, Pontificia Universidad Católica de Chile, Santiago, Chile

4 Departamento de Geofísica, Universidad de Chile, Santiago, Chile

5 Centro de Ciencia del Clima y la Resiliencia (CR2), Universidad de Chile, Santiago, Chile

Los habitantes de Santiago, Chile han estado expuestos por décadas a altos niveles de contaminación atmosférica. Esto es una consecuencia de condiciones atmosféricas adversas a la dispersión de los contaminantes. La identificación de las principales fuentes que contribuyen al MP_{2.5}, así como su evolución temporal, son claves para poder diseñar estrategias de mejoría de la calidad del aire y para evaluar la efectividad de las políticas regulatorias implementadas en las últimas décadas. Aquí presentamos un análisis realizado en un sitio en el centro de Santiago, desde abril de 1998 a agosto de 2012, aplicando dos modelos de receptor (PMF 5 y UNMIX 6) a 1243 muestras diarias de MP_{2.5}. Ambos métodos encuentran seis fuentes principales. La solución hallada con PMF incluye las siguientes fuentes: vehículos motorizados (37.3±1.1%), fuentes industriales (18.5±1.3%), fundiciones de cobre (14.4±0.8%), combustión de leña (12.3±1.0%), fuentes costeras (9.5±0.7%), y polvo urbano (3.0±1.2%). Para los 15 años analizados, hallamos que cuatro fuentes disminuyeron sus aportes: vehículos motorizados: 21.3% [2.6, 36.5], fuentes industriales 39.3% [28.6, 48.4], fundiciones de cobre 81.5% [75.5, 85.9], y fuentes costeras 58.9% [38.5, 72.5]; la combustión de leña no cambió y el polvo urbano aumentó un 72% [48.9, 99.9]. Estos cambios son consistentes con las medidas implementadas en la ciudad: estándares de emisión más estrictos para vehículos, tecnologías más limpias para fundiciones, reducción del azufre en el diésel para vehículos, ingreso de gas natural en procesos industriales, mejorías en el transporte público, etc. Sin embargo, las mejorías esperadas han sido parcialmente canceladas por el incremento de los vehículos en la ciudad, que ahora son la mayor fuente emisora que aporta al MP_{2.5}. Todavía en Santiago se registran niveles de MP_{2.5} sobre el estándar chileno de 24 h, por lo que se necesita profundizar las regulaciones para poder cumplir con las normas de calidad del aire.

Abstract

The inhabitants of Santiago, Chile have been exposed to harmful levels of air pollutants for decades. The city's poor air quality is a result of steady economic growth, and stable atmospheric conditions adverse to mixing and ventilation that favor the formation of oxidants and secondary aerosols. Identifying and quantifying the sources that contribute to the ambient levels of pollutants is key for designing adequate mitigation measures. Estimating the evolution of source contributions to ambient pollution levels is also paramount to evaluating the effectiveness of pollution reduction measures that have been implemented over the past decades. Here, we quantify the main sources that have contributed to fine particulate matter (PM_{2.5}) between April 1998 and August 2012 in downtown Santiago by using two different source-receptor models (PMF 5.0 and UNMIX 6.0), that were applied to elemental measurements of 1243 24-hour filter samples of ambient PM_{2.5}. PMF resolved six sources that contributed to ambient PM_{2.5}, with UNMIX producing similar results: motor vehicles (37.3±1.1%), industrial sources (18.5±1.3%), copper smelters (14.4±0.8%), wood burning (12.3±1.0%), coastal sources (9.5±0.7%), and urban dust (3.0±1.2%). Our results show that over the 15 years analyzed here, four of the resolved sources significantly decreased [95% Confidence Interval]: motor vehicles 21.3% [2.6, 36.5], industrial sources 39.3% [28.6, 48.4], copper smelters 81.5% [75.5, 85.9], and coastal sources 58.9% [38.5, 72.5], while wood burning didn't significantly change, and urban dust increased by 72% [48.9, 99.9]. These changes are consistent with emission reduction measures, such as improved vehicle emission standards, cleaner smelting technology, introduction of low sulfur diesel for vehicles and natural gas for industrial processes, public transport improvements etc. However, it is also apparent that the mitigation expected from the above regulations has been partially offset by the increasing amount of private vehicle use in the city, with motor vehicles becoming the dominant source of ambient PM_{2.5} in recent years. Consequently, Santiago still experiences ambient PM_{2.5} levels above the annual and 24-hour Chilean and World Health Organization standards, and further regulations are required to reach ambient air quality standards.

1 Introducción

Santiago (33.5°S, 70.5°W, 500 m a.s.l.) es la mayor zona urbana de Chile, con una población actual de 7 millones de habitantes. Santiago se encuentra en una cuenca bordeada por una sierra costera al oeste (altitud ~ 1000 m a.s.l.) y la cordillera de los Andes al este (altura promedio ~ 4000 m a.s.l.). El clima de Santiago está controlado por la influencia de la alta presión subtropical del Pacífico, con inversiones térmicas persistentes. La circulación del viento está controlada por el calentamiento/enfriamiento del suelo del valle, generándose corrientes ascendentes en el día y descendentes de noche (Muñoz and Undurraga, 2010; Rutllant and Garreaud, 2004; Schmitz, 2005). Fenómenos sub-sinópticos (vaguadas costeras) intensifican la subsidencia (Rutllant and Garreaud, 1995), y están asociadas a episodios de contaminación en otoño e invierno (Gallardo et al., 2002; Saide et al., 2011). Toda la zona central de Chile también está afectada por la variabilidad de la oscilación de El Niño (ENSO), y a una variabilidad de más largo plazo conocida como la Oscilación Decadal del Pacífico (Garreaud et al., 2009). En los últimos 7, años esa zona ha estado afectada por un periodo prolongado de sequía vinculado al calentamiento global (Boisier et al., 2016; CR2, 2015). Todas las condiciones descritas favorecen la acumulación de emisiones en la cuenca de Santiago, así como la generación de contaminantes secundarios. Aunque no hay radiosondeo rutinario en Santiago, algunos estudios han presentado estimaciones de la altura de mezclado a partir de mediciones con un cielometro (Muñoz and Undurraga, 2010; Muñoz and Alcañuz, 2012); los datos muestran una marcada estacionalidad con bajos/altos valores para el invierno/verano australes, respectivamente, como consecuencia de las condiciones sinópticas descritas anteriormente.



Figura 1 Mapa de Santiago de Chile, con el área metropolitana indicada con un rectángulo rojo, el círculo amarillo la ubicación del monitor en Parque O'Higgins. Los triángulos rojos muestran las ubicaciones de las fundiciones de cobre cercanas a Santiago.

Las concentraciones ambientales de material particulado fino ($MP_{2.5}$) se han estado midiendo oficialmente en Santiago desde 1989 (<http://sinca.mma.gob.cl/>), siendo una de las redes con registro más extenso en el mundo (Jhun et al., 2013). La evolución de la contaminación medida en dicha red se ha analizado en términos de su contenido de información (Osses et al., 2013; Henríquez et al., 2015;) y mediante análisis de tendencias (Jorquera et al., 2004; Moreno et al., 2010; Mena-Carrasco et al., 2012; Jhun et al., 2013).

No obstante ese largo registro de datos, los estudios de la composición química del MP_{2.5} en Santiago han sido escasos, incluyendo solamente algunos meses o un año y los análisis de asignación de fuentes (*source apportionment*) se han realizado con distintas metodologías, lo que dificulta su comparación. En este trabajo presentamos un análisis de 15 años de mediciones ambientales de MP_{2.5} para Santiago.

Las altas concentraciones de MP_{2.5} se han asociado a problemas de salud en Santiago en estudios epidemiológicos locales (Pino et al., 2004; Cakmak et al., 2007; Valdes et al., 2012; González R. et al., 2013; Leiva G et al., 2013). Desde 1990, las autoridades han implementado numerosas medidas de abatimiento que han disminuido significativamente el MP_{2.5} (Mena-Carrasco et al., 2014; MMA, 2015). Estas medidas han incluido la remoción del plomo en la gasolina (fines de los '90), del azufre en el diésel para transporte e industria (5000 ppm en 1989 a 15 ppm para vehículos y 50 ppm para la industria en la actualidad), estándares más estrictos para vehículos motorizados (de EURO I a EURO III desde 2007, EURO IV desde 2012), modernización del transporte público, prohibición del uso de una fracción de los vehículos privados en días con alta contaminación, un programa obligatorio de inspección y mantenimiento de vehículos, programas de lavado y aspirado de calles, y estándares de emisión para fuentes de combustión (Sax et al., 2007; Moreno et al., 2010; Jhun et al., 2013; Villalobos et al., 2015).

Aunque el conjunto de políticas descritas han sido exitosas en reducir las concentraciones ambientales de MP_{2.5}, todavía los promedios anuales exceden la recomendación de la OMS de 10 µg/m³ (World Health Organization-WHO, 2005), y el estándar anual chileno de 20 µg/m³ vigente desde 2012 (MMA, 2012). Todavía ocurren episodios de contaminación que exceden la recomendación diaria de la OMS de 25 µg/m³ (WHO, 2005) así como el estándar diario chileno de 50 µg/m³. Estos episodios se concentran en otoño e invierno y duran varios días (Saide et al, 2011).

Los modelos de receptor son herramientas de análisis de datos ambientales que permiten identificar y cuantificar las principales fuentes que contribuyen a las concentraciones ambientales de MP_{2.5} en una cierta zona y en un periodo dado. En América Latina, se han publicado varios estudios en grandes ciudades como Ciudad de México (Mugica et al., 2002), Sao Paulo, Brasil (Andrade et al., 2012), Rio de Janeiro, Brasil (Andrade et al., 2012; Godoy et al., 2009), y Santiago de Chile (Jorquera and Barraza, 2012; Villalobos et al., 2015). Sin embargo, todos esos estudios han incluido solo 1-2 años y han usado distintos modelos de receptor, así que es difícil compararlos entre sí. Sin embargo, es posible concluir que el tráfico y la industria son los mayores contribuyentes al MP_{2.5} ambiental como se aprecia en la Tabla 1, mientras que la combustión de biomasa es relevante solo en algunas ciudades. La categoría 'otras fuentes' es relevante en muchas ciudades de la región y se puede atribuir a procesos de formación de MP_{2.5} orgánico e inorgánico más fuentes pequeñas como cocinado de alimentos, combustión de gas natural, carbón, etc. (WHO, 2017).

Los estudios de largo plazo permiten estimar la evolución de las mayores fuentes contribuyentes al MP_{2.5}, permitiendo evaluar la efectividad de las medidas sectoriales que se hayan implementado. Esta información es crítica para poder evaluar programas y recomendar nuevas regulaciones de reducción del MP_{2.5}. Sin embargo, para América Latina no se han publicado estudios de esa extensión temporal, antes del presente trabajo.

2 Objetivos

Las políticas de regulación en Santiago inicialmente no consideraron fuentes regionales tales como fundiciones de cobre, las cuales afectan también la calidad del aire en la ciudad (Gallardo et al., 2002; Olivares et al., 2002). Estas fuentes, así como las generadoras termoeléctricas se han regulado en las últimas dos décadas. El resultado es que ha cambiado la composición química del MP_{2.5} en Santiago, sin embargo, no se ha analizado esa evolución hasta la fecha.

En este estudio, se busca identificar las principales fuentes contribuyentes al MP_{2.5} en Santiago, usando la composición elemental de filtros de MP_{2.5} recolectados en un sitio central en la ciudad desde 1998 a 2012 (1243 muestras), analizar como esas fuentes han variado en el tiempo y cuanto ha contribuido cada una de ellas al MP_{2.5} en Santiago, y que tan efectivas han sido las políticas de regulación del MP_{2.5} en ese periodo.

3 Metodología

3.1 Estación de monitoreo

Las autoridades han recolectado muestras ambientales de $MP_{2.5}$ en Santiago usando filtros de Teflón de 37 mm de diámetro (Pall Flex) desde 1998 con la misma metodología de muestreo y análisis. Se usa un muestreador Low-Vol dicotómico (Anderson Instruments, Inc., Smyrna, GA) que opera a 15 L/min por 24 h, ubicado a 3 m sobre el nivel del suelo. La estación está ubicada en el interior del Parque O'Higgins, una zona central en la ciudad (Figura 1). Osses et al., (2013) han mostrado que es la estación más representativa de la zona urbana. De acuerdo a otros análisis (Gramsch et al., 2006; 2016.), la estación se considera un sitio de background urbano. Los datos de esta estación se han usado en varios análisis publicados anteriormente (Koutrakis et al., 2005; Sax et al., 2007; Moreno et al., 2010; Valdes et al., 2012). Para el presente estudio, un total de 1243 muestras diarias se recolectaron cada cuatro días desde Abril 1998 a Agosto 2012; la evolución de esas mediciones se muestra en la Figura 2.

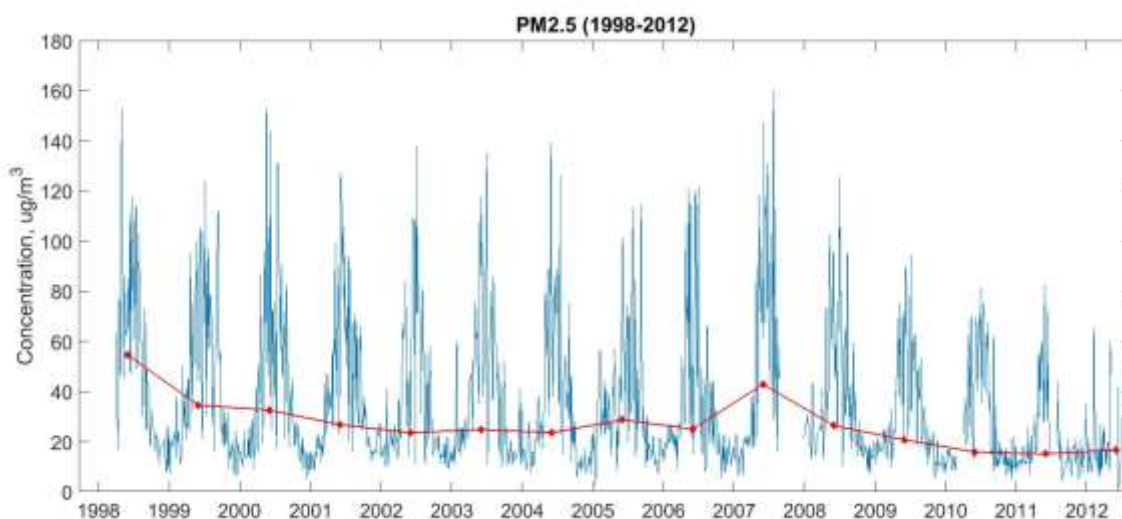


Figura 2 Evolución temporal de las concentraciones de $MP_{2.5}$ medidas en la estación de monitoreo Parque O'Higgins en Santiago centro. La línea roja muestra las medianas anuales.

2.2 Análisis de laboratorio

Todos los filtros (blancos y muestras) se almacenaron en condiciones de temperatura ($22\pm 3^\circ\text{C}$) y humedad relativa ($40\% \text{ HR} \pm 3\%$) constantes por al menos 24 h antes de pesarse. Los filtros se analizaron por fluorescencia de rayos X en el Desert Research Institute, Reno, NV, USA. Mantuvimos para el análisis todos los elementos que tenían más de un 75% de valores por sobre el límite de detección (LOD), calculados para cada elemento como tres veces la desviación estándar de los filtros blancos. Del total analizado, 12 elementos se usaron finalmente en el análisis: Al, Si, S, Cl, K, Ti, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, As.

2.3 Modelos de receptor

Los modelos de receptor son herramientas computacionales que permiten identificar y cuantificar las fuentes que contribuyen a la concentración ambiental en algún sitio de monitoreo (receptor) sin incluir datos meteorológicos ni tampoco inventarios de emisiones (Willis, 2000). En términos matemáticos, el problema se formula en términos de las contribuciones de p fuentes independientes a n especies químicas en una conjunto de m muestras (Hopke et al., 2006):

$$X_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (1)$$

Donde X_{ij} es la masa de especies 'j' medida en la muestra 'i', g_{ik} es el aporte a la concentración de la fuente 'k' en el día 'i', f_{kj} es la fracción en masa de la especie 'j' en la fuente 'k', e_{ij} es un término de error, y p es el número de fuentes independientes. En el presente estudio empleamos dos modelos desarrollados por la Environmental Protection Agency (U.S. EPA) para resolver (1). El primer método es Positive Matrix Factorization (PMF, versión 5) basado en análisis multivariado (Norris et al., 2014, Reff et al., 2007; Belis et al., 2013). El segundo método (UNMIX, versión 6), usa análisis de componentes principales (Henry, 2002; 2003, Norris et al., 2007). Al usar dos métodos diferentes se obtienen resultados más robustos.

2.4 Análisis de tendencias

Se usaron dos métodos para estimar tendencias en las contribuciones de fuentes al $MP_{2.5}$. Primero se usó una regresión robusta de las contribuciones en $\mu g/m^3$ (transformadas a logaritmos para estabilizar varianza) en función del tiempo. El segundo método detecta cambios abruptos en series de tiempo mediante un test de Mann-Whitney con ventanas temporales móviles de distinta duración (320, 480 y 650 días). Se comparan las medianas pasadas y futuras y se estima un valor p ; los valores bajos de p corresponden a diferencias significativas entre ambas mitades de datos, lo que implica un cambio significativo de las concentraciones entre esos dos periodos.

3 Resultados

3.1 Modelos de receptor

En la aplicación de los modelos de receptor solo consideramos 12 elementos: Al, Si, S, Cl, K, Ti, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn y As. Se descartaron Pb y Br debido a que se removió el plomo de la gasolina a partir del año 2000. Los elementos Cr, Ni, Cu y Zn se usaron como trazadores de emisiones de vehículos motorizados. Para usar un trazador de la quema de leña, usamos la concentración de potasio no asociada a polvo de suelo, calculada como $K_{ns} = K - 0.3 \cdot Fe$ y no consideramos K en los modelos. El coeficiente 0.3 se obtuvo de un gráfico de K versus F; esta metodología se ha usado antes para remover la contribución del polvo superficial del potasio total (Lewis et al., 2003)(Cohen et al., 2010). Ambos modelos entregaron una solución con seis factores y que explican un 74% de la variabilidad de la concentración ambiental del $MP_{2.5}$ (Figura 3). La mayor diferencia entre las soluciones es que UNMIX resuelve la combustión de petróleo como fuente única, usando Ni como trazador.

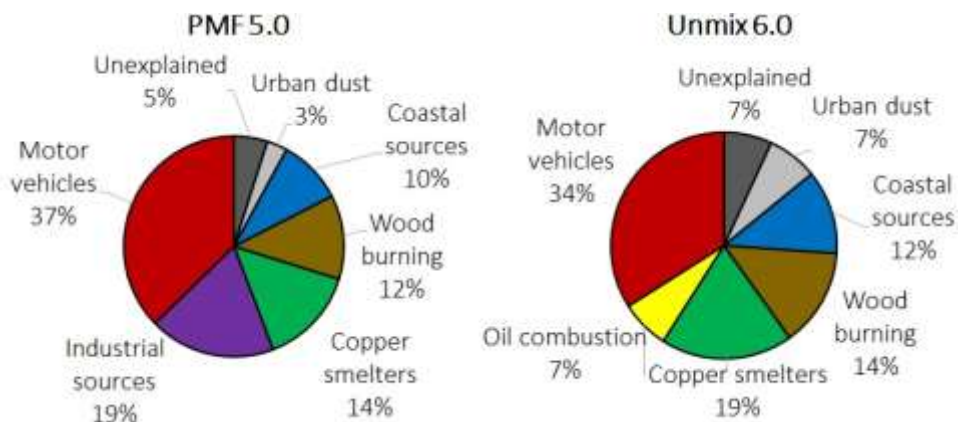


Figura 3 Contribuciones de fuente al $MP_{2.5}$ en Santiago, promedio 1998-2012 de acuerdo a los modelos PMF y UNMIX.

La primera fuente se identificó como vehículos motorizados, ya que contiene más del 50% del Cr, Cu y Zn, trazadores de emisiones del tráfico (Fujiwara et al., 2011). Esta fuente tiene un patrón semanal característico, con contribuciones que disminuyen a la mitad en fines de semana. La segunda fuente identificada corresponde a fuentes industriales; hay alto contenido de S (65.47%) formado a partir de las emisiones de SO₂ de dichas fuentes. Esta fuente no muestra variabilidad semanal, como se espera de un sector que opera en forma continua. La tercera fuente identificada corresponde a fundiciones de cobre. Contiene la mayoría del As (79%) e incluye trazadores relevantes tales como Cu (21.4 %) y S (18.9%), encontrados en un estudio previo en Santiago (Jorquera and Barraza 2012). No hay diferencia significativa entre días laborales y fines de semana ($p=0.827$), lo que es consistente con la operación continua de las fundiciones. La cuarta fuente identificada corresponde a quema de leña. Contiene más del 70% del potasio no proveniente del suelo (Kns). Esta fuente tiene una marcada estacionalidad anual y semanal; las contribuciones en invierno son 5 veces mayores que las del verano y el ratio día laboral/fin de semana de las contribuciones es 0.74 ($p=8.28 \times 10^{-5}$). La quinta fuente identificada se denominó ‘fuentes costeras’, y corresponden a aerosoles que llegan a Santiago provenientes desde la costa. Esta fuente contiene el 90% del Cl, indicando presencia de sal de mar, como ya se ha encontrado previamente (Jorquera and Barraza, 2012). Esta fuente también contiene elementos de origen industrial tales como Ni (8.6%), Zn (9.9%) y As (4.7%), lo que se explica por las fuentes industriales ubicadas en la costa, a 120 km al oeste de Santiago (Figura 1). Esta fuente no tiene estacionalidad semanal ($p=0.251$), como se espera de fuentes industriales o naturales. Finalmente, la sexta fuente se identificó como polvo urbano; contiene la mayor cantidad de Al, Si y Ti con ratios característicos de material geológico (Malm et al., 1994). Esta fuente presenta contribuciones significativamente mayores en días laborales ($p=3.53 \times 10^{-4}$), lo que se explica por la resuspensión de polvo de calles por el paso de vehículos motorizados. Los resultados de UNMIX son similares a los de PMF y ambos se presentan en la Figura 3 en forma de gráficos de aportes porcentuales. A continuación se presenta la evolución temporal de las contribuciones de las fuentes resueltas por PMF.

3.2 Evolución de las contribuciones de fuentes

3.2.1 Vehículos Motorizados

En la Figura 4 se muestra la evolución temporal de la contribución de los vehículos motorizados. En los 15 años de análisis, esa contribución disminuyó en 2.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, $p=0.0250$ (21.3%, 95% CI [2.6%, 36.5%]). Esta disminución se explica por las distintas políticas de regulación sectorial: restricciones a la circulación de los vehículos privados desde la década de los ‘80s (Moreno et al., 2010), convertidores catalíticos para vehículos a gasolina desde 1991 (Koutrakis et al., 2005), reducción del contenido de azufre y plomo en gasolinas, implementación de autopistas urbanas concesionadas y la implementación del sistema de transporte público Transantiago entre 2007 y 2010 (Muñoz et al., 2014).

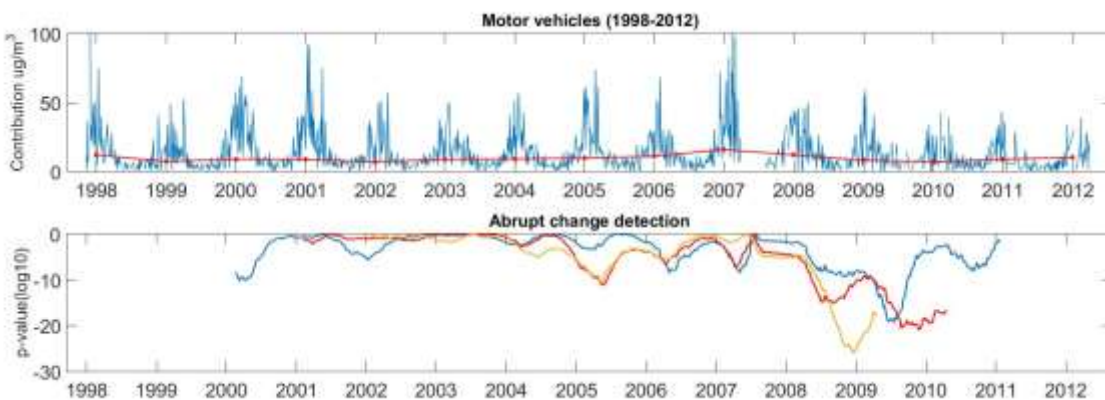


Figura 2 Panel superior: serie cronológica de las contribuciones de vehículos motorizados al MP_{2.5} y las medianas anuales en rojo. Panel inferior: valor p de un test de Mann-Whitney comparando las medianas de ambos lados de una ventana móvil de distinta duración (320, 480 y 640 días en azul, rojo y amarillo, respectivamente).

3.3.2 Fuentes Industriales

La Figura 5 muestra la evolución de los aportes de las fuentes industriales. Esta categoría de fuentes redujo sus aportes entre 1998 y 2012 en $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $p=1.1 \times 10^{-9}$ (39.3%, 95% CI [28.6, 48.4%]). Esta mejoría se debe a la reducción del azufre en los combustibles industriales (Jhun et al., 2013), reducciones en las emisiones industriales (Mena-Carrasco et al., 2014), y el cambio de diesel a gas natural en la industria (MMA 2015).

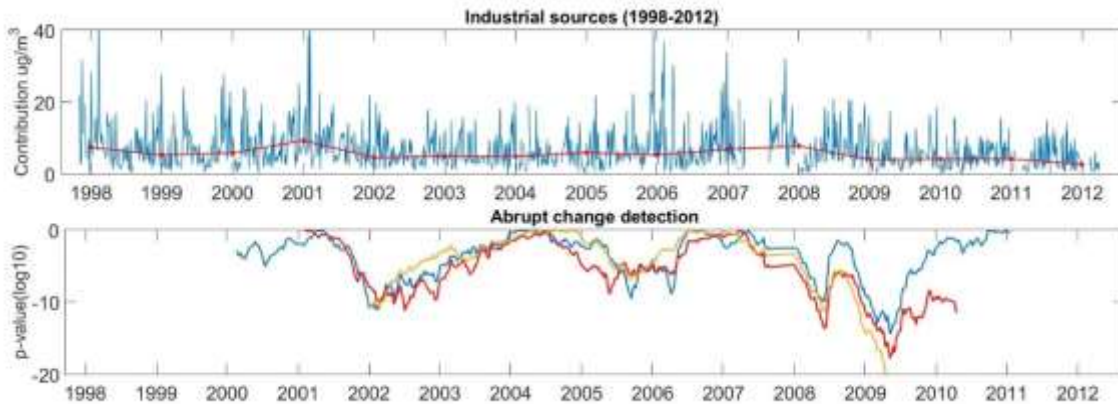


Figura 3 Igual a la Figura 4 pero para las contribuciones de las fuentes industriales.

3.3.3 Fundiciones de cobre

La Figura 6 muestra como variaron en el tiempo los aportes de las fundiciones de cobre. Esta fuente es la que presenta una mayor reducción en 15 años, con $5.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $p=0.82 \times 10^{-33}$ (81.5%, 95% CI [75.8%, 85.9%]). Esta reducción se atribuye a las mejoras tecnológicas en las fundiciones de cobre cercanas a Santiago (see figure 1), las que redujeron las emisiones de SO_2 de 700 kton en 1999 a 100 kton en 2003 (CODELCO, 2015; Montezuma, 2016). Posteriormente la fundición Ventanas redujo las emisiones de SO_2 de 20.3 kton en 2009 a 4.7 kton en 2012, mientras que las de la fundición Caletones bajaron de 141 kton en 2009 a 50 kton en 2012 (Montezuma, 2016).

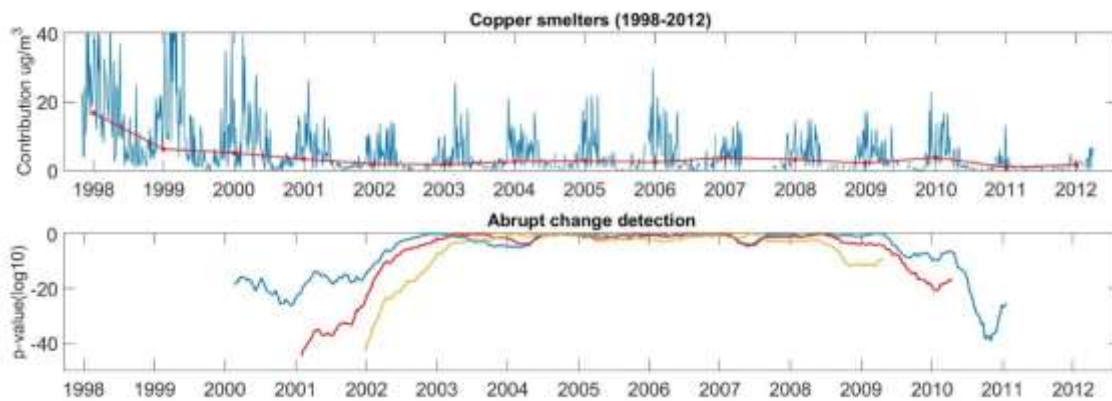


Figura 4 Igual a la Figura 4 pero para las contribuciones de las fundiciones de cobre.

3.3.4 Quema de leña

La Figura 7 muestra la evolución temporal del aporte por quema de leña. Esta es la única fuente que no muestra un cambio significativo para el periodo 1998-2012: $0.43 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $p=0.139$ (12.8%, 95% CI [-4.9%, 27.6%]). Estos resultados indican que las medidas implementadas no han sido efectivas en el periodo 1998-2012 para reducir ese aporte al $\text{MP}_{2.5}$. Mena-Carrasco et al (2012) sugirieron reemplazar las estufas a leña por calefactores a gas como una manera costo-efectiva de reducir la contaminación; ellos estimaron una reducción de $2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ si el cambio de estufas fuera completo. Esa cifra representa el 50% de nuestra estimación del aporte de quema de leña al $\text{MP}_{2.5}$ en Santiago.

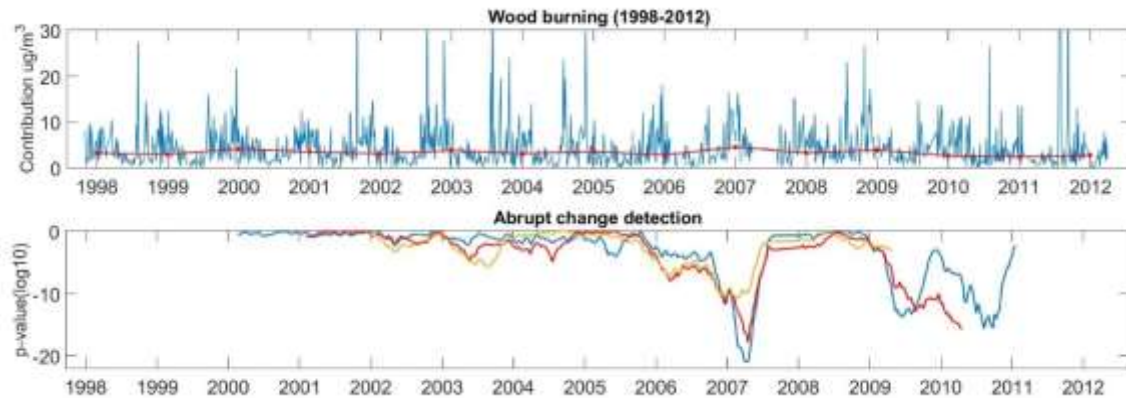


Figura 5 Igual a la Figura 4 pero para las contribuciones de la quema de leña.

3.3.5 Fuentes costeras

La Figura 8 muestra la evolución de las contribuciones de las fuentes costeras. Esta fuente es una mezcla de aerosol marino y emisiones de las industrias costeras (incluyendo puertos). Esta fuente presenta una reducción significativa de $1.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $p=0.88 \times 10^{-5}$ (58.9%, 95% CI [38.5%, 72.5%]), la que atribuimos exclusivamente a las fuentes industriales, ya que asumimos que el aerosol marino no cambia en el periodo analizado.

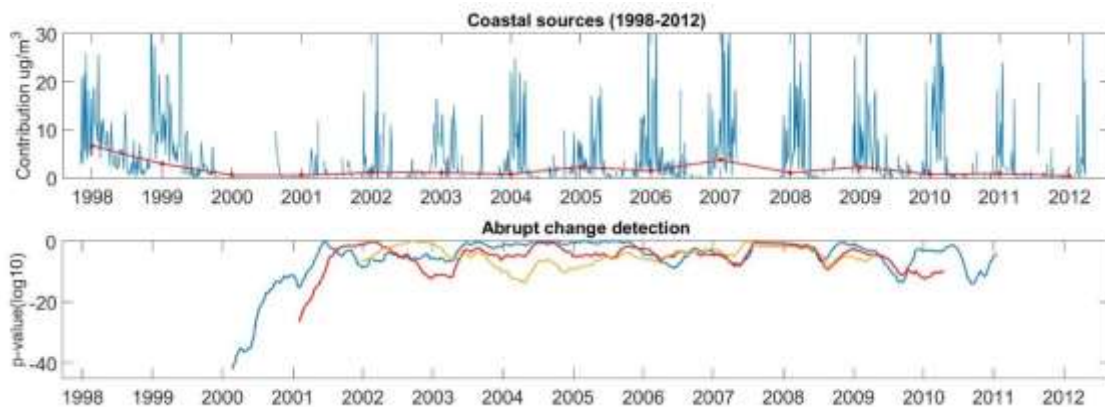


Figura 6 Igual a la Figura 4 pero para las contribuciones de fuentes costeras.

3.3.6 Polvo urbano

La Figura 9 muestra el cambio en el tiempo de la contribución del polvo urbano. Esta es la única fuente que ha incrementado su contribución de manera significativa en $0.49 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $p = 0.26 \times 10^{-12}$ (72.6%, 95% CI [48.9%, 99.9%]) entre 1998 y 2012. Este aumento se atribuye a la mayor cantidad de vehículos motorizados en las calles y al efecto de una sequía prolongada en los últimos 5 años del periodo estudiado.

En la Tabla 2 se resumen los principales cambios en las contribuciones de cada fuente y la regulación o evento específico que postulamos causó cada uno de dichos cambios.

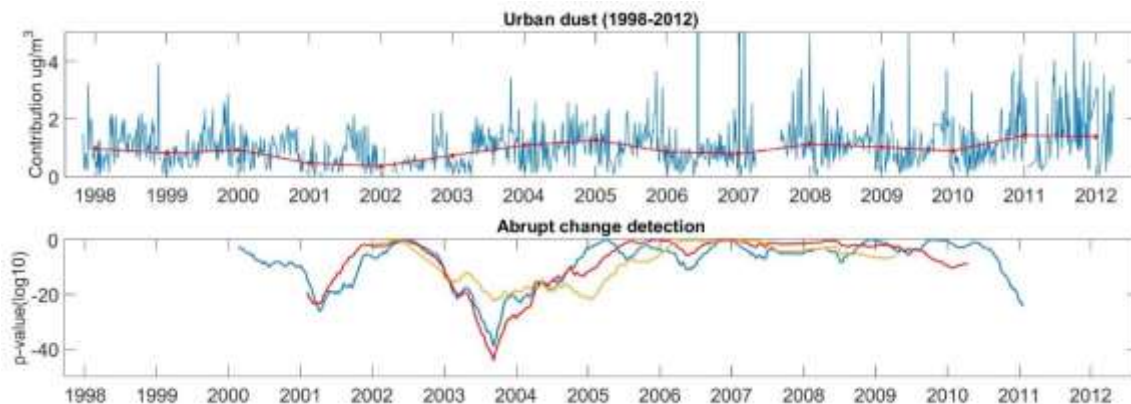


Figura 7 Igual a la Figura 4 pero para las contribuciones del polvo urbano.

4. Conclusiones

Se aplicaron dos modelos de receptor (PMF 5.0 y UNMIX 6.0) a una base de datos de 15 años de mediciones ambientales de $\text{MP}_{2.5}$ realizadas en filtros (1243 muestras) recolectados en un sitio central en Santiago de Chile. Ambos modelos identifican seis fuentes principales que contribuyen al $\text{MP}_{2.5}$: vehículos motorizados, fuentes industriales, fundiciones de cobre, quema de leña, fuentes costeras, y polvo urbano. Los modelos entregan también la evolución temporal de cada una de esas fuentes entre 1998 y 2012. Cinco de las seis fuentes identificadas muestran estacionalidad, con mayores concentraciones en otoño e invierno, cuando ocurren los episodios de mayores concentraciones ambientales de $\text{MP}_{2.5}$.

Durante los 15 años analizados en este estudio (1998-2012), varias regulaciones de calidad del aire fueron implementadas por las autoridades. Las medidas más exitosas fueron las dirigidas a la industria, especialmente la regulación de fundiciones de cobre, más la introducción de combustibles más limpios. Las fundiciones de cobre, fuentes costeras y fuentes industriales redujeron sus contribuciones en $5.24 (\pm 1.38)$, $1.48 (\pm 0.51)$, y $2.63 (\pm 0.71) \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectivamente, o bien 82%, 39% y 59%, respectivamente, de 1998 a 2012.

Los vehículos motorizados redujeron su aporte a $2.17 (\pm 1.91) \mu\text{g}/\text{m}^3$ (21.3%) en el periodo completo. Aunque la flota de vehículos se ha modernizado con estándares de emisión más estrictos, el rápido crecimiento del parque de automóviles privados ha cancelado parte de las ganancias conseguidas con esos estándares de emisión más estrictos. Así, el desafío a futuro es promover cambios de hábito para que los habitantes prefieran el transporte público o no motorizado en vez del auto particular, lo que requiere un mejor servicio y cobertura del transporte público.

El polvo urbano (una mezcla de polvo geológico y polvo resuspendido de calles por el tráfico) es la única fuente que ha aumentado su contribución al $\text{MP}_{2.5}$. Este aumento se puede atribuir al incremento en vehículos motorizados en la ciudad, combinado con condiciones de sequía desde el año 2010. En todo caso, su contribución al $\text{MP}_{2.5}$ es secundaria ($< 1.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ o $< 10\%$ del total del $\text{MP}_{2.5}$) el año 2012.

No se encontraron cambios significativos en el aporte de la quema de leña. Esta fuente es relevante en la época fría cuando su contribución sube hasta el 30 % del MP_{2.5}. Por tanto, se necesitan medidas para reducir esas emisiones y mejorar la calidad del aire en invierno. Sin embargo, reducir el consumo residencial de leña es complejo: hay tradiciones culturales y percepciones erróneas del riesgo que constituyen barreras para el cambio de hábitos en las viviendas (Hine et al. 2007; Reeve et al. 2013).

Aunque las medidas regulatorias han sido exitosas en mejorar la calidad del aire en las últimas décadas, los habitantes de Santiago siguen estando expuestos a concentraciones de MP_{2.5} que exceden los estándares nacionales y las recomendaciones de la OMS, tanto en base anual como diariamente. Los resultados aquí presentados indican que los esfuerzos se deberían concentrar en las fuentes móviles y las residenciales, aunque sin descuidar la regulación industrial.

5 Reconocimientos

El apoyo para este trabajo fue provisto por los proyectos FONDECYT 3160639 y 1151427, FONDAP 15110009 and 15110020, y el Anillo ACT1410. Agradecemos al Ministerio del Medio Ambiente por proveer la base de datos de los análisis de filtros.

6 Referencias bibliográficas

- Artaxo, P., 1998. Aerosol characterization study in Santiago de Chile Wintertime 1998: Technical report for the National Commission of the Environment. Santiago, Chile.
- Artaxo, P., 1996. Aerosol source apportionment at Santiago Chile Winter 1996: technical report for the National Commission of the Environment, Santiago, Chile.
- Artaxo, P., Oyola, P., Martinez, R., 1999. Aerosol composition and source apportionment in Santiago de Chile. Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms 150, 409–416.
- Belis, C.A.A., Karagulian, F., Larsen, B.R.R., Hopke, P.K.K., 2013. Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe. Atmos. Environ. 69, 94–108. doi:10.1016/j.atmosenv.2012.11.009
- Boisier, J.P., Rondanelli, R., Garreaud, R.D., Muñoz, F., 2016. Anthropogenic and natural contributions to the Southeast Pacific precipitation decline and recent megadrought in central Chile. Geophys. Res. Lett. 43, 413–421. doi:10.1002/2015GL067265
- Cakmak, S., Dales, R., Blanco, C., 2007. Air Pollution and Mortality in Chile: Susceptibility among the Elderly. Environ. Health Perspect. 115, 524–527. doi:10.1289/ehp.9567
- CMM, 2014. Propuesta de regulaciones para la reducción del MP_{2.5}, sus cambios precursores y contaminantes que afecten al cambio climático, para las distintas fuentes estacionarias de la Región Metropolitana, Santiago, Chile.
- CMM-MMA, 2011. Análisis de Tendencia Para Material Particulado en la Región Metropolitana (2008-2010). Santiago, Chile.
- CODELCO, 2015. Memoria anual 2014, Corporación Nacional del Cobre Chileno, Chile.
- Cohen, D.D., Crawford, J., Stelcer, E., Bac, V.T., 2010. Characterisation and source apportionment of fine particulate sources at Hanoi from 2001 to 2008. Atmos. Environ. 44, 320–328. doi:10.1016/j.atmosenv.2009.10.037
- CR2, 2015. Informe a la Nación La megasequía 2010-2015: Una lección para el futuro (in Spanish). Rep. 28 pp. Center for Climate and Resilience Research (CR2). Santiago, Chile.

- Doug Brugge, D. Durant, J.L., Rioux C., 2007. Near-highway pollutants in motor vehicle exhaust: A review of epidemiologic evidence of cardiac and pulmonary health risks. *Environmental Health* 2007, 6:23. doi:10.1186/1476-069X-6-23.
- Figueroa, E., Gómez-Lobo, A., Jorquera, P., Labrín, F., 2013. Develando econométricamente los impactos sobre la concentración atmosférica de material particulado de un proyecto de remodelación del transporte urbano: El caso del Transantiago en Chile. *Estud. Econ.* 40, 53–79. doi:10.4067/S0718-52862013000100003
- Fujiwara, F., Rebagliati, R.J., Dawidowski, L., Gómez, D., Polla, G., Pereyra, V., Smichowski, P., 2011. Spatial and chemical patterns of size fractionated road dust collected in a megacity. *Atmos. Environ.* 45, 1497–1505.
- Gallardo, L., Olivares, G., Langner, J., Arrhus, B., 2002. Coastal lows and sulphur air pollution in Central Chile. *Atmos. Environ.* 36, 3829–3841.
- Garreaud, R.D., Vuille, M., Compagnucci, R., Marengo, J., 2009. Present-day South American climate. *Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol.* 281, 180–195. doi:10.1016/j.palaeo.2007.10.032
- Godoy, M.L.D.P., Godoy, J.M., Roldão, L.A., Soluri, D.S., Donagemma, R.A., 2009. Coarse and fine aerosol source apportionment in Rio de Janeiro, Brazil. *Atmos. Environ.* 43, 2366–2374. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.12.046
- González R., N., Torres-Avilés, F., Carrasco P., E., Salas P., F., Pérez B., F., 2013. Estudio temporal de diabetes mellitus tipo 1 en Chile: Asociación con factores ambientales durante el período 2000-2007. *Rev. Med. Chil.* 141, 595–601. doi:10.4067/S0034-98872013000500007
- Gramsch, E., Cereceda-Balic, F., Oyola, P., Vonbaer, D., 2006. Examination of pollution trends in Santiago de Chile with cluster analysis of PM10 and Ozone data. *Atmos. Environ.* 40, 5464–5475. doi:10.1016/j.atmosenv.2006.03.062
- Gramsch, E., Reyes, F., Vásquez, Y., Oyola, P., Rubio, A.M., 2016. Prevalence of Freshly Generated Particles during Pollution Episodes in Santiago de Chile. *Aerosol Air Qual. Res.* 16, 2172–2185. doi:10.4209/aaqr.2015.12.0691
- Hedberg, E., Gidhagen, L., Johansson, C., 2005. Source contributions to PM10 and arsenic concentrations in Central Chile using positive matrix factorization. *Atmos. Environ.* 39, 549–561. doi:10.1016/j.atmosenv.2004.11.001
- Henriquez, A., Osses, A., Gallardo, L., Diaz, M., 2015. Analysis and optimal design of air quality monitoring networks using a variational approach. *Tellus Ser. B-Chemical Phys. Meteorol.* 67, 1–13. doi:10.3402/tellusb.v67.25385
- Henry, R.C., 2003. Multivariate receptor modeling by N -dimensional edge detection. *Chemom. Intell. Lab. Syst.* 65, 179–189.
- Henry, R.C., 2002. Multivariate receptor models — current practice and future trends. *Chemom. Intell. Lab. Syst.* 60, 43–48.
- Hopke, P.K., Ito, K., Mar, T., Christensen, W.F., Eatough, D.J., Henry, R.C., Kim, E., Laden, F., Lall, R., Larson, T. V., Liu, H., Neas, L., Pinto, J., Stolzel, M., Suh, H., Paatero, P., Thurston, G.D., 2006. PM source apportionment and health effects: 1. Intercomparison of source apportionment results. *J. Expo. Sci. Environ. Epidemiol.* 16, 275–286.
- Jhun, I., Oyola, P., Moreno, F., Castillo, M.A., Koutrakis, P., 2013. PM2.5 mass and species trends in Santiago, Chile, 1998 to 2010: The impact of fuel-related interventions and fuel sales The impact of fuel-related interventions and fuel sales. *J. Air Waste Manage. Assoc.* 63, 161–169. doi:10.1080/10962247.2012.742027
- Jorquera, H., Barraza, F., 2013. Source apportionment of PM10 and PM2.5 in a desert region in northern Chile. *Sci. Total Environ.* 444, 327–335. doi:10.1016/j.scitotenv.2012.12.007

- Jorquera, H., Barraza, F., 2012. Source apportionment of ambient PM_{2.5} in Santiago, Chile: 1999 and 2004 results. *Sci. Total Environ.* 435–436, 418–429. doi:10.1016/j.scitotenv.2012.07.049
- Jorquera, H., Orrego, G., Castro, J., Vesovic, V., 2004. Trends in air quality and population exposure in Santiago, Chile, 1989–2001. *Int. J. Environ. Pollut.* 22, 507–530. doi:10.1504/IJEP.2004.005684
- Kavouras, I.G., Koutrakis, P., Cereceda-Balic, F., Oyola, P., 2001. Source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} in five Chilean cities using factor analysis. *J. Air Waste Manag. Assoc.* 51, 451–464.
- Koutrakis, P., Sax, S.N., Sarnat, J. a, Coull, B., Demokritou, P., Oyola, P., Garcia, J., Gramsch, E., 2005. Analysis of PM₁₀, PM_{2.5}, and PM_{2.5-10} concentrations in Santiago, Chile, from 1989 to 2001. *J. Air Waste Manag. Assoc.* 55, 342–351. doi:10.1080/10473289.2005.10464627
- Leiva G, M.A., Santibañez, D.A., Ibarra E, S., Matus C, P., Seguel, R., 2013. A five-year study of particulate matter (PM_{2.5}) and cerebrovascular diseases. *Environ. Pollut.* 181, 1–6. doi:10.1016/j.envpol.2013.05.057
- Lewis, C.W., Norris, G. a, Conner, T.L., Henry, R.C., 2003. Source apportionment of Phoenix PM_{2.5} aerosol with the Unmix receptor model. *J. Air Waste Manag. Assoc.* 53, 325–338. doi:10.1080/10473289.2003.10466155
- Malm, W.C., Sisler, J.F., Huffman, D., Eldred, R.A., Cahill, T.A., Malm, C Sisler, James F Cahill, A., 1994. Spatial and seasonal trends in particle concentration and optical extinction in the United States. *J. Geophys. Res.* 99, 1347–1370. doi:10.1029/93JD02916
- Mena-Carrasco, M., Oliva, E., Saide, P., Spak, S.N., De la Maza, C., Osses, M., Tolvett, S., Campbell, J.E., Tsao, T. es C., Molina, L.T., 2012. Estimating the health benefits from natural gas use in transport and heating in Santiago, Chile. *Sci. Total Environ.* 429, 257–265. doi:10.1016/j.scitotenv.2012.04.037
- Mena-Carrasco, M., Saide, P., Delgado, R., Hernandez, P., Spak, S., Molina, L., Carmichael, G., Jiang, X., 2014. Regional climate feedbacks in Central Chile and their effect on air quality episodes and meteorology. *Urban Clim.* 10, 771–781. doi:10.1016/j.uclim.2014.06.006
- Minsegres, 1998. Plan de descontaminación para el área circundante a la fundición de Caletones de la división el teniente de Codelco Chile. Chile.
- MMA, 2015. Ministerio del Medio Ambiente - Anteproyecto del plan de prevención y descontaminación atmosférica para la región metropolitana de Santaigo. Santiago, Chile.
- MMA, 2012. Norma primaria de calidad ambiental para el material particulado fino respirable. Chile.
- Montezuma, A.I., 2016. Inversiones y exigencias ambientales en las fundiciones estatales de cobre chilenas: 1990–2014 - Master thesis. Pontificia Universidad Católica de Chile, Santaigo, Chile.
- Moreno, F., Gramsch, E., Oyola, P., Rubio, M.A., 2010. Modification in the soil and traffic-related sources of particle matter between 1998 and 2007 in Santiago de Chile. *J. Air Waste Manage. Assoc.* 60, 1410–1421. doi:10.3155/1047-3289.60.12.1410
- Mugica, V., Watson, J., Vega, E., Reyes, E., Ruiz, M.E., Chow, J., 2002. Receptor model source apportionment of nonmethane hydrocarbons in Mexico City. *ScientificWorldJournal.* 2, 844–60. doi:10.1100/tsw.2002.147
- Muñoz, J.C., Batarce, M., Hidalgo, D., 2014. Transantiago, five years after its launch. *Res. Transp. Econ.* 48, 184–193. doi:10.1016/j.retrec.2014.09.041
- Muñoz, R.C., Undurraga, A. a., 2010. Daytime mixed layer over the Santiago Basin: Description of two years of observations with a lidar ceilometer. *J. Appl. Meteorol. Climatol.* 49, 1728–1741.

- Norris, G., Duvall, R., Brown, S., Bai, S., 2014. EPA-Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide. U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC.
- Norris, G., Vandantham, R., Duvall, R., Henry, R.C., 2007. EPA Unmix 6.0 Fundamentals & User Guide. U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC.
- Osses, A., Gallardo, L., Faundez, T., 2013. Analysis and evolution of air quality monitoring networks using combined statistical information indexes. *Tellus Ser. B-Chemical Phys. Meteorol.* 65, 1–17.
- Pino, P., Walter, T., Oyarzun, M., Villegas, R., Romieu, I., 2004. Fine particulate matter and wheezing illnesses in the first year of life. *Epidemiology* 15, 702–708.
- Reff, A., Eberly, S.I., Bhave, P. V., 2007. Receptor modeling of ambient particulate matter data using positive matrix factorization: review of existing methods. *J. Air Waste Manage. Assoc.* 57, 146–154.
- Rojas, C.M., Artaxo, P., Van Grieken, R., Grieken, R. Van, 1990. Aerosols in Santiago de Chile: A study using receptor modeling with X-ray fluorescence and single particle analysis. *Atmos. Environ. B.Urban Atmos.* 24, 227–241. doi:10.1016/0957-1272(90)90028-S
- Rutllant, J., Garreaud, R., 2004. Episodes of Strong Flow down the Western Slope of the Subtropical Andes. *Mon. Weather Rev.* 132, 611–622. doi:10.1175/1520-0493(2004)132<0611:EOSFDT>2.0.CO;2
- Rutllant, J., Garreaud, R., 1995. Meteorological air pollution potential for Santiago, Chile: Towards an objective episode forecasting. *Environ. Monit. Assess.* 34, 223–244. doi:10.1007/BF00554796
- Saide, P.E., Carmichael, G.R., Spak, S.N., Gallardo, L., Osses, A.E., Mena-Carrasco, M.A., Pagowski, M., 2011. Forecasting urban PM10 and PM2.5 pollution episodes in very stable nocturnal conditions and complex terrain using WRF–Chem CO tracer model. *Atmos. Environ.* 45, 2769–2780. doi:10.1016/j.atmosenv.2011.02.001
- Sax, S.N., Koutrakis, P., Rudolph, P.A.R., Cereceda-Balic, F., Grarnsch, E., Oyola, P., 2007. Trends in the elemental composition of fine particulate matter in Santiago, Chile, from 1998 to 2003. *J. Air Waste Manage. Assoc.* 57, 845–855.
- Schmitz, R., 2005. Modelling of air pollution dispersion in Santiago de Chile. *Atmos. Environ.* 39, 2035–2047.
- Valdes, A., Zanobetti, A., Halonen, J.I., Cifuentes, L.A., Morata, D., Schwartz, J., Valdés, A., Zanobetti, A., Halonen, J.I., Cifuentes, L.A., Morata, D., Schwartz, J., 2012. Elemental concentrations of ambient particles and cause specific mortality in Santiago, Chile: a time series study. *Environ. Heal.* 11, 82. doi:10.1186/1476-069X-11-82
- Villalobos, A.M., Barraza, F., Jorquera, H., Schauer, J.J., 2015. Chemical speciation and source apportionment of fine particulate matter in Santiago, Chile, 2013. *Sci. Total Environ.* 512–513, 133–142. doi:10.1016/j.scitotenv.2015.01.006
- WHO, 2017. Database on source apportionment studies for particulate matter in the air (PM10 and PM2.5) [WWW Document]. URL http://www.who.int/quantifying_ehimpacts/global/source_apport/en/ (accessed: January 2017)
- Willis, R.D., 2000. Workshop on UNMIX and PMF as applied to PM2.5. U.S. EPA, Report No. EPA/600/A-00/048.
- World Health Organization-WHO, 2005. Air quality guidelines for particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide - Global update 2005.

Tabla 1 Comparación de estudios de atribución de fuentes en ciudades de América Latina^(a). PM_{2.5} y fuentes expresados en µg/m³.

Ciudad	País	Población	Modelo usado	Año de estudio	Promedio del MP _{2.5}	Aerosol Marino	Polvo	Tráfico	Industria	Quema de leña	Otras
Cordoba	Argentina	1,272,000	PMF	2009/2010	71		39.1	22.7	9.2		0.0
Curitiba	Brasil	2,751,907	APCA	2007/2008	12	0.0	0.0	6.6	1.9	0.0	3.5
Porto Alegre	Brasil	1,409,351	APCA	2007/2008	16	0.0	0.0	5.6	0.5	0.0	9.9
Belo Horizonte	Brasil	2,375,151	APCA	2007/2008	17	0.0	7.5	3.1	2.0	0.0	4.4
Recife	Brasil	1,537,704	APCA	2007/2008	18	4.3	1.4	6.7			5.6
Rio de Janeiro	Brasil	6,320,000	APCA	2007/2008	20		2.8	10.2	3.6		3.4
Sao Paulo	Brasil	11,235,503	APCA	2007/2008	28		3.6	11.2	3.6		9.5
Rio de Janeiro	Brasil	6,320,000	APFA	2003/2005	10		3.5	2.8	3.4		0.0
Santiago	Chile	5,278,000	PMF	2004	32	3.2	1.3	10.0	3.1	9.3	5.3
Santiago	Chile	6,000,000	CMB	2013	33	1.0	2.5	11.0	4.6	5.2	8.9
Moravia	Costa Rica	56,919	PMF	2010/2011	18	2.0	3.9	5.2			6.9
San Jose	Costa Rica	288,054	PMF	2010/2011	26	2.0	3.5	4.8	6.9		8.9
Heredia	Costa Rica	20,191	PMF	2010/2011	37	2.4	5.1	5.8	10.3		13.4
Tijuana	Mexico	1,301,000	PMF	2010	19	2.9		2.6	0.4	7.1	5.6
Mexico City	Mexico	8,851,000	CMB	2006	50		13.3	21.0	5.0		10.7
Salamanca	Mexico	152,048	PMF	2006/2007	45		7.3	5.8	8.2		23.7

(a) Adaptado de: http://www.who.int/quantifying_ehimpacts/global/source_apport/en/.

Tabla 2 Cambios significativos en aportes de fuentes al MP_{2.5} en relación a medidas regulatorias.

Fuente	Fecha del cambio	Impacto en contribución de fuentes	Explicación y comentarios
Vehículos motorizados	2002	Reducción de 1.53 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (16 %)	Mejoramiento de combustibles. Remoción del plomo en gasolinas.
Vehículos motorizados	2005 y 2006	Incremento de 1.60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (19 %).	Comienzo de concesión de autopistas urbanas.
Vehículos motorizados	2007	Incremento de 1.34 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (13 %).	Incremento de uso de vehículos privados por problema de implementación del Transantiago.
Vehículos motorizados	2008-2010	Reducción de 5.69 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (44 %)	Mejoras operacionales del Transantiago.
Fuentes industriales	2002	Reducción de 2.52 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (34 %)	Reducción del azufre en el diesel hecha el año 2001.
Fuentes industriales	2005-2007	Incremento de 1.86 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (45 %).	Caída de las importaciones de gas natural de Argentina.
Fuentes industriales	2009-2010	Reducción de 1.76 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (31 %)	Inicio de las importaciones de gas natural licuado.
Cooper smelter	1998-2002	Reducción de 4.13 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (69 %)	Mejoramiento de tecnología en fundición de cobre de Caletones.
Cooper smelter	2010-2011	Reducción de 1.41 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (65 %)	Reducción de emisiones de MP y SO ₂ en las fundiciones de Caletones y Ventanas.
Quema de leña	2007-2008	Incremento de 1.16 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (43 %).	Sin identificar.
Quema de leña	2009-2010	Reducción de 0.55 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (17 %)	Sin identificar.
Fuentes costeras	2002-2005	Reducción de 1.62 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (77 %)	Reducción de contenido de azufre en diesel.
Fuentes costeras	desde 2010	Reducción de 1.05 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (76 %)	Inicio de las importaciones de gas natural licuado.
Polvo urbano	2001-2002	Reducción de 0.42 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (49 %)	Eliminación total del plomo en gasolinas.
Polvo urbano	desde 2004	Incremento de 0.67 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (172 %).	Incremento en el número de vehículos privados (crecimiento anual del 4%).
Polvo urbano	desde 2011	Incremento de 0.48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (52 %).	Incremento en el número de vehículos privados (crecimiento anual del 7%), sequía extendida desde el año 2010.