Répartition estivale du dioxyde d'azote et de l'ozone dans une vallée alpine, Chamonix, France

Passive sampling of summer concentrations of NO₂ and O₃ in an alpine valley, Chamonix, France

Medidas estivales de la concentracion del dióxido de nitrógeno y del ozono, en un valle alpino, Chamonix, Francia

Nancy Marcoux, Lucien Tessier et Yves Bégin

Volume 52, numéro 2, 1998

URI : <https://id.erudit.org/iderudit/004848ar>

DOI : <https://doi.org/10.7202/004848ar>

[Aller au sommaire du numéro](#)

Éditeur(s)

Les Presses de l'Université de Montréal

ISSN

0705-7199 (imprimé)

1492-143X (numérique)

[Découvrir la revue](#)

Citer cet article

Marcoux, N., Tessier, L. & Bégin, Y. (1998). Répartition estivale du dioxyde d'azote et de l'ozone dans une vallée alpine, Chamonix, France. *Géographie physique et Quaternaire*, 52(2), 255–264. <https://doi.org/10.7202/004848ar>

Résumé de l'article

Au cours de l'été 1995, la distribution des concentrations atmosphériques en dioxyde d'azote (NO₂) et en ozone (O₃) a été analysée dans une vallée alpine (Chamonix, France). Sur 8 km, du fond de la vallée (1 020 m) à 2 000 m d'altitude, 42 sites répartis selon une maille de 1 km² ont fait l'objet de trois échantillonnages passifs hebdomadaires, du 17 juillet au 7 août 1995. Des mesures en continu des concentrations en NO₂ et en O₃ effectuées simultanément sur deux des sites ont permis de vérifier les résultats obtenus par l'échantillonnage passif. Les concentrations en NO₂ s'atténuent graduellement du sud-ouest au nord-est suivant l'axe de la vallée, passant de 50,3 à 9,9 [µg/m³]. Par contre, elles diminuent rapidement avec l'altitude (de 27,3 [µg/m³] au fond de la vallée à 3,2 [µg/m³] à 2 000 m d'altitude). Les concentrations maximales sont relevées à proximité des zones de concentration du trafic routier: route principale (26 000 véhicules par jour), route d'accès au tunnel du Mont-Blanc (7 000 v/j) et aires de stationnement. L'ozone est en concentration maximale en altitude (125 [µg/m³]) et diminue graduellement vers le fond de la vallée (67,1 [µg/m³]). Le resserrement de la vallée dans la partie nord-est conduit à l'augmentation des concentrations dans cette zone. Le climat (turbulences de l'air, phénomènes d'inversion thermique), les phénomènes photochimiques et la configuration de la vallée sont les facteurs expliquant ce patron de distribution des concentrations en NO₂ et en O₃ dans la vallée.

RÉPARTITION ESTIVALE DU DIOXYDE D'AZOTE ET DE L'OZONE DANS UNE VALLÉE ALPINE, CHAMONIX, FRANCE

Nancy MARCOUX, Centre d'études nordiques, Université Laval, Sainte-Foy, Québec, G1K 7P4. Université d'Aix-Marseille III, Faculté de Saint-Jérôme, Institut méditerranéen d'Écologie et de Paléoécologie, boîte 451, av. Escadrille Normandie-Niemen, 13397, Marseille, Cedex 20, France, nmarcoux@aol.com.

Lucien TESSIER, Institut méditerranéen d'Écologie et de Paléoécologie, Université d'Aix-Marseille III, Faculté de Saint-Jérôme, boîte 451, av. Escadrille Normandie-Niemen, 13397, Marseille, Cedex 20, France.

Yves BÉGIN, Centre d'études nordiques, Université Laval, Sainte-Foy, Québec, G1K 7P4.

Manuscrit reçu le 16 février 1998 ; manuscrit révisé et accepté le 13 mai 1998

RÉSUMÉ Au cours de l'été 1995, la distribution des concentrations atmosphériques en dioxyde d'azote (NO_2) et en ozone (O_3) a été analysée dans une vallée alpine (Chamonix, France). Sur 8 km, du fond de la vallée (1020 m) à 2000 m d'altitude, 42 sites répartis selon une maille de 1 km² ont fait l'objet de trois échantillonnages passifs hebdomadaires, du 17 juillet au 7 août 1995. Des mesures en continu des concentrations en NO_2 et en O_3 effectuées simultanément sur deux des sites ont permis de vérifier les résultats obtenus par l'échantillonnage passif. Les concentrations en NO_2 s'atténuent graduellement du sud-ouest au nord-est suivant l'axe de la vallée, passant de 50,3 à 9,9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Par contre, elles diminuent rapidement avec l'altitude (de 27,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ au fond de la vallée à 3,2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à 2000 m d'altitude). Les concentrations maximales sont relevées à proximité des zones de concentration du trafic routier: route principale (26 000 véhicules par jour), route d'accès au tunnel du Mont-Blanc (7000 v/j) et aires de stationnement. L'ozone est en concentration maximale en altitude (125 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) et diminue graduellement vers le fond de la vallée (67,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). Le resserrement de la vallée dans la partie nord-est conduit à l'augmentation des concentrations dans cette zone. Le climat (turbulences de l'air, phénomènes d'inversion thermique), les phénomènes photochimiques et la configuration de la vallée sont les facteurs expliquant ce patron de distribution des concentrations en NO_2 et en O_3 dans la vallée.

ABSTRACT *Passive sampling of summer concentrations of NO_2 and O_3 in an alpine valley, Chamonix, France.* Ground measurements of NO_2 and O_3 were conducted in summer 1995 in an alpine valley at Chamonix, in France, during three weekly sequences from July 17th to August 7th. The concentration of gases were estimated using a passive method from the bottom of the valley (altitude: 1020 m) to the timberline (2200 m) over 42 sites distributed merely at the junction of every square kilometer. Two sample sites were also selected at the two valley's ends to estimate the longitudinal fluxes of gases. Active continuous measurements were simultaneously collected at Chamonix and helped to calibrate the concentrations of gases obtained by the passive method. The results indicated that NO_2 concentrations augment along the NE-SW axis of the valley, from 9.9 to 50.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, but damp gradually with altitude (from 27.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in the valley to 3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ at 2000 m). Maximum concentrations were found at the position of the main road traffic: main road (26.000 vehicles per day), Mont Blanc tunnel road (7000 v/d) and parking lots. O_3 concentrations are maximum in altitude (125 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) in the northeastern part of the valley and damp toward the lower south-western area (67.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). The geographical patterns of pollution are explained by the local climatic conditions (air turbulence and temperature gradient), associated with the valley geomorphic configuration and the geographic and temporal distribution of road traffic.

RESÚMEN *Medidas estivales de la concentración del dióxido de nitrógeno y del ozono, en un valle alpino, Chamonix, Francia.* En el verano de 1995, en un valle alpino (Chamonix, Francia), se midió la distribución de la concentración del Dióxido de Nitrógeno (NO_2) y del Ozono (O_3) atmosférico. Del 17 de julio al 7 de agosto, en un largo de 8 km, entre el fondo del valle (1 020 m.s.n.m.) y hasta una altura de 2 000 metros, aplicando el método de muestreos pasivos, se realizaron tres medidas semanales de la concentración de NO_2 y O_3 en 42 puntos situados en las intersecciones de cada kilómetro cuadrado del área de estudio. Dos sitios de medidas continuas, uno en el fondo del valle y otro en altitud, han permitido verificar los resultados obtenidos por muestreo pasivo. Las concentraciones de NO_2 se atenúan gradualmente a lo largo del valle, del sud-oeste hacia el nor-este, pasando de 50,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ a 9,9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; en cambio las concentraciones disminuyen rápidamente con la altura (de 27,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en el fondo del valle, a 3,2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ a los 2 000 metros de altura). La máxima concentración de esos contaminantes se registra cerca de las zonas de alto tráfico: Ruta principal (26.00 vehículos por día), ruta de acceso al túnel del Mont Blanc (7 000 vehículos por día) y la afluencia de vehículos en las playas de estacionamiento. La máxima concentración de O_3 ha sido registrada en altitud (125 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), disminuyendo gradualmente hacia el fondo del valle (67,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). La estrechez de la parte nor-este del valle causa un aumento de la concentración de esos contaminantes en el lugar. El clima (la turbulencia del aire y el gradiente térmico), los fenómenos fotoquímicos y la configuración del valle son los factores que explican ese patrón de distribución de la concentración del NO_2 y del O_3 en la región.

INTRODUCTION

Alors que les sources de la pollution industrielle sont bien localisées et les émissions correspondantes de mieux en mieux sous surveillance en France (Mouvier, 1994 ; Ulrich et Williot, 1994), la pollution par le trafic routier, plus diffuse et issue de sources mobiles, apparaît aujourd'hui comme un problème majeur. La répartition spatio-temporelle des concentrations de polluants gazeux est mal connue. De façon générale, les polluants primaires sont concentrés près de leur site de production (centres-villes) et les polluants secondaires s'accumulent en périphérie des villes et dans les zones rurales (Mouvier, 1994). Les associations environnementales suivent les concentrations de polluants de l'air par des mesures en milieu urbain, mais en zone rurale, il n'existe que peu de données. Pourtant, la configuration particulière de sites non urbains peut prédisposer à la concentration des polluants issus du trafic routier. C'est le cas des vallées alpines, étroites et encaissées, parfois soumises à un trafic routier important lié à la fois aux échanges commerciaux et au tourisme. La vallée de Chamonix, devenue, depuis l'ouverture du tunnel du Mont-Blanc en 1965, l'une des principales voies d'échange nord-sud, peut être prise comme modèle. Cette étude vise donc à analyser la répartition des polluants NO_2 et O_3 dans la vallée, afin de cerner les facteurs qui en sont à l'origine. L'étude a été menée en période estivale, pendant laquelle, au trafic commercial, s'ajoute un afflux touristique très important.

CONTEXTE GÉOGRAPHIQUE

La vallée de Chamonix est située au centre-est de la France, dans le département de la Haute-Savoie (fig. 1). D'orientation sud-ouest à nord-est, la vallée s'étend de Servoz au hameau Le Tour, sur 20 km. Sa configuration en escalier la divise en trois gradins de régime climatique distinct, chacun séparé par un rétrécissement de la vallée. Cette étude porte uniquement sur le gradin central (alt. : 1050 m) qui s'étend sur 8 km. Dans ce secteur, la vallée est étroitement encaissée (largeur < 1,5 km) entre, en adret, la chaîne des Aiguilles rouges (alt. moy. : 2500 m) et en ubac, le massif du Mont-Blanc composé d'aiguilles atteignant plus de 3000 m d'altitude.

Les versants sont couverts de forêts de résineux entrecoupées par des couloirs d'avalanches et d'éboulis et des aires de chablis peuplées de feuillus. La limite altitudinale de la forêt est à 2100 m. La principale espèce arborescente est l'épicéa (*Picea abies* (L.) Karsten), accompagné principalement du mélèze (*Larix decidua* Mill.), du sapin (*Abies alba* Mill.), du pin sylvestre (*Pinus sylvestris* L.) et du pin cembro (*Pinus cembra* L.). Le fond de la vallée est aujourd'hui dominé par des infrastructures urbaines.

La vallée de Chamonix est caractérisée par un climat continental de type montagnard (fig. 2). La température moyenne annuelle est de 6,5 °C en fond de vallée (Debray, 1991). En hiver, les températures sont basses (moy. janvier : -3,6 °C). Elles sont relativement élevées en été (moy. juillet : 15,8 °C). Les précipitations annuelles sont de 1251 mm en

FIGURE 1. Localisation de l'aire couverte par l'étude.
Location of the study area.

FIGURE 2. Moyenne mensuelle des températures (trait plein), des précipitations (histogramme) et du trafic routier (tireté).
Monthly averages of temperatures (line), precipitations (bars) and road traffic (dotted line).

moyenne et présentent un maximum en juillet et un minimum en avril (fig. 2). La direction dominante du vent suit l'orientation SO-NE de la vallée.

Les axes routiers sont concentrés en fond de vallée. En 1994, le passage de 14 200 véhicules par jour (max. : 33 000 v./j.) a été comptabilisé sur la route nationale 205 qui est la plus fréquentée (DDEHS, 1994). La même année, la route d'accès au tunnel du Mont-Blanc a été empruntée en moyenne par 5290 véhicules par jour, dont 2230 poids lourds (STMB, 1994). Le trafic routier est plus important en été (saison touristique), avec, en 1994, un maximum en août de 8700 véhicules par jour, dont 1480 poids lourds (fig. 2).

En hiver, les épisodes de pollution sont souvent liés aux inversions thermiques, qui maintiennent sur plusieurs jours les polluants primaires à proximité des sources d'émission. À Chamonix, le SO_2 provenant du chauffage des bâtiments et le NO issu du trafic routier atteignent, dans ces conditions, des

concentrations élevées. En été, l'ensoleillement et les températures élevées favorisent le déplacement et la transformation photochimique des polluants primaires (NO) en polluants secondaires (NO₂, O₃) (Mouvier, 1994).

MÉTHODES

TECHNIQUE DE MESURE DES CONCENTRATIONS DE POLLUANTS

La mesure des concentrations en NO₂ et en O₃ fait appel à une technique simple : l'échantillonnage passif. Contrairement aux appareils d'échantillonnage physico-chimiques fonctionnant sur le principe de la chimiluminescence ou de la photométrie UV, qui nécessitent un abri tempéré et de l'électricité, le matériel de l'échantillonnage passif est léger (tubes et abris) et se dispose sur un support quelconque en place sur le terrain. Cette méthode a été développée pour le NO₂ par Palmes *et al.* (1976) et pour l'O₃ par Hauser et Bradley (1966). Elle a été récemment réactualisée et testée en milieu alpin (Hangartner *et al.*, 1990 ; Hangartner *et al.*, 1991 ; Hangartner *et al.*, 1995). Cette méthode a aussi été appliquée aux composés suivants : SO₂, NH₃, C₆H₆, C₇H₈, et C₈H₁₀.

Des tubes munis d'un filtre imbibé d'une solution sont installés sur le terrain. Ils contiennent de la triéthanolamine, qui absorbe le NO₂, ou du 1,2-Di-(4-Pyridyl)-éthylène qui se transforme en un aldéhyde au contact de l'ozone. Les tubes sont conservés à 5 °C jusqu'au moment de leur utilisation sur le terrain. Leur dimension, conçue de façon à limiter la turbu-

lence, est différente pour la mesure du NO₂, (longueur de 7,4 cm et diamètre de 9,5 mm) de celle visant l'O₃ (tube de même calibre, mais plus court : 4,9 mm). Les tubes sont mis en place dans des abris (fig. 3) de façon à les isoler des conditions atmosphériques pouvant modifier la mesure, comme le vent, le rayonnement solaire et les précipitations.

La concentration des polluants est établie par le laboratoire d'analyse selon les procédures de Palmes *et al.* (1976) pour le NO₂ et de Hauser et Bradley (1966) pour l'O₃. Pour le NO₂ comme pour l'O₃, l'ajout, aux échantillonneurs passifs préalablement exposés, d'une solution spécifique entraîne une coloration qui est fonction de la concentration de gaz absorbée par le filtre. La concentration en NO₂ est calculée à partir de la mesure de cette coloration par colorimétrie, de la durée d'exposition du tube, de la longueur du tube, et du coefficient de diffusion du NO₂ dans l'air. Le coefficient de diffusion de l'O₃ dans l'air n'étant pas connu, la concentration en O₃ est déterminée par la division de la mesure de cette coloration par le nombre d'heures d'exposition et une constante définie expérimentalement par le laboratoire d'analyse (Hangartner *et al.*, 1990). De plus, des tubes scellés, fabriqués au même moment que les autres, servent d'étalon nul. Ils sont gardés au frais et sont expédiés au laboratoire à raison de deux pour le NO₂ et trois pour l'O₃. Dans la détermination des concentrations de polluants, on tient compte de la coloration des étalons dès le début en soustrayant les valeurs associées à la couleur livrée par ces étalons à celles obtenues au moyen des tubes exposés. Bien

FIGURE 3. Matériel pour l'échantillonnage passif des polluants gazeux. A) Cinq tubes de prélèvement (trois pour l'ozone et deux pour le dioxyde d'azote) sont insérés dans un réceptacle. B) Les réceptacles sont fixés aux arbres.

Materials for passive sampling of gaseous pollutants. A) Five sampling tubes (three for O₃ and 2 for NO₂) are inserted in a receptacle. B) The latter is fixed on a tree.

que des quantités infinitésimales des gaz peuvent être détectées, les filtres sont conçus pour être exposés à une atmosphère contenant au moins $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ de NO_2 et $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ d' O_3 . Selon la concentration des polluants dans l'air et du temps d'exposition, les substances absorbantes peuvent aussi arriver à saturation (par ex. : $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour le NO_2). Pour cette étude, les tubes ont été scellés et expédiés rapidement au laboratoire pour dosage après une semaine d'exposition.

Les résultats hebdomadaires par site correspondent à la moyenne des mesures provenant de deux tubes pour le NO_2 , et de trois pour l' O_3 . Les mesures d'ozone risquent en effet de présenter une plus grande variabilité que les mesures de dioxyde d'azote.

PLAN D'ÉCHANTILLONNAGE

Quarante-deux sites, répartis approximativement à tous les kilomètres carrés, ont fait l'objet de mesures (fig. 4). Les 42 sites se répartissent horizontalement depuis la limite de la commune des Houches jusqu'au Lavancher, sur environ 8 km, et verticalement, du fond de la vallée (alt. : 1020 m) jusqu'à 2000 m d'altitude. Deux de ces sites (3 et 5) ont été placés à proximité d'appareils assurant une mesure en continu des polluants, de façon à valider les résultats de l'échantillonnage passif. Deux sites intermédiaires (75U et 750U) ont été ajoutés près de la montée au tunnel du Mont-Blanc, dans le but d'affiner les mesures dans ce secteur. Enfin, afin d'évaluer l'extension de la zone de pollution en fonction des flux d'air dans l'axe de la vallée, un site précédant un rétrécissement de la vallée a été ajouté à chacune des extrémités : au sud-ouest, aux Houches (alt. : 1210 m) et au nord-est, à Argentière (alt. : 1390 m).

FIGURE 4. Distribution géographique des sites d'échantillonnage. *Geographical distribution of sampling sites.*

Tous les sites étaient établis dans des endroits ouverts et à au moins 50 m des principaux axes routiers, de façon à mesurer la pollution de fond et non la pollution de proximité. Les abris ont été attachés à des arbres, des pylônes ou à tout autre support à proximité, entre 1,8 et 2 m du sol par souci d'uniformité. Après avoir effectué une analyse des données climatiques sur dix années (1983-1993), la période du 17 juillet au 7 août s'est avérée la plus propice pour cette étude en raison des températures élevées et des faibles précipitations (fig. 5) combinées à un trafic intense en juillet et en août. Ainsi, l'échantillonnage a été répété trois fois, du 17 au 24 juillet, du 24 au 31 juillet et du 31 juillet au 7 août.

FIGURE 5. Températures (trait) et précipitations (histogramme) moyennes journalières en juillet et en août (1983-1993).

Daily averages of temperatures (line) and precipitations (bars) during July and August (1983-1993).

RÉSULTATS

CARACTÉRISATION DE LA PÉRIODE D'ÉCHANTILLONNAGE

Au cours de la période d'échantillonnage, la température moyenne journalière a été de $18,4^\circ\text{C}$. Comparativement aux normales saisonnières (1966-1995) du 17 juillet au 7 août (tabl. I), cette période de l'année 1995 a été nettement plus chaude et plus sèche. Toutefois, les températures de l'été 1995 approchent les normales saisonnières. La période de 21 jours de l'échantillonnage peut être considérée comme représentative des plus belles journées estivales normalement répartis tout au long de la saison. De la première à la troisième semaine d'échantillonnage, les températures moyennes ont quelque peu diminué, de $18,9^\circ\text{C}$ à $18,5^\circ\text{C}$ puis $17,8^\circ\text{C}$ (fig. 6). Seuls les trois derniers jours ont été pluvieux ($18,8 \text{ mm}$).

Le trafic routier de la N205 a augmenté de la première à la troisième semaine, de façon notable : de 24 746 à 25 803 puis 27 691 véhicules (fig. 6). En juillet et en août, 7753 véhicules ont franchi quotidiennement le tunnel du Mont-Blanc, dont 1723 poids lourds. Ces valeurs, nettement supérieures aux moyennes annuelles (en 1994, N205 : 14 200 v./j. ; tunnel : 5290 v./j.), montrent l'importance des flux liés au tourisme estival dans la vallée.

TABLEAU I

Températures et précipitations durant la période d'échantillonnage et normales saisonnières (période: 1966-1995, station de Chamonix)

	17 juillet-7 août		Été	
	Normales		Normales	
	1995	(1966-1995)	1995	(1966-1995)
T min (°C)	9,8	9,0	8,3	8,1
T max (°C)	27,0	24,3	22,3	21,9
T moy (°C)	18,4	16,3	15,3	14,9
Préc. (mm)	18,8	75,8	214,4	376,7

FIGURE 6. Concentrations moyennes hebdomadaires en NO₂ (A) et en O₃ (B), trafic routier (C) et températures (D) sur la période d'échantillonnage. Les lignes verticales indiquent l'écart type des mesures de polluants.

Weekly average concentrations of NO₂ (A) and O₃ (B), and road traffic (C) and average temperatures (D) during the sampling period. Vertical lines indicate the standard deviation of pollutant measurements.

CONCENTRATIONS MESURÉES DES POLLUANTS

Sur l'ensemble des trois séries de valeurs enregistrées (tabl. II), les valeurs minimale et maximale enregistrées par un tube ont été respectivement de 1,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ et de 52,7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour le NO₂ dans la vallée et de 36,9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ et 167,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour l'O₃. L'écart moyen entre les mesures des échantillonneurs (moyenne pour l'ensemble de la vallée des différences entre les deux tubes pour le NO₂ et les trois pour l'O₃ sur un même site) pour les trois périodes consécutives d'une semaine a été de 0,7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les concentrations en NO₂ et de 5,5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour l'O₃.

De la première à la troisième semaine d'échantillonnage, la concentration moyenne en NO₂ est passée de 9,6 à 10,8 puis à 9,9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, tandis que la concentration moyenne en O₃ a progressé de 92,5 à 104,0 puis 108,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Compte

TABLEAU II

Concentrations en NO₂ et O₃

	Minimum	Maximum	Moyenne	Écart type	Site	Site 3: en
	($\mu\text{g}/\mu^3$)	($\mu\text{g}/\mu^3$)	($\mu\text{g}/\mu^3$)	($\mu\text{g}/\mu^3$)	3: passif	continu
					($\mu\text{g}/\mu^3$)	($\mu\text{g}/\mu^3$)
NO ₂	1,1	52,7	10,4	11,8	17,2	21,5
O ₃	36,9	167,4	101,7	25,9	65,9	64,3

tenu des écarts types (fig. 6a et 6b), les différences enregistrées d'une semaine à l'autre ne sont pas significatives et, sur toute la période analysée, les concentrations des deux polluants sont quasi constantes.

L'échantillonnage passif a donné des résultats conformes aux mesures en continu. Par exemple, au site 3, l'écart entre les deux mesures a été de 4,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour le dioxyde d'azote sur la moyenne des trois semaines et de 1,6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour l'ozone sur la moyenne des première et troisième semaines (tabl. II).

Des valeurs en NO₂ considérées comme pratiquement nulles (sous 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) ont été enregistrées par une proportion notable de tubes (38 %). Le faible pourcentage de déchets (deux échantillonneurs d'O₃ sur 423) conforte la fiabilité de la technique. Dans un de ces deux cas, l'un des échantillonneurs du site avait mesuré 33,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, le deuxième 111,7 et le troisième 107,8. Ces écarts peuvent être attribuables à l'échantillonneur (absence de filtre ou filtre cassé), à l'échantillonnage (salissures d'insectes), ou à l'analyse. Ces deux résultats ont donc été exclus.

Les données de concentrations moyennes ont été transférées dans le logiciel MapInfo qui a permis une cartographie de la répartition spatiale du NO₂ (fig. 7a) et de l'O₃ (fig. 7b) par la méthode d'interpolation SPLINE+grille.

RÉPARTITION SPATIALE DU NO₂

Les plus fortes concentrations en NO₂ ont été mesurées en fond de vallée, dans la partie sud-ouest de la zone étudiée (fig. 7a). Du site 5 au site 7, la valeur des concentrations mesurées a oscillé entre 30 et 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Des valeurs supérieures à 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ont été enregistrées aux sites 8 et 75U, le long de la route nationale 205 précédant la jonction avec la route d'accès au tunnel du Mont-Blanc.

En fond de vallée, les concentrations diminuent graduellement du sud-ouest (8) au nord-est (1). Verticalement, les concentrations en NO₂ diminuent très rapidement du fond de la vallée jusqu'à 1300 m, pour rester ensuite stables à un niveau très bas, moins de 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (fig. 7a et 8). La répartition des concentrations en NO₂ en fonction de l'altitude est comparable en adret et en ubac (fig. 8).

RÉPARTITION SPATIALE DE L'OZONE

La distribution spatiale de l'ozone est en quelque sorte le négatif de celle de NO₂. Avec les plus fortes concentrations en altitude, de part et d'autre de l'axe de la vallée, et les concentrations les plus faibles dans l'axe de la vallée. Les plus fortes concentrations en O₃ (>130 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) ont été enregistrées au-delà de 1600 m (fig. 7b et 8). Les concentrations augmentent fortement du fond de la vallée jusqu'à 1600 m pour se stabiliser ensuite progressivement vers 1800 m. Elles oscillent aux environs de 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à mi-pente. À noter que dans la partie nord-est de la zone étudiée, des concentrations élevées ont été mesurées dès 1600 m. Les valeurs atteignent 124,6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à 1550 m en adret et 137,8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à 1600 m en ubac. Les valeurs les plus faibles (<55 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) ont été mesurées à la jonction de la N205 et de

FIGURE 7. A) Répartition du NO_2 dans la vallée de Chamonix. B) Répartition de l' O_3 dans la vallée de Chamonix.

A) Distribution of NO_2 in Chamonix valley. B) Distribution of O_3 in the Chamonix valley.

la montée au tunnel et de part et d'autre de la N205. La répartition des concentrations en O_3 en fonction de l'altitude est comparable en adret et en ubac (fig. 8).

DISCUSSION

La zone étudiée n'a pas ou a peu d'affluents. Les apports extérieurs sont limités, non seulement en raison de l'étroitesse de la vallée, mais aussi de son cloisonnement, en aval

FIGURE 8. Concentrations moyennes en NO_2 et O_3 sur la période analysée en fonction de l'altitude et de l'exposition.

Average concentrations of NO_2 and O_3 over the sampling period and following site exposure and altitude.

par le verrou du Châtelard et en amont par la moraine des Tines au Lavancher. On peut dire que les concentrations en NO_2 et en O_3 mesurées sont d'origine locale.

La jonction de la N205 avec la montée au tunnel, lieu de la zone étudiée le plus fréquenté par le trafic routier, présente les plus fortes concentrations en NO_2 . Deux types d'infrastructures influencent la distribution spatiale du NO_2 : la route d'accès au tunnel et les aires de stationnement situées au pied des remontées mécaniques (fig. 7a). Dans le premier cas, le ralentissement du trafic, qui emprunte les lacets à forte pente, et la bouche d'aération du tunnel accroissent les émissions dans cette zone. Par ailleurs, la forme en hémicycle de cet ancien cône de déjection favorise probablement la stagnation des émissions à proximité de la source. Dans le second cas, la circulation accrue de véhicules dans les aires de stationnement, au pied des remontées mécaniques en fonction de l'été, provoque également un accroissement plus ou moins marqué des concentrations en NO_2 , légèrement en amont de leur emplacement. Cette répartition du NO_2 s'explique par son origine liée directement au fonctionnement des véhicules. La forte chaleur des moteurs provoque une réaction entre l'azote (N_2) et l'oxygène (O) atmosphériques (Mouvier, 1994). Le NO ainsi formé est rapidement transformé en NO_2 en réagissant avec de l'ozone ou avec un composé organique volatil.

En fond de vallée, le NO_2 se répartit suivant un gradient de concentrations négatif, depuis sa principale source d'émission, au sud-ouest de la zone étudiée, jusqu'au nord-est (fig. 7a). Le vent dominant du sud-ouest au nord-est explique en partie ce patron. Diverses études ont montré ce type de déplacement horizontal des polluants (Broder *et al.*, 1981 ; Colbeck et Harrison, 1985). Le NO_2 étant intimement lié au trafic routier, la répartition des véhicules dans l'axe de

la vallée constitue un second facteur. Le trafic diminue des Houches au Lavancher et au-delà. En 1994, 14 200 véhicules par jour (moyenne annuelle) ont emprunté la N205 traversant la commune des Houches, 9300 v./j. la route entre les Houches et Chamonix, et seulement 5300 v./j. la N506 entre Chamonix et Argentière (DDEHS, 1994). Corrélativement, la diminution des concentrations mesurées en NO_2 , des Houches ($7,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) à Argentière ($3,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$), illustre le lien étroit entre trafic routier et concentration en NO_2 .

Depuis le fond de la vallée, la concentration en NO_2 diminue rapidement avec l'altitude par dilution. La brise montante, résultant du réchauffement de l'air au contact du sol en journée, entraîne du NO_2 en altitude. Cependant, la bordure forestière, présente de chaque côté de la vallée vers 1100 m, bloque la progression du NO_2 vers les positions altitudinales. Le rôle d'obstacle joué par la forêt est manifeste à proximité du télésiège des Planards dont le couloir, totalement déboisé, correspond à la remontée en altitude du NO_2 (fig. 7a). Au cours de son déplacement vertical, le NO_2 participe aux réactions photochimiques menant à la formation d'ozone.

Contrairement à NO_2 , O_3 est rare à proximité des zones à fort trafic routier et en revanche, abondant à distance de ces zones. La lenteur du processus de formation de l'ozone, qui fait appel à une succession de réactions (Toupance, 1988), constitue l'une des raisons de cette différence. De plus, l'ozone formé ou présent près des sources est rapidement éliminé par le NO présent en forte concentration (Académie des sciences, 1993).

La partie nord-est de la zone étudiée constitue l'un des lieux à forte concentration en O_3 (fig. 7b). Le resserrement naturel de la vallée au Lavancher agit comme un obstacle à la progression des masses d'air contenant de l' O_3 . Depuis la principale source de polluants primaires au sud-ouest, les précurseurs d'ozone sont transportés par le vent dominant vers le nord-est et forment de l'ozone en cours de déplacement. Bloqué au Lavancher, l' O_3 se concentre de part et d'autre de la vallée à des altitudes relativement plus basses qu'ailleurs.

La distribution spatiale de l' O_3 est aussi marquée par de fortes concentrations en altitude sous l'influence des fortes irradiances solaires. La brise montante joue, comme le vent dominant, le rôle de transport de précurseurs d' O_3 du fond de la vallée vers l'altitude (Garrec et Rose, 1988). L'absence de phénomène de destruction d'ozone tel le dépôt au sol (Colbeck et Harrison, 1985 ; Broder et Gygax, 1985) au-delà de la limite de l'inversion thermique journalière diminue les écarts jour-nuit des concentrations. Pour des maxima équivalents, la moyenne des concentrations en O_3 est supérieure en altitude. La figure 9 montre l'amplitude des variations journalières de la concentration horaire en O_3 observée à Chamonix en fond de vallée. Cette répartition horaire correspond au type S2 du classement proposé par Künzle *et al.* (1993), vent faible, température élevée, et pic en O_3 inférieur à $110 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Par opposition, la concentration horaire en altitude est pratiquement constante le jour et la nuit (Monn *et al.*, 1990).

FIGURE 9. Moyennes horaires des concentrations en NO_2 et en O_3 , des températures et du trafic routier du 17 juillet au 7 août 1995 dans la vallée de Chamonix. L'ordonnée représente à la fois le trafic routier, les températures et les concentrations de NO_2 et d' O_3 (voir légende).

Hourly average concentrations of NO_2 and O_3 and associated air temperatures and road traffic between July 17th and August 7th, 1995 in the Chamonix valley. The vertical axis represents road traffic, temperatures and concentrations of NO_2 and O_3 (see legend).

CONTRIBUTION PAR RAPPORT À D'AUTRES TRAVAUX

L'échantillonnage passif du NO_2 est utilisé par les réseaux français de mesure de la qualité de l'air depuis sa mise au point par le Centre de recherche de la Commission des communautés européennes d'Ispra (Calvo, 1992). Ce type d'échantillonnage est couramment utilisé dans le cadre d'études préalables à l'implantation d'un réseau de mesures en continu. À Chamonix, cette technique s'est avérée fiable et efficace pour la cartographie de la répartition spatiale des polluants. L'échantillonnage ponctuel ou linéaire (Broder *et al.*, 1981 ; Proyou *et al.*, 1991 ; Bavy *et al.*, 1991 ; Monn *et al.*, 1990) avait permis de montrer une répartition altitudinale du NO_2 et de l' O_3 comparable à celle qui a été mise en évidence pour Chamonix dans cette étude. Toutefois, la mesure des concentrations tous les kilomètres carrés permet ici de mieux comprendre les principaux facteurs impliqués dans la répartition des polluants tels le trafic routier et la circulation des masses d'air dans la vallée.

L'échantillonnage passif a laissé voir de fortes concentrations en NO_2 et surtout en O_3 dans la vallée de Chamonix, une vallée alpine isolée des grands centres urbains. Les concentrations en O_3 ($>130 \mu\text{g}/\text{m}^3$) sont nettement supérieures à celles enregistrées aux stations altitudinales de Suisse éloignées de toute source locale de pollution. Pour les mois de juillet et d'août 1995, la concentration moyenne mensuelle en O_3 à Davos (alt. : 1640 m) a été de $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

et de $71 \mu\text{g}/\text{m}^3$, et celle à la Jungfraujoch (alt. : 3580 m) de $86 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (OFEFP, 1995a et b). Le trafic routier intense, commercial et touristique, constitue le facteur initial majeur de cette concentration exceptionnelle de l'ozone dans la vallée de Chamonix, la configuration propre de la vallée expliquant ensuite la distribution du polluant.

Cependant, outre les émissions du trafic routier, les hydrocarbures d'origine biogénique ont peut-être un rôle complémentaire dans la formation d'ozone (Singh et Zimmerman, 1992). Dès le début du siècle, le professeur de Chabanol avait attribué les concentrations élevées en O_3 à Chamonix, comparativement à Paris, à la présence de résineux, émetteurs de terpènes (note manuscrite conservée au Musée alpin de Chamonix). Il a été montré que les hydrocarbures biogéniques peuvent jouer un rôle dans les phénomènes de pollution en milieu rural (Trainer *et al.*, 1987) et en milieu urbain (Chameides *et al.*, 1988). D'après Trainer *et al.* (1987), les concentrations naturelles en NO_x en milieu rural sont toujours trop faibles pour expliquer dans nos régions des formations d' O_3 , d'où une nécessaire intervention de NO_x d'origine anthropique. L'hypothèse du trafic routier comme élément majeur à l'origine des phénomènes estivaux de pollution à Chamonix semble se confirmer.

CONCLUSION

Dans la vallée alpine de Chamonix, des Houches au Lavancher, des concentrations élevées en NO_2 et O_3 ont été mesurées. Il apparaît que la configuration naturelle de la vallée et la dynamique des masses d'air influent sur la répartition des polluants, tandis que l'ensoleillement et le trafic routier agissent sur le niveau des concentrations.

La distribution du NO_2 est liée à la répartition spatiale du trafic routier. Les plus fortes concentrations hebdomadaires ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) sont enregistrées à proximité de l'axe routier le plus fréquenté, la N205 ; elles diminuent graduellement vers le nord-est et très rapidement en altitude. Sachant que la formation de l' O_3 est liée aux NO_x , le trafic routier contribue aussi à élever les concentrations en O_3 . Mais la distribution de l'ozone dépend largement de la circulation des masses d'air dans la vallée. Les concentrations en O_3 sont faibles en fond de vallée et augmentent graduellement avec l'altitude. La plus forte moyenne des concentrations hebdomadaires en O_3 ($141,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) est enregistrée à un site altitudinal en adret, probablement sous l'influence d'un fort rayonnement UV.

L'influence du trafic routier sur les concentrations en NO_2 et en O_3 à Chamonix est donc bien montrée. Il reste cependant à mieux expliquer la distribution des polluants par une meilleure connaissance de la dynamique des masses d'air dans la vallée et à identifier et quantifier le rôle des hydrocarbures naturels susceptibles d'être également impliqués dans la formation d'ozone. Outre l'impact sanitaire des fortes concentrations de polluants mesurées à Chamonix, cette situation implique un effet possible de l'ozone sur les zones forestières, effet d'autant plus probable que les plus fortes concentrations interviennent au plus fort de l'activité photosynthétique.

REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient la mairie de Chamonix pour le financement du matériel et des analyses de cette étude et quatre organismes pour leur appui financier du projet global: le Conseil de recherches en sciences naturelles et en génie du Canada, le ministère des Transports du Québec, la Fondation Desjardins et le Centre d'études nordiques de l'Université Laval à Québec. Nous remercions également la Direction régionale de l'industrie, de la recherche et de l'environnement de Chambéry, la station Météo-France de Chamonix, la Direction départementale de l'équipement de la Haute-Savoie et la Société du tunnel du Mont-Blanc pour leur contribution à cette recherche. Nous tenons enfin à remercier spécialement les personnes suivantes qui sont directement intervenues dans le projet: M.-B. Personnaz, V. Vestri, G. Primpied, L. Astrade, S. Renaudin et L. Debock. La préparation et l'analyse des échantillonneurs passifs ont été réalisées par le laboratoire Passam de Männedorf, en Suisse. Les commentaires critiques de J.-P. Garrec et d'un lecteur anonyme ont grandement contribué à améliorer ce manuscrit.

RÉFÉRENCES

- Académie des Sciences, 1993. Ozone et propriétés oxydantes de la troposphère. Rapport n° 30. Technique et Documentation, Lavoisier, Paris, 262 p.
- Bavay, R., Roussel, I., Dupuy, J. et Janoueix, D., 1991. L'importance des conditions géographiques dans la mesure de l'ozone. L'exemple de l'Europe du Nord-Ouest. *Hommes et Terres du Nord*, 4 : 231-240.
- Broder, B., Dütsch, H.U. et Graber, W., 1981. Ozone fluxes in the nocturnal planetary boundary layer over hilly terrain. *Atmospheric Environment*, 15(7) : 1195-1199.
- Broder, B. et Gygas, H.A., 1985. The influence of locally induced wind systems on the effectiveness of nocturnal dry deposition of ozone. *Atmospheric Environment*, 19(10) : 1627-1637.
- Calvo, S., 1992. Campagne de mesure du NO_2 sur l'agglomération grenobloise par la méthode des échantillonneurs passifs. Rapport de troisième année ESIGEC, Association pour le contrôle de la pollution atmosphérique dans la région grenobloise, 35 p.
- Chameides, W.L., Lindsay, R.W., Richardson, J. et Kiang, C.S., 1988. The role of biogenic hydrocarbons in urban photochemical smog: Atlanta as a case study. *Science*, 241 : 1473-1475.
- Colbeck, I. et Harrison, R.M., 1985. Dry deposition of ozone: Some measurements of deposition velocity and of vertical profiles to 100 metres. *Atmospheric Environment*, 19(11) : 1807-1818.
- Debray, D., 1991. Atlas climatique de la Haute-Savoie. Éditions Ateliers Ésope, Chamonix, 103 p.
- Direction départementale de l'Équipement de la Haute-Savoie, 1994. Carte des comptages routiers de 1994. Rapport interne, Annecy, 2 p.
- Garrec, J.-P. et Rose, C., 1988. Utilisation d'un bio-indicateur végétal pour la mesure de l'ozone en montagne. *Pollution atmosphérique*, juillet-septembre, p. 271-276.
- Hangartner, M., Meuli, C., Isler, R. et Lustenberger, J., 1990. Vergleich von Ozonpassivsaalem mit kontinuierlichen Messgeräten. Sonderdruck aus *Umwelttechnik* 4/90, Juli/August 1990, Cicero-Verlag AG, Pfäfers, 8021 Zürich, 4 p.
- Hangartner, M., Lustenberger, J., Monn, C. et Trüssel, B., 1991. Diffusive sampling of different pollutants in the environment. Proceedings of the International Symposium Clean Air at Work, Luxembourg, 9-13 septembre 1991, 4 p.

- Hangartner, M., Kirchner, M. et Werner, H., 1995. Evaluation of passive methods for measuring ozone in the European Alps. Proceedings of the 10th World Clean Air Congress and Exhibition, Espoo, Finlande, 28 mai-2 juin, 5 p.
- Hauser, T.R. et Bradley, D.W., 1966. Specific spectrophotometric determination of ozone in the atmosphere using 1,2-di-(4-pyridyl)-ethylene. *Analytical Chemistry*, 38 : 1529-1532.
- Künzle, T., Neu, U. et Wanner, H., 1993. A diurnal classification of the local meteorology and air chemistry (O₃ and NO₂) for the Swiss central plateau. *Zeitschrift für Meteorologie*, N.F. 2 : 189-199.
- Monn, C., Fiebiger, A. et Wanner, H.-U., 1990. Measurements of ozone and nitrogen-dioxide at different altitudes at Eggbergen (Swiss Alps) with passive sampling devices and continuous monitors. *Environmental Technology*, 11 : 867-876.
- Mouvier, G., 1994. La pollution atmosphérique. Collection Dominos 34, Flammarion, Paris, 123 p.
- Office fédéral de l'Environnement, des Forêts et du Paysage, 1995a. Pollution de l'air du mois de juillet 1995. Mesures enregistrées par le réseau national d'observation des polluants atmosphériques (NABEL), rapport interne n° CH-3003, Berne, p. 2-13.
- _____, 1995b. Pollution de l'air du mois d'août 1995. Mesures enregistrées par le réseau national d'observation des polluants atmosphériques (NABEL), rapport interne n° CH-3003, Berne, p. 3-13.
- Palmer, E.D., Gunisson, A.F., Dimattio, J. et Tomczyk, C., 1976. Personal samplers for nitrogen dioxide. *American Industrial Hygiene Association Journal*, 37 : 570-577.
- Proyou, A.G., Toupance, G. et Perros, P.E., 1991. A two-year study of ozone behaviour at rural and forested sites in eastern France. *Atmospheric Environment*, 25A(10) : 2145-2153.
- Société du Tunnel du Mont-Blanc, 1994. Statistiques de trafic de 1994. Rapport interne, Chamonix, 16 p.
- Toupance, G., 1988. L'ozone dans la basse troposphère : théorie et pratique. *Pollution atmosphérique*, 117 : 32-42.
- Trainer, M., Williams, E.J., Parrish, D.D., Buhr, M.P., Allwine, E.J., Westberg, H.H., Fehsenfeld, F.C. et Liu, S.C., 1987. Models and observations of the impact of natural hydrocarbons on rural ozone. *Nature*, 329 : 705-707.
- Ulrich, E. et Williot, B., 1994. Les dépôts atmosphériques en France de 1850 à 1990. Office national des forêts, Fontainebleau, 154 p.