

Étude de la distribution du dioxyde d'azote sur l'agglomération toulousaine par la méthode des échantillonneurs passifs. Été 1996 - Hiver 1996/1997 - Évolution sur 5 ans : 1991/92 - 1996/97

Toulouse urban area nitrogen dioxide distribution study by passive samplers method. Summer 1996 - Winter 1996/1997 - Evolution over 5 years : 1991/92 - 1996/97

Mariam PAPAZIAN MEYBECK*, Jean-Pierre DELLA MASSA*

RÉSUMÉ

La surveillance par l'ORAMIP du dioxyde d'azote, NO₂, dans l'atmosphère de l'agglomération toulousaine, date du début des années 80, surtout en proximité automobile et industrielle. Pour apprécier la cartographie générale de cette pollution, une campagne de mesures du NO₂ a eu lieu de l'été 1991 à l'hiver 1991-1992. Plus d'une centaine de tubes de mesures spécifiques par diffusion passive ont été répartis sur l'agglomération. Cet état des lieux a fait apparaître trois zones sensibles dont principalement le pôle chimique sud toulousain.

L'évolution du schéma urbain (lavages de fumées industrielles, rocadés, pots catalytiques, première ligne de métro...) a conduit à des changements dans la répartition du NO₂. L'ORAMIP a réalisé un nouvel état des lieux en 1996-1997 (mêmes sites de mesures, mêmes périodes), permettant une comparaison à cinq ans d'intervalle. La nouvelle cartographie montre bien une modification sensible, indépendante des conditions météorologiques. Tous sites confondus, les teneurs en NO₂ ont diminué d'environ 15 % en moyenne, sur la zone chimique sud en particulier. La diminution est surtout due à la dépollution industrielle. Sur des sites plus urbains, une légère augmentation du NO₂ est due à l'augmentation du trafic des véhicules particuliers. La pollution en NO₂ provient donc aujourd'hui davantage d'émissions automobiles qu'industrielles, et afin d'en suivre l'évolution, l'ORAMIP reconduira ce travail dans environ cinq ans.

ABSTRACT

Nitrogen dioxide NO₂ observation over Toulouse urban centre, by the Midi-Pyrénées Air Regional Observatory began in the early eighties, especially near motor vehicles traffic, but also near the southern industrial area (GP SA).

In order to appreciate the general pollution cartography, ORAMIP carried out a first NO₂ measurements campaign, from summer 1991 to winter 1991-92, with more than a hundred passive diffusion measurement tubes located every 1,5 km² over the urban agglomeration. This first toulousian atmosphere nitrogen dioxide pollution inventory showed three sensitive zones in southern Toulouse and especially the southern chemical pole.

The toulousian urban scheme strongly evolved over the last five years, inevitably leading to changes in nitrogen dioxide distribution : GP SA industrial smokes « depollution » process since the end of 1992 (about 6 to 2 tuns/day), great Langlade cross-road improvement leading to an urban highway, coming out of catalytic exhaust-tanks (January 1993), first subway service (June 1993). (Notice : no significant incidence on the nitrogen dioxide amounts of the household refuses Mirail incinerator washing smokes process).

ORAMIP realised a new nitrogen dioxide pollution campaign, a « first second time », allowing a five years gap comparison, using the same locations, over the same periods (summer and winter). The new cartography shows a real modification. However, this evolution is not due to different meteorological conditions from a campaign to another.

For the whole measurements, totality of the locations, NO₂ amounts decreased by an average 15 %, particularly in the southern chemical zone sites (24 sites), which showed a decrease over 35 %. The site by site comparison (i.e. between 128 « identical » sites) shows a decrease in NO₂ amounts for 70 % of them, especially due to the industrial « depollution », but also due to buses and subway attendance, catalytic exhaust-tanks use, and urban highway-making. An increase in NO₂ amounts is also shown off for 30 % of the sites, due to the increase in motor vehicles displacements.

We have shown from now, that over the Toulouse urban area, the nitrogen dioxide atmospheric amounts are due to the motor vehicle emissions more than to the industrial emissions. ORAMIP will carry out this work again in about five years, in order to appreciate the evolution in air quality in the Toulouse area.

(*) ORAMIP, Observatoire Régional de l'Air en Midi-Pyrénées, 19, Avenue Clément Ader - 31770 Colomiers - France, Tél. 05 61 15 42 46 - Fax. 05 61 15 49 03.

I. Introduction

La surveillance du dioxyde d'azote, NO₂, sur l'agglomération toulousaine, par l'Observatoire Régional de l'Air en Midi-Pyrénées, réseau régional de mesures de la pollution atmosphérique, a démarré en 1978 avec la mise en place de la première station de référence française à Colomiers, complétée en décembre 1982 par le suivi en continu des oxydes d'azote à proximité d'une unité de fabrication d'acide nitrique implantée en zone industrielle sud de Toulouse, mais proche d'un tissu urbain important. Au début des années 1990, le réseau de mesures de la Ville de Toulouse a été perfectionné avec le remplacement de cinq stations monocapteurs (monoxyde de carbone) par des stations multipolluants de proximité automobile. Parallèlement, il avait été décidé d'augmenter le nombre de capteurs autour de la zone chimique sud pour pouvoir apprécier, en des points jusqu'alors non couverts, les niveaux de concentrations de dioxyde d'azote lors de certaines situations météorologiques défavorables. C'est ainsi que la station N° 2 de Pompage, sur les coteaux de Pêch-David, existant depuis 1984, a été complétée par la station « mixte » de proximité automobile et industrielle N° 10 de l'AFPA, rue Enzo Godeas, en juillet 1993. Les sites de mesures étaient alors surtout implantés à proximité de sources de pollution, industrielles et automobiles, en tenant compte des données météorologiques locales. De telles implantations ne permettaient pas d'apprécier la cartographie générale de la pollution de la ville (surtout avec un nombre réduit d'analyseurs), car elles prenaient en compte une pollution de proximité, en implantant parfois des capteurs en zone de faible densité de population, et en oubliant peut être d'autres sites plus pollués...

L'ORAMIP, avec le support du Laboratoire Central de la Pollution de l'Air (CLAP) du Centre Commun de Recherche (CCR) d'ISPRA (Italie), a mis en œuvre une première campagne de mesures du NO₂ par la méthode des tubes à diffusion (ATKINS et al - 1986), de l'été 1991 à l'hiver 1991-1992. Cette première étude a permis de compléter les connaissances de la distribution du NO₂ sur Toulouse, en mettant en évidence des zones particulièrement touchées par une pollution mixte automobile et industrielle, sur des zones sensibles du sud de Toulouse.

Devant l'intérêt des résultats de l'étude 1991-1992, et compte tenu d'une évolution dans le schéma urbain de Toulouse, l'ORAMIP a décidé d'entreprendre une deuxième campagne été-hiver, cinq ans après la première. L'originalité de cette étude été 1996 - hiver 1996-1997 est qu'elle représente une « première deuxième fois », qui permet de comparer à *cinq ans d'intervalle* la distribution du dioxyde d'azote sur l'agglomération toulousaine.

L'intérêt de cette comparaison réside dans le choix des mêmes sites de mesures, pendant les mêmes périodes de l'année, avec cependant des changements dans les données de répartition de la pollution, dus à l'évolution suivante du réseau urbain toulousain :

- l'unité de fabrication d'acide nitrique du sud toulousain a installé depuis fin 1992 un système de dépollution des fumées : les émissions d'oxydes d'azote ont chuté d'environ 6 à 2 tonnes/jour ;
- près de cette unité chimique, un carrefour a été réaménagé en rocade, permettant un trafic beaucoup plus fluide, en désengorgeant certaines voies de pénétration vers le centre ville ;
- la ligne A du métropolitain a été mise en fonctionnement à Toulouse le 26 juin 1993 alors qu'il n'existait qu'un réseau de transport en commun radial vers le centre ville ;
- depuis le 1^{er} janvier 1993, les pots catalytiques ont fait leur apparition sur le marché de l'automobile, permettant une réduction des émissions azotées.

Remarque : le lavage des fumées de l'incinérateur d'ordures ménagères du Mirail à Toulouse n'a pas eu d'incidence significative sur les rejets d'oxydes d'azote.

II. Description de l'étude

II.A. Zone géographique couverte et durée de l'étude

L'agglomération toulousaine comprend 63 communes, et représente, selon le dernier recensement INSEE de 1990 une population dont presque 60 % sont localisés sur la commune de Toulouse. L'INSEE donne également les chiffres suivants (comparaison avec Paris à titre indicatif) :

	Agglomération			Commune		
	Aire	Densité	Nbre habitants	Aire	Densité	Nbre habitants
Toulouse	713 km ²	912 hab/km ²	650 119 hab.	118 km ²	3 032 hab/km ²	358 686 hab.
Paris	2 575 km ²	3 618 hab/km ²	9 318 231 hab.	105 km ²	20 421 hab/km ²	2 152 373 hab.

D'après une enquête par le Centre d'Etude Technique de l'Equipement (CETE) en 1990, environ 2 millions de déplacements quotidiens sur l'agglomération toulousaine se répartissant ainsi : 1 250 000 déplacements en véhicules particuliers, 201 000 déplacements en transports collectifs, 111 000 déplacements en deux roues dont 56 % en bicyclette et 44 % en deux roues motorisés, et enfin 400 000 déplacements à pied. La zone d'étude a volontairement été limitée à Toulouse et à la première couronne, ce qui représente une superficie d'environ 250 km².

Campagne 1991-1992	
Eté 1991	Du 27/06 au 17/09/1991
Hiver 1992	Du 30/01 au 25/04/1992

Campagne 1996-1997	
Eté 1996	Du 20/06 au 24/09/1996
Hiver 1997	Du 21/12/1996 au 16/04/1997

II.B. Le principe de la méthode

La technique employée, identique à celle de la campagne précédente, utilisée pour la première fois en 1976 par PALMES, repose sur les principes suivants : déterminer la concentration de NO₂ dans l'air ambiant, par échantillonnage passif intégré sur une durée de temps déterminée, à l'aide de tubes à diffusion moléculaire. De dimensions précises (7 cm de long et 1 cm de diamètre interne), ils sont placés verticalement sur un poteau (électrique, téléphonique, lampadaire...), à une hauteur de 2,50 à 3 mètres du sol. Une double grille d'acier inoxydable, imprégnée d'une solution de triéthanolamine, TEA, est fixée à l'extrémité supérieure du tube, obstruée par une capsule plastique colorée. La deuxième capsule, de couleur différente pour éviter de perdre les grilles, est retirée au début du prélèvement : les tubes sont ouverts à l'air libre (sauf les tubes témoins bouchés aux deux extrémités). La progression du dioxyde d'azote dans le tube se fait par diffusion moléculaire. Au contact de la grille imprégnée de TEA, le NO₂ est absorbé par piégeage chimique. Le débit de diffusion est conforme à la première loi de FICK, fonction des caractéristiques géométriques du tube et du coefficient de diffusion du NO₂. A température ambiante (20 °C), on considère ce débit de diffusion comme égal à 72 cm³/h soit 1,7 l/jour.

II.C. Échantillonnage

Le choix des sites a fait l'objet d'un examen détaillé sur carte, à partir d'un quadrillage préalablement défini, en recherchant un compromis « nombre de tubes/surface à couvrir ».

Plus d'une centaine de sites (128 sites communs entre les deux campagnes 1991/92 et 1996/97) ont été retenus sur l'agglomération toulousaine, avec environ un tube tous les 1,5 km², choisis dans la mesure du possible après réflexion sur le terrain, compte tenu des particularités des rues. Pour être représentatifs, il était important que les sites de fond sur l'agglomération soient distribués de façon homogène, répartis de façon un peu plus dense lorsque la population était plus dense, et inversement, et suffisamment nombreux pour que l'analyse globale soit significative.

La mesure passive du dioxyde d'azote sur chaque site correspond à l'intégration de la quantité de composé piégé sur une durée de temps déterminée (en général quinze jours), ce qui ne permet en aucun cas d'apprécier les fluctuations ponctuelles de la concentration. Les emplacements définitifs des tubes sont finalement déterminés par l'étude de leur coefficient de variation.

La concentration du NO₂ d'origine automobile diminue sensiblement de son lieu d'émission au lieu où les processus de sa disparition (dispersion, absorption, réaction chimique, ...) équilibrent ceux de sa formation, à une distance de 50 à 100 mètres. On a donc essentiellement recherché ces derniers sites, mais compte tenu de la particularité toulousaine (unité industrielle, rocade...) certains sites de proximité automobile et industrielle ont inévitablement été étudiés.

Dans la mesure du possible, nous avons utilisé à nouveau les mêmes sites pour la campagne été 1996 - hiver 1996-1997 que pour la précédente campagne. Les relevés des tubes ont également été réalisés toutes les deux semaines. Les nouveaux tubes, préalablement préparés, étaient mis en place tandis que les tubes collectés étaient stockés au réfrigérateur, en attendant d'être analysés.

II.D. Analyses

La densité optique (DO) du colorant azoïque, formé par le dioxyde d'azote piégé par absorption dans la triéthanolamine (TEA), est déterminée par spectrophotométrie. La méthode de Griess-Saltzman permet ensuite de calculer la concentration en NO₂ atmosphérique. Le réactif contient les composés destinés à la formation du sel de diazonium et du colorant azoïque. Le dosage colorimétrique s'effectue à une longueur d'onde de $\lambda = 542$ nm, après un temps d'attente de 30 minutes minimum. Ce type d'analyses a déjà été mené par ATKINS et col (1986).

Pour chaque quinzaine d'exposition, plusieurs « blancs » (tubes imprégnés de TEA mais bouchés aux deux extrémités) ont été exposés durant le même temps. La valeur moyenne de ces tubes témoins est ensuite ôtée des résultats bruts. La concentration moyenne de NO₂ sur

chaque site est calculée à partir de la quantité de NO₂ (trouvée par analyse) et de la quantité d'air diffusée.

III. Validation des données

III.A. Duplication des tubes

Des mesures ont été réalisées sur des tubes disposés en double exemplaire sur certains sites. L'écart relatif a été calculé pour chaque couple d'exposition validé. Pour deux duplicats A et B, l'écart relatif est défini par :

$$ER (\%) = (m-A)/m \times 100$$

avec m = valeur moyenne de A et B.

- Pour les campagnes d'été et d'hiver 1991/1992, on remarque qu'en majorité, les écarts relatifs sont inférieurs à 10 %. Leur moyenne sur l'ensemble des deux campagnes est de 9,9 %.

- Pour les campagnes d'été et d'hiver 1996/1997, la grande majorité des écarts relatifs sont également inférieurs à 10 %, avec des écarts relatifs supérieurs à 20 % plus fréquents en hiver qu'en été. Ce comportement peut trouver une explication dans le fait que l'on rencontre davantage de NO₂ en hiver qu'en été (plus de circulation, plus de chauffages, plus de combustions...). En été, le polluant rencontré en majorité est généralement l'ozone.

Pour l'ensemble de la campagne été/hiver 1996-1997, la moyenne des écarts relatifs est de 9,3 %.

- La valeur moyenne des écarts relatifs de la campagne d'été 1991 est de 6,5 %, du même ordre de grandeur que celle de la campagne d'été 1996, 8,1 %, ce qui confirme la fiabilité de la méthodologie employée.

- Pour les campagnes d'hiver, les résultats sont également très en harmonie : 11,4 % en 1992 et 10 % en 1997.

Les moyennes des écarts relatifs entre 5 et 10 % environ sont tout à fait comparables aux résultats obtenus lors des campagnes de Madrid, Paris et Rouen [respectivement ATKINS et QUIRINO 1990, DE SAEGER et al 1991, DELMAS et al 1992]. Quelques différences importantes sur certains tubes ont également été observées lors de ces campagnes, et peuvent s'expliquer par des erreurs d'échantillonnage ou analytiques, ou par mauvaise répartition de la triéthanolamine sur les grilles. Il est fort probable également que des gradients importants de concentrations apparaissent sur certains sites de proximité.

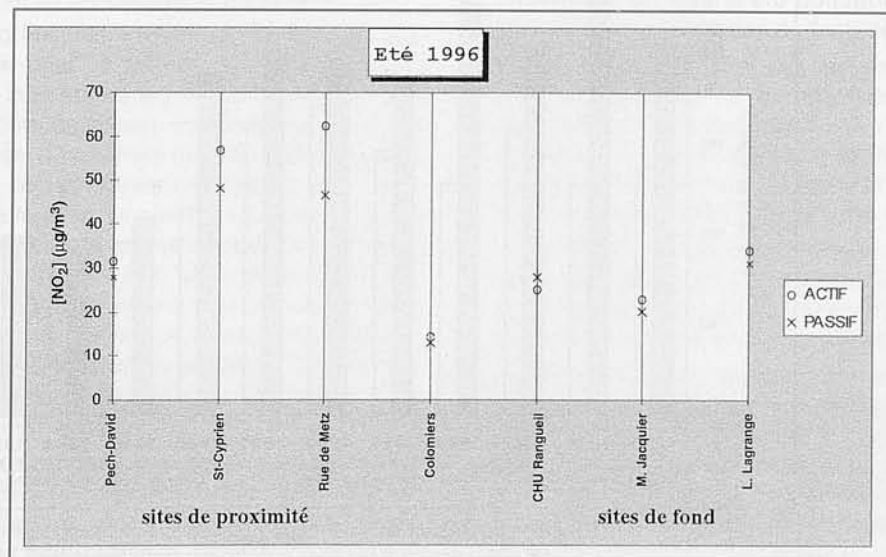
D'une manière générale, les mesures dupliquées ont donné des résultats satisfaisants.

III.B. Comparaison « analyses actives - analyses passives »

Lors de la nouvelle étude 1996-1997, nous avons mené une comparaison des tubes dupliqués sur les sites particuliers des stations fixes de l'ORAMIP, qui analysent différents polluants de l'air (dont le NO₂) de façon active, en pompant en continu jusqu'à l'analyseur.

Comme les tubes à diffusion piègent un composé spécifique de façon passive, par diffusion moléculaire, il est très délicat de comparer ces deux ensembles de résultats, car les analyses ne sont pas du même type.

En intégrant les résultats des analyses « actives » sur la même période que celle des analyses « passives » pour une même campagne (été 1996), on peut mettre en parallèle les deux types de résultats, comme le montre le graphe ci-dessous :



On voit très nettement que lors de cette campagne d'été 1996, les teneurs en NO_2 provenant des résultats des échantillonnages par tubes passifs sur les sites de fond (urbains denses), sont très proches de ceux des analyseurs actifs et montrent une évolution tout à fait convergente. Sur les sites de proximité, par contre, les résultats divergent d'environ 20 % en moyenne.

Le principe de la diffusion moléculaire sur lequel s'appuie l'échantillonnage passif repose sur la condition de se trouver en écoulement laminaire de l'air (1^{re} loi de Fick).

Ceci est vérifié sur les sites de fond, où l'air n'est pas ou très peu perturbé, et en été, où la diffusion se fait bien. En situation de proximité, automobile ou industrielle, se créent des différences d'écoulement de l'air, par des « microturbulences », des « microvortex », dus aux émissions « directes » de pollution, pouvant expliquer les écarts observés entre les résultats des échantillonnages « actifs » et « passifs ».

Pour les résultats de la campagne d'hiver 1996/97, la corrélation actif/passif sur les sites de fond ne se vérifie pas pour tous les sites, ceci peut s'expliquer par les conditions climatiques d'hiver, avec une moins bonne diffusion.

Afin de compléter cette étude comparative entre les tubes passifs et les sites fixes de mesures de l'ORAMIP, le graphe ci-dessous illustre parfaitement l'amélioration sensible des teneurs en NO_2 relevée par les deux capteurs fixes situés dans l'environnement du pôle chimique sud : chemin des Etroits et rue du Poitou (= respectivement station N° 2 de Pompage, en situation de proximité industrielle, et station N° 4 de l'école Maurice Jacquier, en situation maintenant de « fond »).

L'amélioration des teneurs en NO_2 est très visible sur ce graphe avec l'observation des Percentiles 98, qui sont des valeurs statistiques représentatives des pointes de pollution : on voit que les valeurs élevées en proximité industrielle avant 1993 deviennent lissées et du même ordre de grandeur que celles relevées à la station en situation « de fond » à partir de cette date, qui est celle de la mise en œuvre du lavage des fumées de l'usine.

III.C. Homogénéisation des données

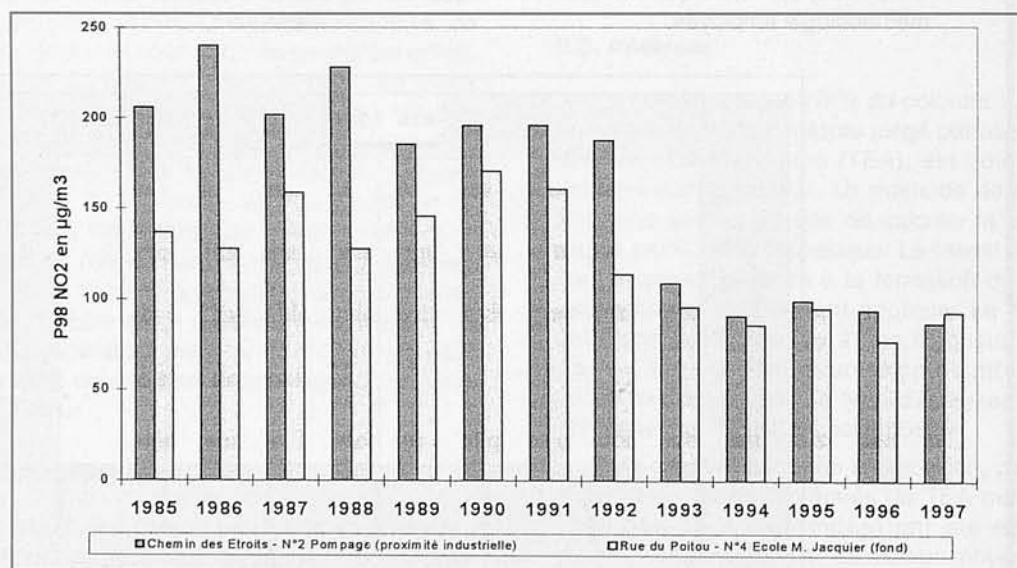
Les tubes dupliqués (D) ainsi que les tubes témoins (Blancs B) ne seront pas pris en compte dans l'exploitation finale des résultats, c'est-à-dire pour le tracé des courbes d'isoconcentrations.

Pour les autres tubes, un critère d'acceptation des données utilisé dans nos études précédentes est de ne retenir que les sites d'échantillonnage qui ont fourni **au moins 3 mesures lors des campagnes d'été ou d'hiver**. Le tube qui aura moins de trois valeurs sera alors éliminé (uniquement dans la période d'été ou d'hiver concernée, et non pas pour la campagne entière).

III.D. Étude du coefficient de variation de chaque site

Le coefficient de variation (CV, ou écart type relatif) reflète la représentativité de mesures successives effectuées à un même site.

L'écart-type relatif est le rapport « écart-type sur moyenne » du paramètre de distribution (en l'occurrence la concentration en NO_2), permettant de relativiser les valeurs absolues des écarts-



Evolution du P98 en NO_2 sur deux types de stations toulousaines.
 NO_2 P98 variation in two types of toulousian monitoring stations.

types du niveau moyen de la période de mesures.

L'interprétation de ce coefficient repose sur le fait que plus le rapport est élevé, plus les valeurs de l'immission en NO_2 durant la période de mesures sont dispersées.

Si le Coefficient de Variation est élevé, supérieur à 40 %, cela signifie que les mesures sont peu reproductibles d'une période à l'autre.

Un CV faible, entre 10 et 40 %, en revanche, montre une bonne reproductibilité des mesures.

Cela signifie que les mesures ne seront représentatives de masses d'air mélangées avant d'atteindre le tube à diffusion (ce ne sera pas de l'air tantôt chargé en polluants, tantôt propre). Le coefficient de variation de ces sites sera faible. Ceci est vérifié à Toulouse : on constate que pour l'étude 1991-1992, les sites du centre ville étaient en général compris dans une isocourbe correspondant à $\text{CV} = 20 \%$.

Si le CV est inférieur à 10 % en centre ville, avec des concentrations en NO_2 très élevées, cela signifie que les teneurs en polluant sont tellement importantes qu'elles occultent les variations dues aux perturbations de la proximité.

Les sites ayant un CV supérieur à 40 % ou inférieur à 10 % ont été étudiés et retirés de la base de données le cas échéant après comparaison avec leurs voisins.

Les sites de proximité, éventuellement présents dans le centre ville, sont aisément détectés grâce à deux caractéristiques combinées : un CV très faible ($\text{CV} < 10 \%$) et une concentration moyenne élevée. Ils ont été étudiés et éventuellement éliminés : leur élimination repose sur l'estimation faite en comparant leurs CV et leurs concentrations avec ceux de leurs plus proches voisins.

En hiver, les problèmes liés aux écarts de CV sont moins nombreux. En 1991-1992, la plupart des sites ont un CV compris entre 20 et 30 %.

En cinq ans, les coefficients de variation ont pu changer pour un même tube, mais les commentaires concernant les emplacements de ces tubes restent identiques. Par exemple, pour les tubes situés à proximité du pôle chimique sud, l'influence des émissions industrielles sera de la même nature, c'est la quantité de polluant rejeté qui sera différente, après lavage des fumées. Comme pour l'hiver 1992, les problèmes liés aux écarts de CV sont moins nombreux en hiver 1996/97 : on ne trouve pas de sites de périphérie avec des coefficients de variation inférieurs à 10 %, au contraire des sites de centre ville, pour lesquels c'est l'inverse.

Les sites proches des sources industrielles, pour lesquels les concentrations moyennes en NO_2 sont élevées, sont suffisamment éloignés de ces sources pour que leurs coefficients de varia-

tion soient élevés, et qu'ils ne représentent donc pas des sites de proximité *stricto sensu* devant être éliminés de l'étude. Ces sites sont tous conservés.

Quant aux sites proches des sources automobiles, qui présentent également des concentrations moyennes élevées en NO_2 , leurs coefficients de variation n'est pas inférieur à 10 % toute l'année. Par exemple, le site N° 85 du Boulevard Carnot, le cas le plus typique, présente un CV inférieur à 10 % uniquement en été 1991 et en hiver 1996-1997. Cette variabilité permet d'accepter ce site sans le qualifier de site de proximité, bien qu'en ce lieu le trafic automobile soit dense.

La zone géographique couverte par les études a été « dopée » en 1996 par rapport à 1991 en trois lieux : l'aéroport de Toulouse-Blagnac, l'hypercentre ville de Toulouse, et la zone chimique sud.

III.E. Création de la base de données

☞ L'homogénéisation des données étant effectuée, ce sont ces nouvelles données « corrigées » qui seront utilisées pour la suite de l'exploitation et qui figureront dans la base de données.

III.F. Étude des moyennes de toutes les valeurs par période d'échantillonnage

Pour l'étude 1991-1992, l'observation des moyennes des mesures des tubes à diffusion par période d'échantillonnage menait aux réflexions suivantes :

- Été 1991 : variation des moyennes en NO_2 entre 25 et 33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, sauf la 6^e période, qui présentait une moyenne de 42 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Un problème de destruction photochimique de la TEA dû à l'utilisation de capsules incolores durant cette période a fait perdre de nombreuses valeurs, mais cette période a été conservée, car elle concordait avec la reprise de l'activité.
- Hiver 1992 : variation des moyennes en NO_2 entre 35 et 39 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, à l'exception de la 1^{re} période d'échantillonnage, avec une moyenne de 28 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Aucun problème n'ayant été relevé durant l'échantillonnage (pluviométrie quasi nulle et vents faibles), cette période a été éliminée.
- Été 1996 : variation des moyennes en NO_2 entre 18 et 31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. La concentration en NO_2 la plus importante, 31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, (dernière période) correspond à la reprise d'activités début septembre.
- Hiver 1996-1997 : variation des moyennes en NO_2 entre 25 et 39 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. La dernière période la moins concentrée (25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), correspond aux vacances scolaires de Pâques, et au début du printemps, expliquant la baisse des émissions en NO_2 (moins de circulation, de chauffages urbains, meilleure dispersion de la pollution...).

Mesures en $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Été		Hiver		Moyenne Été + Hiver 91-92	Moyenne Été + Hiver 96-97	Evolution 91-92 / 96-97 total mesures
	91	96	91-92	96-97			
Moyenne de toutes les $[\text{NO}_2]$	31	23	37	33	34	28	- 15,5 %
Moyenne de toutes les médianes en NO_2	26	20	33	32	30	27	- 10,6 %
Maximum des $[\text{NO}_2]$ maxima	188	106	105	91	188	106	- 43,7 %
Minimum des $[\text{NO}_2]$ minima	8	3	9	9,3	8	3	- 60 %

D'une manière générale, lorsqu'on compare les deux campagnes de mesures espacées de cinq années, le comportement estival de la concentration en NO_2 correspond à une augmentation régulière des moyennes du début à la fin de l'été, corroborée avec la reprise d'activité.

Le comportement hivernal de la concentration correspond plutôt à une baisse régulière à l'approche des jours plus chauds de la fin de l'hiver. Pour l'été, les moyennes des concentrations de 1996 sont systématiquement inférieures à celles de 1991. C'est presque aussi toujours le cas pour les hivers. Globalement, les concentrations en NO_2 de 96-97 ont chuté par rapport à celles de 91-92, bien que les teneurs hivernales soient toujours plus élevées que les teneurs estivales.

Sur l'ensemble des deux études menées à cinq ans d'intervalle, même s'il est délicat de « moyenner » l'ensemble des périodes et de les comparer, on peut montrer que la teneur globale moyenne en NO_2 , en tenant compte de toutes les mesures disponibles, a diminué d'environ 15 %.

IV. Résultats

IV.A. Données météorologiques

Les conditions météorologiques influencent fortement la distribution spatiale des quantités d'oxydes d'azote émises. Nous avons utilisé toutes les données de Météo-France (Toulouse-Blagnac) à notre disposition pour comparer les deux campagnes période par période, pour les trois facteurs météorologiques essentiels que sont les vents, les précipitations et l'ensoleille-

ment (durées et non pas intensités, que Météo-France ne fournit pas et que nous n'avions pas pu mesurer). Nous avons eu de la chance d'obtenir des résultats suffisamment comparables d'une campagne à l'autre pour nous affranchir des variations météorologiques.

D'une manière générale, les teneurs d'oxydes d'azote sont plus importantes en hiver qu'en été, à cause d'une plus grande émission et d'une moins bonne dispersion dans l'environnement (inversions de températures, brouillards...).

Données de vent :

Nous avons calculé par période de mesure la moyenne des moyennes journalières des vitesses du vent. Les directions des vents sont données à simple titre indicatif (*), car leur moyenne vectorielle sur des périodes aussi longues ne sont pas très significatives.

En général, les périodes les moins polluées correspondent à des vitesses de vent élevées : plus le vent est fort, plus la dispersion est accentuée. Les roses des vents de chaque période indiquent une grande fréquence de l'axe dominant nord-ouest/sud-est.

- *Périodes d'été* : les moins polluées sont sous les vents de nord-ouest exclusivement. Les masses d'air polluées de Toulouse ne sont ainsi pas rabattues sur l'agglomération. Les périodes d'été les plus polluées sont surtout sous des vent du sud/sud-est, rabattant sur l'agglomération sa propre pollution.

- *Périodes d'hiver* : bien que les périodes les moins polluées aient également été observées sous des vents de sud/sud-est, ce sont les

	Période la moins polluée	Vitesse et direction moyennes		Période la plus polluée	Vitesse et direction moyennes	
Été 1991	08/07 - 24/07/1991	2,7 m/s	252*	03/09 - 17/09/1991	1,8 m/s	228*
Été 1996	20/06 - 04/07/1996	3,4 m/s	297*	10/09 - 24/09/1996	2,7 m/s	252*
Hiver 91/92	16/02 - 01/03/1992	2,9 m/s	219*	12/04 - 25/04/1992	4,4 m/s	259*
Hiver 96/97	29/03 - 16/04/1997	2,9 m/s	237*	01/03 - 15/03/1997	1,9 m/s	218*

vitesses moyennes élevées des vents qui ont favorisé la dispersion des polluants. La période la plus polluée de l'hiver 96/97 a été balayée par des vents de sud/sud-est, moins forts, ayant moins dispersé la pollution.

Cas particulier : la période la plus polluée de l'hiver 1992 a été sous des vents forts, mais exclusivement en provenance des usines.

Données de précipitations :

Les ratios des durées et cumuls des précipitations (DP et CP), et des durées de l'ensoleillement (DE), vis-à-vis du nombre de jours (N) de chaque étude sont figurés dans le tableau 1.

Les deux campagnes font apparaître des rapports (Durée Précipitations/Nombre de jours) et (Cumul Précipitations/Nombre de jours) similaires, et donc une même influence des précipitations.

Données d'ensoleillement :

Les ratios des durées de l'ensoleillement (DE), vis-à-vis du nombre de jours (N) de chaque étude sont figurés dans le tableau 2.

L'ensoleillement a été globalement moins intense l'été 1996 que l'été 1991.

Concernant la corrélation NO₂/ensoleillement l'été, d'un point de vue photochimique, le NO₂ présent dans l'air ambiant a donc normalement été davantage photolysé en 1991/92 qu'en 1996/97 : cela signifie que la diminution globale

observée des teneurs en NO₂ ne semble donc pas devoir être attribuée aux conditions météorologiques.

IV.B. Méthode de représentation

Le relevé cartographique a été réalisé à l'aide du logiciel SURFER (version 6 pour l'étude 1996-1997). La cartographie nécessite une grille de données (x, y, z) régulièrement espacées pour pouvoir générer les lignes d'isoconcentration. Cette grille a été calculée par un algorithme d'interpolation à partir de la base de données contenant les concentrations en NO₂. La grille de données correspond donc aux mesures des concentrations sur les sites d'échantillonnage (z) repérées par leurs coordonnées Lambert sur la carte de l'agglomération toulousaine (x, y).

La méthode de calcul utilisée pour l'interpolation est « la courbature minimum » en utilisant une erreur maximale de 0,008 associée à un nombre maximal d'itération de calcul égal à 20 000.

La grille interpolée possède 77 × 101 points sur un fond de carte. Les points des sommets de la carte sont repérés par leurs coordonnées Lambert. Afin de visualiser les différences entre les résultats de 1991-1992 et de 1996-1997, nous avons exploité à nouveau les premiers résultats. Sur chaque fond de carte (Autorisation IGN n° 21-7083), chaque courbe d'isoconcentrations en NO₂ est représentée de 5 µg/m³ en 5 µg/m³. Tous les 10 µg/m³, la concentration correspondante en NO₂ est indiquée sur la courbe.

Tableau 1.
Données de précipitations.

	N : Nombre de jours	DP : Durée P (heures)	CP : Cumul P (mm)	DP/N	CP/N
Eté 1991	83	56	130	0,7	1,6
Hiver 1991/92	86	137	95	1,6	1,1
Moyenne 1991/92	169	193	225	1,1	1,3
Eté 1996	96	110	156	1,1	1,6
Hiver 1996/97	117	161	113	1,4	1,0
Moyenne 1996/97	213	271	269	1,3	1,3

Tableau 2.
Données d'ensoleillement.

	N : Nombre de jours	DE : Durée de l'ensoleillement (heures)	DE/N
Eté 1991	83	743	8,9
Hiver 1991/92	86	378	4,4
Moyenne 1991/92	169	1 121	6,6
Eté 1996	96	692	7,2
Hiver 1996/97	117	591	5
Moyenne 1996/97	213	1 283	6

Les nouvelles coordonnées Lambert des sommets de la carte sont ($x_{\min}$: 517,53 - $x_{\max}$: 533,62 et $y_{\min}$: 3135,5 - $y_{\max}$: 3155). Un lissage par polynôme du 3^e degré a été appliqué aux isocourbes dans le but d'améliorer l'aspect visuel.

IV.C. Résultats des campagnes d'été

Comme on l'a vu, une des particularité de l'agglomération toulousaine est la diversité des sources de NO₂ avec les rejets automobiles (10 millions de kilomètres effectués chaque jour, sachant par exemple que 105 000 des 1 250 000 déplacements quotidiens en véhicules particuliers sont effectués pour le seul motif domicile-école [Étude sur les déplacements à Toulouse, SMTC, CETE, AUAT 1990]), les rejets domestiques et industriels (chauffage) mais également le rejet de l'unité de fabrication d'acide nitrique située dans l'agglomération, au sud de la ville de Toulouse.

Un système de lavage des fumées a été installé en 1992-1993 et a permis une diminution des rejets d'environ 6 tonnes de NO₂/jour à environ 2 t/jour. Les points d'émission se situent à une hauteur moyenne de 25 à 30 mètres. C'est pourquoi, la zone industrielle sud a, comme pour la campagne d'été 1991, fait l'objet d'une attention particulière en été 1996, puisqu'également 11 tubes ont été placés sur une surface d'environ 3 km². La concentration moyenne du NO₂ mesurée sur l'ensemble de l'agglomération pendant l'été 1996 a été de 22,5 µg/m³.

Les campagnes réalisées en été à Paris, à Madrid, et à Rouen ont indiqué les résultats suivants :

Paris : 45,3 µg/m³
(07 à 09/1989)

Madrid : 41,3 µg/m³
(27/06/1990 au 17/09/1990)

Rouen : 23,0 µg/m³
(01/04/1990 au 30/06/1990)

Toulouse 91 : 30,7 µg/m³
(27/06/1991 au 17/09/1991)

Toulouse 96 : 22,5 µg/m³
(20/06/1996 au 24/09/1996)

Sur les 138 sites validés de la campagne d'été 1996 et les 124 sites validés de la campagne d'été 1991, seuls 117 sites sont comparables (à cause de nouveaux sites ajoutés en 1996).

Les teneurs inférieures ou égales à 20 µg/m³ sont beaucoup plus fréquentes en été 1996 qu'en été 1991. En été 1991, elles étaient essentiellement comprises entre 20 et 40 µg/m³. En été 1996, par contre, on constate que les fortes concentrations en NO₂ se sont déplacées plutôt vers des zones du centre ville, et que le site sur la rocade continue à être pollué, mais dans une moindre mesure par rapport à 1991, où les

teneurs en NO₂ sur ce site excédaient les 80 µg/m³.

IV.D. Résultats des campagnes d'hiver

Pour la campagne d'hiver 1991/92, 120 sites ont été validés, contre 144 en hiver 1996/97. La moyenne des mesures de la campagne d'hiver 1991/92 a été de 37,1 µg/m³, contre 32,9 µg/m³ pendant la campagne d'hiver 1996/97. Les campagnes d'hiver sur d'autres villes ont indiqué :

Paris : 49,1 µg/m³
(10/1989 à 01/1990)

Madrid : 45,4 µg/m³
(21/11/1990 au 26/02/1990)

Rouen : pas de valeur pour l'hiver

Toulouse 91/92 : 37,1 µg/m³
(01/1992 au 04/1992)

Toulouse 96/97 : 32,9 µg/m³
(21/12/1996 au 16/04/1997)

Comme pour la campagne d'hiver 1991/92, on peut noter que les concentrations sont restées relativement constantes tout au long de la période hivernale 1996/97 (coefficients de variation plus faibles en hiver 1996/97 (24,6 %) qu'en été 1996/97 (25,8 %)). Ceci peut être dû à une faible variation du trafic automobile pendant cette période, mais également par une activité photochimique faible et peu variée (laquelle joue un rôle sur l'équilibre des oxydes d'azote).

Sur les 144 sites validés de la campagne d'hiver 1996/97 et les 120 sites validés de la campagne d'hiver 1991/92, seuls 114 sites sont comparables (nouveaux sites ajoutés en 1996/97). Les concentrations moyennes se sont transférées d'une gamme comprise entre 20 et 60 µg/m³ en hiver 1991/92, à une gamme entre 20 et 40 µg/m³ en hiver 1996/97. Bien que l'on n'atteigne pas encore les teneurs estivales de 1996/97, où les concentrations étaient essentiellement comprises entre 0 et 20 µg/m³, l'évolution en cinq ans des teneurs hivernales tend à la baisse.

Pour la campagne d'hiver 1996/1997, on constate également que les fortes concentrations en NO₂ se sont déplacées plutôt vers des zones du centre ville par rapport à la campagne d'hiver 1991/1992. Pour les périodes hivernales, la pollution automobile n'a que peu régressé dans le secteur de la rocade en cinq ans (la plus grande fluidité de la rocade due à l'aménagement du carrefour d'Empalot a sans doute été compensée par l'augmentation du trafic).

IV.E. Comparaison ÉTÉ/HIVER des concentrations moyennes

Les concentrations hivernales en NO₂ sont systématiquement plus élevées que les concentrations estivales. Ceci peut être dû à l'apport complémentaires de rejets de NO₂ par le chauffage, et/ou à une diffusion plus difficile (inversion de température, brouillards...).

De plus, d'une campagne à l'autre, toutes saisons confondues, les teneurs en NO₂ ont notablement baissé.

En ce qui concerne les écarts relatifs au sein des différentes campagnes, on remarque qu'en majorité, ils sont inférieurs à 10 %. Les écarts relatifs supérieurs à 20 % sont plus fréquents en hiver, où l'on rencontre plus de circulation, de chauffages, de combustions..., et une moins bonne dispersion. Les variations ont été moins importantes durant la campagne 1996/97, avec des écarts relatifs faibles (< 10 %) plus nombreux qu'en 1991/92. Deux raisons principales expliquent cette amélioration dans l'homogénéité des sites : nouveaux sites pertinents, diminution de la pollution.

Tous sites confondus, même s'il est délicat de « moyenner » les périodes et de les comparer, les teneurs moyennes en NO₂ ont diminué en cinq ans de manière non négligeable d'environ - 15 %.

Les moyennes site par site (128 sites comparables), pour la somme « été + hiver » de chaque campagne, donnent des résultats identiques à ceux obtenus tous sites confondus.

Ici, on a « Été + Hiver 1991/92 » : 32,9 µg/m³ contre 33,5 µg/m³ ; et « Été + Hiver 1996/97 » : 27,9 µg/m³ contre 28,3 µg/m³, les écarts de - 15,2 % dans un cas et de - 15,5 % dans l'autre sont absolument comparables.

En éliminant les 24 sites les plus touchés par la proximité de la pollution industrielle du sud toulousain, on obtient : 28,8 µg/m³ pour « été + hiver 1991/92 » et 26,7 µg/m³ pour « été + hiver 1996/97 », dont l'écart devient alors -7,3 % contre -15,2 %. Les moyennes de ces seuls 24 sites sont de 51 µg/m³ pour « été + hiver 1991/92 » et de 33 µg/m³ pour « été + hiver 1996/97 », soit une diminution de - 35,3 % en cinq ans : elle est très importante et influe sur la

diminution globale des teneurs en NO₂ de l'ensemble de l'agglomération.

Selon la saison, les concentrations en NO₂ ne sont pas distribuées de la même manière. En été, le nombre des concentrations en NO₂ inférieures à 20 µg/m³ est plus important qu'en hiver, où les teneurs un peu plus élevées, comprises entre 20 et 40 µg/m³, ont été les plus nombreuses.

Nous estimons que la pollution industrielle provient majoritairement de la zone chimique sud, et que la pollution automobile provient surtout du centre de Toulouse, où la circulation est plus confinée et moins fluide globalement que sur les voies rapides qui entourent la ville.

En été 1996, par rapport à l'été 1991, c'est la pollution automobile qui prime sur la pollution industrielle : le nombre de véhicules a augmenté en cinq ans, alors que l'unité chimique de la zone sud a procédé à un lavage de ses fumées. Pour l'hiver 1996/97, par rapport à l'hiver 1991/92, c'est aussi globalement la pollution automobile qui prime sur la pollution industrielle, bien que dans le cas de l'hiver, les origines de la pollution semblent plus diversifiées.

En ce qui concerne les sites les plus touchés par la pollution automobile, seul le site du Boulevard Carnot N° 85 peut être comparé à la fois pour les deux saisons : il a diminué en été de plus de 20 %, alors qu'il a augmenté en hiver de plus de 30 %... son évolution globale est donc à la hausse. Ce comportement peut s'expliquer par la forte augmentation du trafic automobile tout au long de ces cinq années, qui s'est moins jugulé en ville que sur les rocades où il est plus fluide. Seule une étude ultérieure avec tous les points du centre ville nous permettra d'établir un bilan exact de la pollution d'origine automobile de Toulouse, car bien que la fréquentation des transports en commun et du métro en particulier (les chiffres ci-dessous proviennent de la SEM-VAT) soit de plus en plus importante, on sait que parallèlement le parc français des véhicules particuliers ne cesse d'augmenter (données du Comité des Constructeurs Français d'Automobiles).

Année	Déplacements bus + métro	Déplacements métro	Parc automobile français
1993	44 200 000	—	1980 : 21 791 000 véhicules
1994	50 800 000	20 778 000	1985 : 24 675 000 véhicules
1995	51 500 000	21 572 346	1990 : 28 109 000 véhicules
1996	54 000 000	22 960 817	1995 : 30 168 000 véhicules
1997 (au 30/10)	—	18 639 000	1996 : 30 526 000 véhicules

En ce qui concerne la pollution automobile sur les rocades, les teneurs en NO₂ ont globalement diminué, bien davantage en été (- 47,8 %) qu'en hiver (- 10,4 %), ce qui tend à montrer que l'aménagement du carrefour d'Empalot a permis une plus grande fluidité du trafic automobile, bien que le parc des véhicules particuliers n'ait cessé d'augmenter.

L'analyse de la pollution d'origine industrielle est plus facile à effectuer, car les points de mesures situés en zone sud se retrouvent quasiment tous d'une étude à l'autre. Leur comparaison nous amène à constater une diminution flagrante pour la vingtaine de sites les plus touchés ([NO₂] > 45 µg/m³) : - 38 % en hiver et - 45,3 % en été, en relation avec la dépollution industrielle.

V. Comparaison des concentrations trouvées aux valeurs réglementaires de la directive européenne

Bien que la méthode de mesure décrite dans la directive européenne du 7 mars 1985 réglementant les teneurs en NO₂ dans l'atmosphère soit totalement différente de celle des échantillonneurs passifs, nous avons essayé de situer les teneurs trouvées sur les sites de mesures étudiés par rapport aux valeurs limite et guide de la norme CEE. Rappelons ses prescriptions :

Valeur limite (sur une année civile)	Valeurs guides (sur une année civile)
- P98 des valeurs moyennes horaires < 200 µg/m ³	- P98 des valeurs moyennes horaires < 135 µg/m ³ - P50 des valeurs moyennes < 50 µg/m ³

Valeur statistique : $P_x = \frac{\text{Percentile } x}{\text{valeur non dépassée sur } x \% \text{ des mesures}}$

V.A. Le réseau de mesures de l'ORAMIP

Le réseau actuel de l'ORAMIP (au 1^{er} décembre 1997) comporte 8 sites fixes sur l'agglomération toulousaine sur lesquels des mesures du NO₂ sont effectuées : stations N° 1 (Colomiers depuis 1978), N° 2, 3 et 4 (Pompaje, CHU Rangueil, et Ecole Maurice Jaquier depuis 1982), N° 8 (Rue de Metz depuis 1991), N° 5, 7, et 10 (Place Saint-Cyprien, Ecole Léo Lagrange, et AFPA depuis 1993). Des études temporaires ont eu lieu de 1986 à 1991 à Portet sur Garonne, Fenouillet, Aucamville et Chemin Cadène à Toulouse.

V.B. Valeur limite

KUHNER (1983) a indiqué que le Percentile 98 était relié à la moyenne annuelle par un fac-

teur généralement compris entre 2,3 et 2,8. Nous avons donc calculé pour chacune de nos stations de mesures le ratio P98 / moyenne annuelle pour les années 1985 à 1996.

Sur ces 12 ans, la moyenne des ratios est égale à 2,9, alors qu'elle était de 3,7 jusqu'en 1992.

On constate qu'à partir de 1992 (année des premiers travaux de dépollution, comme on l'a vu), les Percentiles 98 ont nettement diminué, tendant vers les valeurs indiquées par KHUNER, ce qui peut être tout à fait relié à la diminution des émanations d'oxydes d'azote de l'unité chimique. Ainsi, de 1992 à 1996, on constate que pour la majorité des stations de l'ORAMIP, les ratios P98/moyenne annuelle tendent tous vers les valeurs de KHUNER, soit entre 2,3 et 2,8, alors qu'ils en étaient loin quelques années auparavant.

V.C. Valeurs guides

Les valeurs guides sont définies par le Percentile 98 (P98 < 135 µg/m³) et le Percentile 50 (P50 < 50 µg/m³) des données horaires sur une année de mesures. La concentration moyenne obtenue sur un site par la méthode des tubes à diffusion s'apparente à une valeur moyenne.

La valeur moyenne du ratio moyenne annuelle/Percentile 50 est relativement constante mais présente des écarts importants selon les sites. Pour l'étude 1991/92, en supposant « Percentile 50 = moyenne annuelle », le risque de dépassement de la valeur guide se trouvait dans les zones délimitées par les isocourbes de 50 µg/m³, concernant les zones du quartier du Toec, du quartier du Boulevard Carnot, et de la zone chimique sud. Il convenait de pondérer ces affirmations car certains critères pouvaient avoir affecté les résultats (erreurs analytiques, oublis, météorologie...). Par ailleurs, toute modification des rejets (urbanisation, création ou déviations d'axes de circulation importants, ...) aurait inévitablement une incidence sur la distribution du dioxyde d'azote, c'est ce qu'il a été constaté cinq ans après.

L'intérêt de la reconduction de cette même étude, est que lors de l'analyse la nouvelle campagne 1996/97, lorsqu'on suit le même raisonnement, on constate que les quartiers concernés par les isocourbes de 50 µg/m³ ne sont plus les trois mêmes zones que précédemment : une seule zone demeure essentiellement touchée par ces fortes concentrations en NO₂, les sites du Boulevard Carnot. Les fortes concentrations dans la zone sud et le quartier du Toec sont devenues presque inexistantes. En 1996/97, la majorité de la pollution est donc constatée en centre ville, ce qui confirme la prépondérance de la pollution d'origine automobile, contrairement à ce qu'il était observé cinq ans auparavant, où la pollution était principalement d'origine industrielle.

V.D. Evaluation critique de la conception du réseau

La directive européenne du 7 mars 1985 demande de réaliser des mesures dans les endroits où le risque de dépassement de la valeur limite est le plus fort, elle distingue deux sortes de sites : les sites sous influence directe de pollution automobile importante, et les sites situés dans des zones plus étendues soumises aux émissions de sources fixes. La commission européenne préconise une stratégie de surveillance basée sur le critère de maximum de pollution, le critère d'exposition (risque individuel d'exposition dans des zones très fréquentées) et le critère de représentativité (densité de stations NO_2 par rapport à la population : 1 station pour 16 km^2 ou 50 000 habitants).

L'agglomération toulousaine a la particularité d'avoir des émissions industrielles à proximité de zones fortement habitées, ce qui conduit certains sites de mesures à correspondre à la fois aux critères de maximum de pollution et d'exposition. Comme on l'a vu, l'ORAMIP surveille depuis maintenant près de 15 ans les teneurs en NO_2 dans l'environnement de la zone industrielle sud de Toulouse, avec des stations de proximité industrielle directe (N° 2 et N° 10, elle-même également de proximité automobile par la rocade), des stations urbaines denses (N° 4 et N° 7) et une station d'observation (N° 3). Tous les sites de mesures susceptibles de dépasser la valeur limite sont-ils couverts par ces capteurs ?

Avant la réalisation de la première étude en 1991/1992, le nombre de stations de mesures en continu du NO_2 sur l'agglomération de Toulouse était de 5 (N° 1, 2, 3, 4 et 8). Jusqu'en 1992, parmi les 3 sites de mesures situés en zone sud, seul celui de Pompage Pêch-David avait une valeur annuelle supérieure ou très légèrement inférieure à la directive européenne. En 1993, deux stations de mesures complémentaires ont été mises en place (N° 10 et 7). Ainsi « dopée », la couverture de la zone industrielle sud semble à même de répondre à une surveillance basée sur les exigences de la directive européenne, et ce d'autant que les vents de nord est/est sont rarissimes à Toulouse. *Autres stations fixes mesurant le NO_2* : le site de la Station N° 1, à Colomiers, est plus représentatif d'une pollution urbaine de fond. Le site de mesures en continu de la Station N° 8, Rue de Metz, de proximité automobile, a été installé en Juillet 1991. En Juin 1993, une station de proximité automobile supplémentaire a été mise en place : il s'agit de la Station N° 5 Place Saint-Cyprien. Enfin, la Station N° 21 du Centre Culturel des Mazades est opérationnelle depuis début janvier 1997, pour mesurer une pollution urbaine de fond.

VI. Conclusion

La première étude 1991/1992 de la distribution du dioxyde d'azote sur l'agglomération tou-

lousaine par la méthode des échantillonneurs passifs avait été réalisée afin d'apprécier si les mesures en continu réalisées par l'ORAMIP, sur plusieurs sites, permettaient de répondre pleinement à la directive européenne. Comme le préconise la méthode, ce sont essentiellement des sites de fond qui avaient été recherchés. Cependant certains sites de proximité (industriel et/ou automobile) avaient également été étudiés.

Dès cette première étude, la méthode des échantillonneurs passifs avait donné des résultats très satisfaisants. Ainsi, les deux campagnes de mesures 1991/1992 de trois mois chacune (été 1991 et hiver 1991/92) avaient permis d'établir une première cartographie de la distribution du dioxyde d'azote. A cette époque, l'étude avait fait apparaître trois zones susceptibles de dépassement de la valeur limite européenne : la zone chimique sud de Toulouse, la zone du Toec, la zone de Boulevard Carnot. D'une manière générale, les résultats trouvés étaient tout à fait conformes à ce que l'on pouvait attendre, puisque figuraient en pleine agglomération, au sud de Toulouse, un rejet industriel important et une pollution automobile non négligeable.

Ainsi, les plus fortes concentrations de NO_2 ont été trouvées en zone sud, avec une extension à l'est des émissions, compte tenu localement de la prépondérance des vents d'ouest.

Bien avant la conclusion de la première étude, il avait été décidé de doter cette zone de capteurs complémentaires pour pouvoir mieux apprécier tout risque de dépassement de la directive européenne en cet endroit de l'agglomération où le risque de maximum de pollution était le plus élevé. L'étude de 1991/92 avait donc permis d'établir un état des lieux de la pollution par le dioxyde d'azote de l'atmosphère toulousaine. Compte tenu de ces résultats, le réseau de l'ORAMIP dans sa configuration de l'époque semblait donc bien adapté à la surveillance du critère de maximum de pollution selon les recommandations de la commission européenne.

En cinq ans, le schéma urbain toulousain a fortement évolué de la manière suivante : l'unité de fabrication d'acide nitrique du sud toulousain a installé un système de dépollution des fumées faisant passer les émissions d'oxydes d'azote de 6 tonnes/jour à environ 2 tonnes/jour, le carrefour de Langlade, près de cette unité chimique, a été réaménagé en rocade, permettant une circulation automobile plus fluide, en désengorgeant certaines voies de pénétration vers le centre ville, la ligne A du métropolitain a été mise en fonctionnement à Toulouse le 26 juin 1993 alors qu'il n'existait qu'un réseau de transport en commun radial vers le centre ville, et depuis le 1^{er} janvier 1993, les pots catalytiques ont fait leur apparition, permettant de réduire les émissions azotées.

Cette évolution a forcément conduit à des changements dans les données de répartition de

la pollution en dioxyde d'azote. C'est pourquoi nous avons voulu les déterminer, afin d'établir un nouvel état des lieux de ce type de pollution sur l'agglomération.

Une seconde étude a donc été réalisée par l'ORAMIP, en utilisant les mêmes sites de mesures (de nouveaux sites ont cependant été ajoutés), et pendant les mêmes périodes de l'année (été 1996 et hiver 1996/97). La nouvelle cartographie montre bien une modification sensible.

Cette évolution n'est pas due à des conditions météorologiques différentes dans l'une ou l'autre des campagnes de mesures, comme le montre l'examen détaillé des différents paramètres (vitesse et direction des vents, précipitations et ensoleillement).

En moyenne, pour l'ensemble des deux campagnes été et hiver, tous sites confondus, et pour l'ensemble des mesures, les teneurs en NO_2 ont diminué d'environ 15 % en cinq ans. Sur 24 sites de la zone chimique sud en particulier, la diminution en NO_2 en cinq ans a été de plus de 35 %, ce qui a contribué pour moitié à la diminution totale en NO_2 sur l'agglomération. Cependant, cette approche est forcément simplificatrice, car on peut penser que la contribution de GP SA a été beaucoup plus importante, l'impact de ses rejets ne se limitant pas aux zones les plus proches.

Plus généralement, sur 128 sites comparables, on s'aperçoit que pour 70 % des sites les teneurs en NO_2 ont diminué en cinq ans, alors qu'elles n'ont augmenté que pour 30 % d'entre eux.

Du côté de la rocade sud par exemple, la pollution a nettement diminué, par l'action conjuguée de la dépollution industrielle, mais également par la plus grande fluidité du trafic. En certains endroits du centre ville (secteur du boulevard Carnot), elle a en revanche légèrement augmenté, ce qui, compte tenu également des niveaux de concentration déjà élevés, justifie pour l'ORAMIP l'installation prochaine d'un site de mesures en continu.

Entre 1990 et 1996, les résultats de la dernière enquête ménage montrent que le nombre de déplacements a augmenté de 28 % pour les véhicules particuliers, et de 24 % pour les transports en commun. Ceci signifie qu'en dépit des facteurs d'amélioration notables de la qualité de l'air (fréquentation des transports en commun, et du métro en particulier, de plus en plus importante, pots catalytiques, aménagements de carrefour embouteillés tels que Langlade ...), la pollution a tout de même légèrement augmenté en certains points, notamment par le nombre plus important de déplacements de véhicules particuliers. Par ailleurs, il est notoire que les pots catalytiques ne fonctionnent pas de façon optimale moteur froid, alors que les trajets toulousains sont généralement très courts (moins de 4 km environ) et se font donc dans ces conditions « à froid ».

La première étude avait permis de montrer que la méthode des échantillonneurs passifs était

un outil adapté pour la connaissance de l'état de la qualité de l'air d'une agglomération, mais également pour la mise en œuvre d'une stratégie de surveillance.

En associant le nombre d'habitants vivant à l'intérieur de chaque isocourbe de concentration en polluant, ce type d'étude permettrait de définir le vrai niveau de qualité de l'air d'une ville, et donc de qualité de vie de ses habitants. Il serait ainsi possible de comparer les niveaux globaux de pollution en dioxyde d'azote entre différentes villes.

Cette deuxième étude représentait une « première deuxième fois », puisque c'est la première fois qu'une telle étude était à nouveau menée sur des sites absolument identiques.

Les résultats obtenus ont une fois encore été très positifs, puisqu'ils sont en parfaite cohérence avec les changements survenus pendant cette période de cinq ans.

C'est pourquoi l'ORAMIP envisage de reconduire à nouveau ce travail, dans un délai d'environ cinq ans également, afin de pouvoir apprécier l'évolution de la qualité de l'air toulousain.

Références bibliographiques

ATKINS D.H.F., HEALY C., TARRANT J.B. The use of simple diffusion tube samplers for the measurement of nitrogen dioxide in the house using gas or electricity for cooking. *United Kingdom Atomic Energy authority report AERE R 9184*, 1978.

ATKINS D.H.F., LAW D.Y., SANDALLS R., HOUGH A.M., STEVENSON K. The measurement of nitrogen dioxide in the outdoor environment using passive diffusion tube samplers, *United Kingdom Atomic Energy authority report AERE R 12133*, 1986.

HANTGARTNER M., BURRY P., MONN C. *Passive sampling of nitrogen dioxide, sulphur dioxide and ozone in ambient air*, 8th World Clean Air Congress. Den Haag, Holland, 1989.

WILSON A.L. Comparison of passive and chemiluminescence monitors for determining one week average nitrogen dioxide concentration, *Proc. of Indoor Air'87*, Vol. 4, p. 456, Berlin, 1987.

ATKINS D.H.F., QUIRINO I. A survey of nitrogen dioxide in Paris, *Commission of the European Communities*, EUR 13369 EN, 1990.

DE SAEGER E., GERBOLES M., PAYRISSAT M. La surveillance du dioxyde d'azote à Madrid au moment d'échantillonneurs passifs, *Commission of the European Communities*, EUR 14175 EN, 1991.

DELMAS V. Contrôle du NO_2 dans la région de Basse Seine, *Commission of the European Communities*, EUR 14152 EN, 1992.

DELLA MASSA J.P., GERBOLES M., PAYRISSAT M. Etude de la distribution du dioxyde d'azote dans l'agglomération toulousaine par la méthode des échantillonneurs passifs, *Commission of the European Communities*, EUR 15567 EN, 1994.

PALMES E.D., GUNNISON A.F., DIMATTIO J., TOMCZYCK C. Personal samplers for nitrogen dioxide, *Am. Ind. Assoc. J.*, 37, 570-577, 1976.

Monographies scientifiques sur les polluants chimiques. *La pollution par les oxydes d'azote*, Ed. La Documentation Française, Paris, 1974.

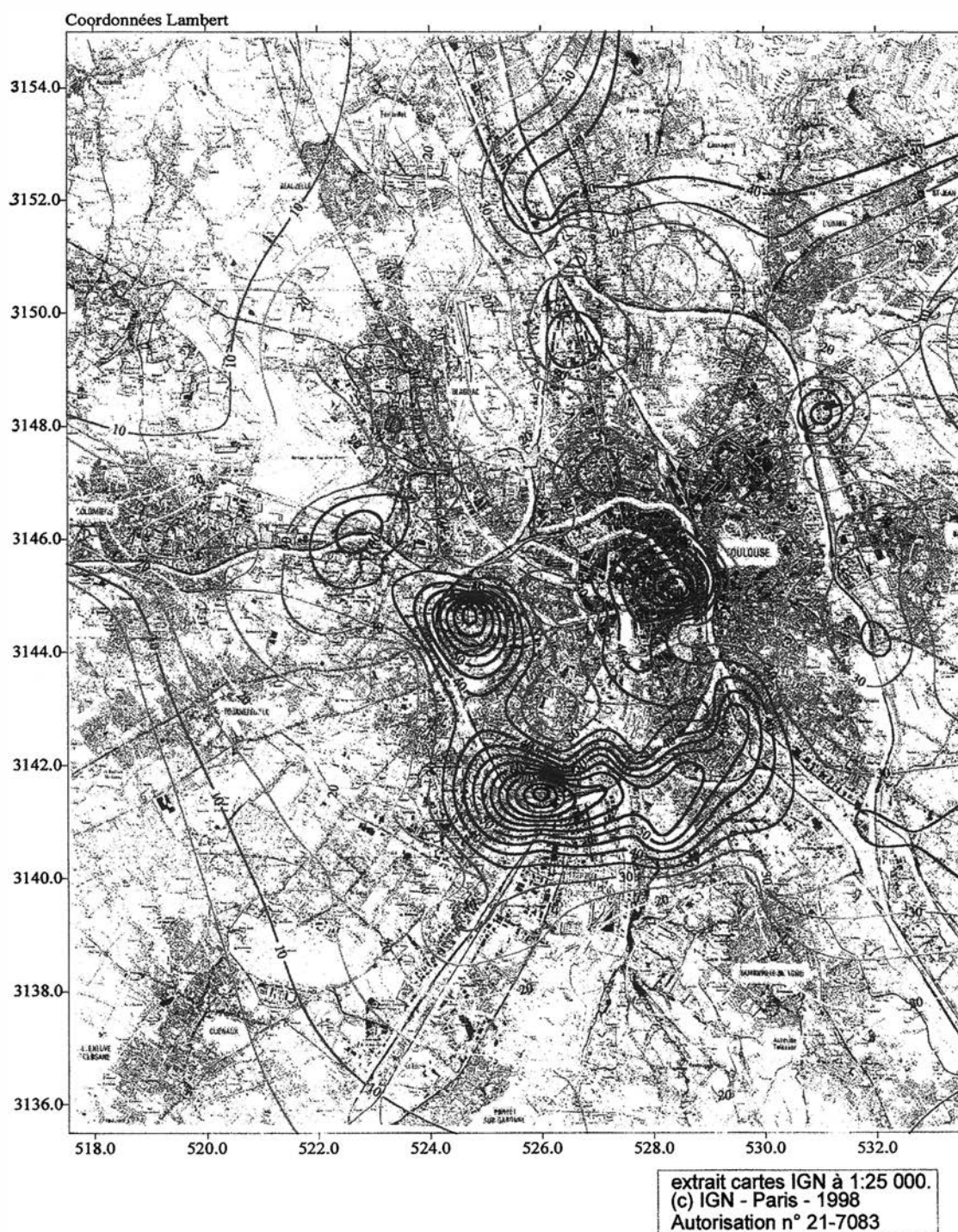


Figure 1.
Année 1991/92 – Moyenne des campagnes totales été 1991 + hiver 1991/92.
Distribution de la concentration en NO_2 (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) sur l'agglomération toulousaine.
1991/92 – Full campaigns average : summer 1991 + winter 1991/92.
 NO_2 concentration distribution ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) over the Toulouse urban area.

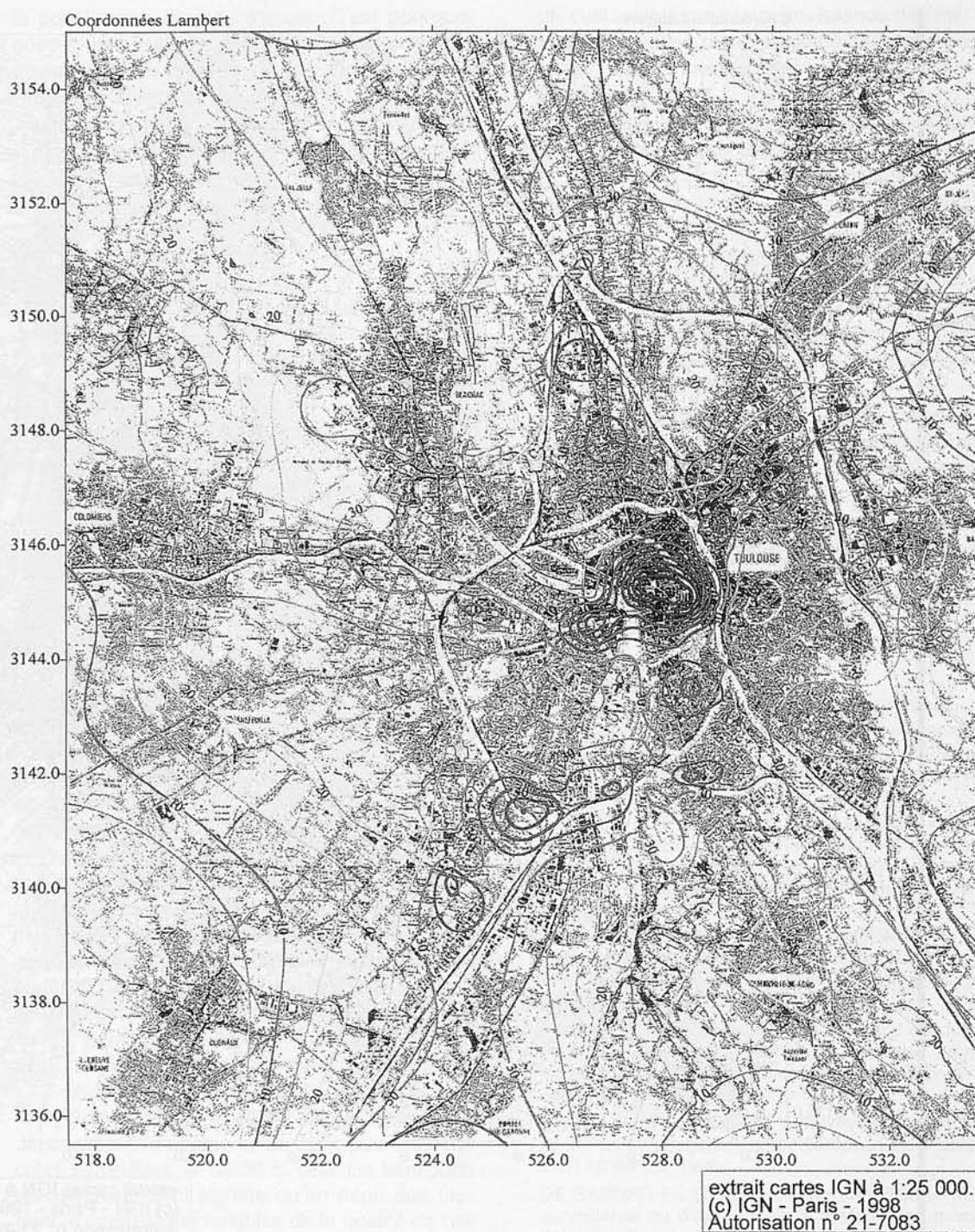


Figure 2.
Année 1996/97 – Moyenne des campagnes totales été 1996 + hiver 1996/97.
Distribution de la concentration en NO_2 (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) sur l'agglomération toulousaine.
1996/97 – Full campaigns average : summer 1996 + winter 1996/97.
 NO_2 concentration distribution ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) over the Toulouse urban area.