



Effets des dépôts atmosphériques de soufre et d'azote sur les sols et les eaux douces en France

Ministère de l'Écologie et du Développement Durable

Anne Christine Le Gall

*Unité de modélisation et analyse économique
pour la gestion des risques
Direction des risques chroniques, INERIS*

22 novembre 2004

Effets des dépôts atmosphériques de soufre et d'azote sur les sols et les eaux douces en France

Ministère de l'Écologie et du Développement Durable

22 NOVEMBRE 2004

ANNE CHRISTINE LE GALL

avec la participation de

ERWIN ULRICH

Réseau national de suivi à long terme des écosystèmes forestiers
Office national des forêts

JEAN-CHARLES MASSABUAU

Station marine d'Arcachon, Université de Bordeaux I

Ce document comporte 112 pages (hors couverture).

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Anne-Christine LE GALL	Régis FARRET	Michel NOMINÉ
Qualité	Ingénieur Unité Modélisation et Analyse Economique pour la Gestion des Risques	Responsable de l'Unité Évaluation Direction des Risques Accidentels	Délégué Scientifique Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

Résumé non technique.....	7
Glossaire et acronymes	10
Glossaire.....	10
Acronymes	15
Acidification et eutrophisation : Introduction	16
Partie A : Approche qualitative et description des mécanismes .	17
1 Définitions.....	17
1.1 Acidification	17
1.2 Eutrophisation.....	18
2 Les cycles naturels des minéraux nutritifs.....	20
2.1 Les éléments minéraux essentiels.....	20
2.1.1 L'azote, N.....	22
2.1.2 Le soufre, S	24
2.1.3 Le potassium, K	25
2.1.4 Le calcium, Ca.....	26
2.1.5 Le magnésium, Mg	26
2.1.6 Le phosphore, P.....	26
2.1.7 Les micronutriments	26
2.1.8 La matière organique	27
2.2 La chimie des processus d'échange des cations	28
3 Processus chimiques d'acidification des sols et des eaux	30
3.1 Les sources atmosphériques d'acidification	30
3.1.1 L'azote atmosphérique.....	30
3.1.2 Le soufre atmosphérique.....	30
3.1.3 Les retombées atmosphériques sèches et humides	30
3.1.4 Dépôts atmosphériques en France	32
3.2 L'acidification dans les sols	34
3.2.1 Mécanismes acidifiants.....	34
3.2.2 Les mécanismes freinant l'acidification.....	36
3.3 L'acidification dans les eaux de surface.....	38
4 Les effets de l'acidification sur les organismes vivants.....	42
4.1 Impacts de l'acidification sur la flore	42
4.2 La toxicité de l'aluminium.....	44
4.3 Impacts de l'acidification sur la faune	46
4.3.1 Faune aquatique.....	46
4.3.2 Faune terrestre.....	47
5 Processus d'eutrophisation.....	48
5.1 Écosystèmes terrestres	48
5.2 Écosystèmes aquatiques	49
Partie B : Approche quantitative et modèles	50

6	La modélisation de l'acidification et de l'eutrophisation	50
6.1	Concentrations critiques et charges critiques : définitions	50
6.1.1	<i>Concentrations critiques</i>	<i>50</i>
6.1.2	<i>Charges critiques et excès</i>	<i>51</i>
6.1.3	<i>Charges critiques empiriques</i>	<i>52</i>
6.2	Les fonctions de charges critiques	53
6.3	Quatre cas de figure.....	55
6.4	Utilisation du concept de charge critique.....	57
6.5	Évolution des modèles de charges critiques et implication pour les cartes d'excès	58
6.6	Les charges critiques dans la modélisation intégrée	62
6.7	Importantes remarques sur l'utilisation des charges critiques	64
6.8	Évolution du concept de charge critique vers les modèles dynamiques.....	65
6.9	Les objectifs des modèles dynamiques	66
7	Les critères biologiques et chimiques.....	69
7.1	Généralités	69
7.2	Critères d'acidification des milieux terrestres et aquatiques.....	70
7.2.1	<i>Exemple : indices d'acidification des eaux</i>	<i>70</i>
7.2.2	<i>Critères utilisés pour calculer les charges critiques d'acidification.....</i>	<i>72</i>
7.3	Critères d'eutrophisation des milieux terrestres et aquatiques	74
8	Les modèles mathématiques.....	77
8.1	Généralités	77
8.2	Équations de base des modèles à l'équilibre.....	77
8.2.1	<i>Charges critiques d'acidification.....</i>	<i>77</i>
8.2.2	<i>Charges critiques d'eutrophisation</i>	<i>80</i>
9	Sources d'incertitudes	82
9.1	Propagation de l'erreur le long de la chaîne de calculs	82
9.2	Hypothèses de conception.....	82
9.2.1	<i>La notion d'équilibre.....</i>	<i>82</i>
9.2.2	<i>Le choix des critères biologiques et chimiques.....</i>	<i>83</i>
9.3	Connaissances insuffisantes des processus pris en compte	83
9.3.1	<i>L'aluminium.....</i>	<i>84</i>
9.3.2	<i>Processus secondaires ou pas ?</i>	<i>85</i>
9.4	Qualité des données	85
	Partie C : Les charges critiques en France	87
10	Observations en France.....	87
10.1	Suivis et recherches	87
10.2	La forêt en France.....	88
10.3	Acidification ou changements climatiques ?.....	89
10.4	Les conséquences d'un siècle de dépôts acides	90
10.4.1	<i>Observations</i>	<i>90</i>
10.4.2	<i>Charges critiques acidifiantes</i>	<i>92</i>
10.5	Écosystèmes terrestres français gravement eutrophisés ?.....	93
11	Années à venir : Peut-on parler de restauration ?	96
11.1	Quelques considérations générales.....	96
11.2	Le cas particulier de la France	97
	Conclusions	100
	Références.....	102

LISTE DES FIGURES

Figure 2-1: Schéma du cycle de l'azote dans les écosystèmes terrestres et aquatiques	22
Figure 2-2 : Le cycle du soufre dans les sols et les eaux de surface.....	24
Figure 2-3 : Différents seuils pour la valeur C/N montrant les processus observés dans chaque gamme.....	27
Figure 2-4 : Exemple d'échanges de cations entre la surface d'une particule de sol et la solution du sol.	28
Figure 3-1 : Représentation schématique des principaux processus contrôlant l'acidification du sol.	34
Figure 3-2 : Représentation schématique de l'évolution de la qualité du milieu aquatique	41
Figure 4-1 : Concentration d'aluminium dans les eaux de surface en fonction de la concentration en ions acidifiants	45
Figure 6-1 : Schéma représentant les relations entre les concepts de concentrations et de charges critiques, les écosystèmes à protéger, les émissions de polluants et leurs dépôts..	50
Figure 6-2 : Schéma représentant l'élaboration d'une charge critique empirique pour un écosystème donné à partir d'observations et de mesures sur le terrain.....	53
Figure 6-3 : Fonction de charge critique pour le soufre et l'azote acidifiant.....	54
Figure 6-4 : Fonction de charge critique acidifiante en relation avec la charge critique eutrophisante.....	55
Figure 6-5: Représentation schématique des différents cas possibles selon les concentrations dans le milieu et les scénarios de dépôts envisagés.....	56
Figure 6-6 : Organigramme de l'organisation de la Convention CEE-NU sur la pollution atmosphérique transfrontière.	58
Figure 6-7 : Évolution des cartes d'excès de charges critiques des écosystèmes forestiers pour l'acidification en fonction des modèles utilisés.....	60
Figure 6-8 : Évolution des cartes d'excès de charges critiques pour l'eutrophisation des écosystèmes forestiers en fonction des modèles utilisés.....	61
Figure 6-9 : Schéma illustrant le principe du « <i>gap closure</i> ».....	63
Figure 6-10 : Évolution schématique des dépôts d'un polluant et des réponses chimiques et biologiques observées sur un écosystème	66
Figure 6-11 : Résultats type de la modélisation dynamique : dépôts annuels admissibles en fonction de l'année cible à partir de laquelle la restauration doit être observée.	67
Figure 6-12 : Résultats type de la modélisation dynamique : cas de l'acidification.....	67
Figure 7-1 : Représentation schématique d'un tableau permettant l'attribution d'une valeur à un indice de biodiversité dépendant de l'acidification d'un milieu.	71
Figure 7-2 : Relation dose-effet type entre un indice de biodiversité et un paramètre physico-chimique du milieu.....	72
Figure 8-1 : Charges critiques acidifiantes choisies par le Royaume Uni (UK), la Slovaquie (SK), la Pologne (PL) et la Belgique (B) pour les feuillus, les conifères et les eaux de surface	79
Figure 8-2 : Charges critiques eutrophisantes et acidifiantes choisies par le Royaume Uni (UK), la Slovaquie (SK), la Pologne (PL) et la Belgique (B) pour les feuillus, les conifères et les eaux de surface.....	81

Figure 10-1 : Pourcentages d'écosystèmes où les charges critiques d'azote eutrophisant sont inférieures aux dépôts (donc d'écosystèmes « protégés ») en 1990 et en 2010.....	95
Figure 11-1 : Les échelles de temps de l'acidification et de la restauration.....	97
Figure 11-2 : Historique des émissions en France de dioxyde de soufre, de NOx et d'ammoniac. .	98

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2-1 : Éléments minéraux essentiels pour les plantes et leurs concentrations typiques dans leurs tissus lors d'une croissance normale	21
Tableau 2-2 : Concentrations limites de macroéléments pour les différents statuts nutritionnels des épicéas dans les aiguilles d'un an.	21
Tableau 3-1 : Apports atmosphériques hors et sous couvert mesurés dans le réseau RENECOFOR entre 1993 et 1996 ou issus des données de diverses mesures entre 1966 et 1990	33
Tableau 3-2 : Niveaux minimum et maximum de dépôts d'azote ammoniacal dans différents réseaux d'études.....	33
Tableau 3-3 : Exemples de taux d'altération des sols	37
Tableau 4-1 : Accroissement radial des arbres dans les forêts françaises entre 1850-1860 et 1986-1990.	43
Tableau 7-1 : Exemples de critères chimiques et biologiques utilisés pour le calcul des charges critiques d'acidité en Europe.....	73
Tableau 7-2 : Critères chimiques d'acidification choisis par différents pays et chercheurs.	74
Tableau 7-3 : Charges critiques pour l'azote eutrophisant et critères biologiques et chimiques qui leur sont associés	75
Tableau 8-1 : Charges critiques d'acidification en France en milieu forestier et pour les ruisseaux ardennais	80
Tableau 8-2 : Valeurs des taux d'azote immobilisé, prélevé par la végétation, dénitrifié dans les sols et lessivé dans les sols européens selon le RIVM et dans les sols français.....	81
Tableau 10-1 : Statistiques des dépôts acidifiants et eutrophisants en France selon les résultats du sous-réseau CATAENAT pondérés par la pluviosité	92
Tableau 10-2 : Pourcentages du territoire français couvert par différentes gammes de charges critiques pour l'azote eutrophisant obtenues par la méthode empirique et par la méthode SSMB.	94

RÉSUMÉ NON TECHNIQUE

À partir des années 1970, les dépôts atmosphériques de soufre ont été désignés comme responsables du dépérissement de certaines forêts en Allemagne et en Scandinavie. Le lien avec les émissions venant des activités industrielles a été rapidement fait. Il est maintenant établi que les oxydes de soufre, les oxydes d'azote, l'ammoniac et le chlore rejetés dans l'environnement par les activités humaines ont tous un effet acidifiant sur les sols et les eaux naturelles. Ces substances, transportées dans l'atmosphère sur de longues distances, forment une pollution diffuse et transfrontière.

Le passage entre rejets anthropiques et acidification des sols et des eaux se fait par étapes. La première est une réaction d'oxydation qui conduit à la formation d'ions sulfate et d'ions nitrate. Puis, en présence d'eau, ces ions sulfate et nitrate mais aussi les ions chlorure forment de l'acide sulfurique, de l'acide nitrique et de l'acide chlorhydrique. Ces substances sont déposées avec les particules et les précipitations sur les sols et dans les eaux. Simultanément à l'acidification qui a alors lieu, des réactions chimiques associent le sulfate, le nitrate et les ions chlorure avec les cations basiques (calcium, magnésium, potassium...). Tant qu'il y a des cations dans le milieu, ils limitent l'acidification. Mais la quantité de cations dans le milieu est restreinte et leur régénération n'est pas immédiate.

Les cations sont en effet apportés dans les sols par des processus qui peuvent être irréguliers ou lents, tels que les apports atmosphériques, la dissolution de la roche mère et le recyclage de la matière organique. Quand, dans le sol, la vitesse d'apport des quantités de substances acidifiantes devient supérieure à la production de cations basiques, le milieu s'acidifie. Cette acidification modifie d'abord la chimie des sols : la mobilité des différents composants chimiques des sols est transformée. En particulier, les métaux, dont l'aluminium, ont tendance à passer des particules à l'eau du sol. Il s'ensuit une modification de toute la structure biologique : un des symptômes les plus visibles est le dépérissement des arbres. De façon moins évidente mais simultanée l'écosystème terrestre perd lorsqu'il s'acidifie une grande partie de sa biodiversité. Le recyclage de la matière organique y est alors ralenti (ce qui entretient l'acidification) et le sol perd de sa fertilité et de sa résistance à l'érosion.

L'état d'acidification des sols influe sur l'acidification des eaux de surface. Les sources qui émergent dans des zones où le sol a perdu ses réserves en cations basiques sont acides. Le symptôme le plus apparent de l'acidification des eaux de surface est la disparition des poissons et de façon plus générale une perte de biodiversité. Dans certaines régions, on a observé une tendance à une amélioration du point de vue de l'acidification - mais les concentrations en cations basiques sont parfois encore à la baisse. Ces éléments minéraux, essentiels pour la croissance des plantes, sont aussi essentiels à la survie des organismes aquatiques car leur physiologie est basée en partie sur le transfert d'eau et de ces éléments à travers des membranes. Ces transferts sont perturbés si les concentrations en ions dans les eaux varient excessivement.

En plus de leur effet acidifiant, les substances azotées (nitrate et ammoniac) peuvent avoir un effet eutrophisant : l'azote est un nutriment habituellement limitant la croissance des plantes mais sa présence en excès favorise la croissance de plantes communes au détriment de celles, plus rares, qui s'accommodent de conditions moins riches. De plus, la croissance des arbres s'est accélérée au cours des dernières décennies en partie à cause de cet azote, en partie à cause du changement climatique (augmentation de la teneur en gaz carbonique de l'atmosphère, de la longueur de la période de croissance annuelle, de la température). Mais cette croissance rapide crée des arbres avec un rapport feuillage/racine plus grand, ce

qui entraîne une plus grande fragilité face aux intempéries. L'accélération de la croissance des plantes augmente aussi leur besoin en éléments minéraux, tels que les cations basiques. Un effet secondaire de l'eutrophisation peut donc être une plus grande sensibilité à l'acidification. Enfin, la composition des tissus des plantes semble avoir été modifiée par la pollution azotée : les concentrations en azote ont augmenté dans les feuilles, qui en deviennent plus attrayantes pour les herbivores et les parasites. L'eutrophisation des écosystèmes terrestres est donc à la fois un problème de perte de biodiversité et un problème de fragilisation des écosystèmes vis-à-vis des dépôts acidifiants, des parasites et des intempéries.

L'eutrophisation des eaux douces est souvent liée à des rejets locaux de phosphore via les eaux usées. Toutefois, certaines études récentes suggèrent qu'il existe un impact des apports en azote sur les eaux faiblement minéralisées. Les augmentations en azote modifient la distribution des espèces présentes et compromettent donc la biodiversité, avant même qu'il y ait acidification du milieu.

Quelle a été la réaction de la communauté internationale aux manifestations de l'acidification et de l'eutrophisation ? La Convention de Genève sur la pollution atmosphérique à longue distance a été mise en place pour coordonner la lutte contre cette pollution. C'est dans le cadre de cette Convention qu'ont été élaborés plusieurs protocoles qui ont exigé de chacun des pays signataires qu'ils baissent leurs émissions en soufre et en autres polluants, tels que les précurseurs de l'ozone ou les oxydes d'azote. Le travail de la convention est organisé en groupes de travail, dont le groupe de travail sur les effets (« *working group on effects* », WGE) au sein duquel les données sur chaque pays sont recueillies et transformées en cartes identifiant les zones où les probabilités de dégâts sont les plus fortes. Ces probabilités de dégâts sont exprimées grâce au concept de charges critiques.

La charge critique est définie comme « une estimation quantitative de l'exposition à un ou plusieurs polluants en dessous de laquelle des effets nocifs significatifs sur des éléments sensibles spécifiés de l'environnement n'apparaissent pas dans l'état actuel des connaissances ». Si le flux de polluant est supérieur à la charge critique sur un site donné, celui-ci est endommagé ou le sera probablement à terme. La comparaison des cartes de charges critiques avec des cartes de dépôts permet donc de déterminer les zones où la probabilité d'impact est la plus grande. Mais ni la charge critique, ni son dépassement ne permettent de prédire l'ampleur de l'effet attendu.

Les calculs de charges critiques à l'échelle des pays ou du continent européens sont bien entendu tributaires des connaissances que nous avons des processus d'acidification et d'eutrophisation, de leurs effets sur les écosystèmes et aussi de notre capacité à mettre ces processus sous forme d'équations mathématiques pour les quantifier. Il reste difficile de prendre en compte certains processus mal compris ou très variables tels que la dissolution des minéraux ou la spéciation de l'aluminium dans les sols. Tout aussi fondamentales, et incomplètes, sont les connaissances en écotoxicologie qui sous-tendent toute modélisation d'impact sur un milieu vivant, et en particulier celle des charges critiques. De façon à homogénéiser les résultats obtenus sur l'ensemble de l'Europe et de façon à réduire les incertitudes sur leurs résultats, un effort est encore nécessaire pour valider les modèles biologiques existants ou pour en améliorer la représentativité.

Une autre façon d'améliorer les prédictions en ce qui concerne l'acidification et l'eutrophisation sera de s'affranchir de l'hypothèse selon laquelle les écosystèmes décrits sont à l'équilibre. Cette hypothèse est actuellement à la base de tous les calculs de charges critiques. Pourtant, les cours d'eau, les sols et les forêts sont des environnements

essentiellement dynamiques dont la réponse est fondamentalement déterminée par leur histoire. Le développement de modèles dynamiques qui prennent en compte l'évolution des processus dans le temps est en cours.

Quelles que soient les limites des connaissances avec lesquelles les modèles ont été construits, ceux-ci ont eu le mérite d'aider à établir les protocoles de réductions d'émission de polluants. Les résultats sont concluants pour le soufre dont la réduction des émissions semble avoir été suivie par une réduction de l'acidification d'écosystèmes à travers l'Europe. Toutefois, est-ce à cause de la persistance d'émissions de composés azotés ou à cause du pouvoir de rétention des sols, les problèmes d'acidification n'ont pas disparu et les modèles prédisent que ce problème persistera probablement dans certaines zones au moins pendant la ou les décennies à venir.

À l'heure actuelle, le soufre est en passe de perdre sa position de principal acidifiant car la part relative attribuée aux composés azotés est en augmentation. D'autre part, on constate que, sur un même site, les charges critiques de l'azote eutrophisant sont souvent inférieures aux valeurs maximums des charges critiques de l'azote acidifiant. C'est donc de plus en plus les apports excessifs en azote qui conduisent aux dysfonctionnements des écosystèmes. La lutte contre ces dysfonctionnements passe aujourd'hui par des contraintes plus importantes sur les émissions de produits azotés.

Il est à noter enfin que les charges critiques acidifiantes pour les milieux aquatiques sont proches de celles des milieux terrestres. Dans l'établissement des limites des émissions, il est donc nécessaire de prendre en compte à la fois les charges critiques pour les eaux de surface et celles pour les milieux terrestres.

En France, les calculs de charges critiques suggèrent que les régions les plus sensibles à l'acidification sont : les Ardennes, les Vosges, l'Alsace, la Moselle, l'est du Massif central, les Landes, le sud-ouest de l'Ile de France, la Bretagne, la Normandie et ponctuellement la Champagne, le rebord ouest du Massif Central, les Pyrénées, c'est à dire en premier lieu les zones granitiques. Quant à l'eutrophisation, elle concerne la quasi-totalité de la France : les cartes de charges critiques de l'azote eutrophisant suggèrent que plus de 90 % de la superficie de la France est soumise à des dépôts qui entraînent ou entraîneront l'eutrophisation des écosystèmes.

Ces résultats récents ont été obtenus grâce au travail de plusieurs équipes, en particulier à l'université de Toulouse et à l'ONF à travers le réseau de surveillance RENECOFOR, soutenus par l'ADEME. Ce travail doit se poursuivre à la fois dans l'objectif de développer des modèles spécifiques aux conditions géologiques et climatiques de la France et dans l'objectif de participer activement aux groupes de travail de la Convention de Genève sur le thème de la pollution atmosphérique transfrontière. L'application de modèles dynamiques à l'élaboration de politiques de réduction des émissions de polluants en Europe requiert une réflexion approfondie. Celle-ci devra porter d'une part sur la présentation et l'interprétation de leurs résultats, et d'autre part sur leur exploitation au sein d'une stratégie de modélisation intégrée. Ce sujet évolue rapidement et sera au cœur des débats à venir pour la pollution transfrontière, au même titre que les discussions sur les nécessaires réductions d'émissions azotées.

GLOSSAIRE ET ACRONYMES

Glossaire

Les termes en gras sont les termes courants en français. Pour certains termes techniques, leur équivalent en anglais a été rajouté de façon à éviter toute confusion sur la façon dont ont été traduites certaines informations.

Absorption : Processus chimique ou biologique au cours duquel un élément ou une molécule est assimilé au sein d'un corps solide (particule ou matière vivante). À ne pas confondre avec l'adsorption qui est un processus de surface.

Acidité : Propriété d'une solution ou d'un sol qui est déterminée par la concentration en protons H^+ qui y est présente. Elle se mesure par son pH défini par : $pH = -\log [H^+]$, où $[H^+]$ est la concentration en protons.

Acidité d'échange : $AE = Al^{3+} + H^+$. Unité : éq/100g de terre fine (Baize, 2000).

Acidiphile : Se dit de plantes qui poussent préférentiellement dans des milieux acides.

Adsorption : Processus physique par lequel un ion ou une molécule est retenu à la surface d'une particule ou d'un solide. À ne pas confondre avec l'absorption qui est un processus d'assimilation.

Air du sol : C'est l'air contenu entre les particules du sol. Cet air représente en moyenne 35 % du volume total d'un sol. Sa composition diffère sensiblement de l'atmosphère au-dessus du sol à cause de la dégradation de la matière organique par les bactéries du sol. Celles-ci y consomment de l'oxygène et y relâchent du dioxyde de carbone. Il en résulte que l'oxygène occupe environ 15 % du volume de l'air du sol et le dioxyde de carbone plusieurs pour cents. Par comparaison, l'oxygène représente 21 % du volume de l'air que nous respirons et le dioxyde de carbone seulement 0,03 % (Manahan, 1994).

Alcalinité : C'est la somme de toutes les bases d'une solution qui sont titrables avec un acide fort. L'alcalinité est donc une mesure du pouvoir tampon d'une eau. De façon générale, on a : Alcalinité = S cations basiques - S anions acides. Selon les caractéristiques du milieu, certains ions peuvent ou pas être négligés. Ainsi, dans les sols minéraux l'alcalinité dépend essentiellement de la dissolution des carbonates. L'alcalinité de l'eau du sol est alors (en éq l^{-1}) : $Alcalinité = OH^- + HCO_3^- + CO_3^{2-} - H^+$. Dans les régions où les sols sont acides et organiques, l'alcalinité est aussi fonction de la dissociation des acides organiques faibles et des ions aluminium : $Alcalinité = RCOO^- + HCO_3^- + Al^{3+} + Al_n(OH)_m^{3n-m+} - H^+$ (Party, 1999; Stumm et Morgan, 1981). D'après l'US Geological Survey, l'alcalinité se mesure après filtration de la solution alors que la capacité à neutraliser les acides se mesure dans une solution non filtrée. Unité : équivalent de charge par litre de solution, éq l^{-1} .

Altération de la roche (« *weathering* ») : Processus d'érosion par lequel les éléments présents dans la roche mère sont transférés dans le sol et les eaux. Ils sont ainsi rendus disponibles pour les plantes et les animaux aquatiques.

Anion : Ion dont la charge électrique est négative.

Anions acides : Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^- , F^- , acides organiques (habituellement représentés par $RCOO^-$, où R est une chaîne carbonée et COO^- est la fonction acide).

Azote réactif : Toute forme d'azote présente dans l'atmosphère, le sol, les eaux et qui est active d'un point de vue biologique, photochimique et radiatif. L'azote réactif comprend les formes réduites de l'azote inorganique (telles que NH_3 et NH_4^+), les formes oxydées de

l'azote inorganique (les NO_x tels que N₂O, NO₃⁻, NO₂⁻) et les formes organiques (telles que l'urée, les amines, les protéines ; Cowling *et al.*, 2001). Par opposition, l'azote non réactif est le diazote N₂. Les sources les plus importantes d'azote réactif sont la fixation de N₂ par les micro-organismes, la formation d'azote réactif par la foudre et par l'activité anthropique (Galloway *et al.*, 1996). La quantité d'azote réactif produite annuellement par l'activité anthropique est approximativement égale à la quantité d'azote fixé par les micro-organismes (Galloway, 1995).

Bases échangeables : Quantité de cations basiques (Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺) contenus dans le sol. Voir « capacité d'échange cationique ».

Biodiversité : La variété de la vie dans toutes ses formes, à tous ses niveaux et dans toutes ses combinaisons. Le terme comprend la diversité des écosystèmes, la diversité des espèces et la diversité génétique (IUCN *et al.*, 1991).

Canopée (« *canopy* ») : Ensemble des branches et feuilles au-dessus du sol.

Capacité d'échange cationique, CEC (« *cation exchange capacity* ») : Les argiles minérales ont une charge globale négative qui est compensée par l'association de cations à la surface des particules. Ces cations n'ont pas de place spécifique dans le réseau cristallin et peuvent donc être des cations relativement larges tels que NH₄⁺, K⁺ ou Na⁺. Ces cations sont appelés cations échangeables car ils sont échangeables avec d'autres cations dans l'eau. La capacité d'échange cationique (CEC) est la quantité maximum de cations qu'un sol peut absorber. Elle est dépendante du pH et des conditions redox du sol et est liée à ses teneurs en argile et en matière organique. Plus la CEC est grande, plus elle permet au sol de résister à l'acidification. Ce pouvoir tampon peut être important mais n'est pas illimité. Un sol dont la capacité d'échange cationique est forte a une forte probabilité d'être fertile.

$$CEC = S \text{ Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+} + \text{K}^{+} + \text{Na}^{+} + \text{Mn}^{2+} + \text{Fe}^{2+} + \text{Al}^{3+} + \text{H}^{+}$$

Unité : éq kg⁻¹ de terre fine (Baize, 2000; Manahan, 1994).

Capacité de neutralisation des acides, ANC (« *acid neutralising capacity* ») : C'est une mesure du pouvoir tampon d'un milieu aqueux. Dans les eaux douces peu chargées en particules, l'ANC est équivalente à l'alcalinité.

$$ANC = S \text{ cations basiques} - S \text{ anions acides.}$$

Si ANC = 0, le milieu a perdu son pouvoir tampon.

D'après l'US Geological Survey, l'alcalinité se mesure après filtration de la solution alors que la capacité à neutraliser les acides se mesure dans une solution non filtrée. Unité : équivalent de charge par litre de solution, éq l⁻¹.

CATAENAT : Charge Acide Totale sur les Écosystèmes Naturels Terrestres. Sous réseau du réseau RENECOFOR dans lequel sont mesurés les dépôts atmosphériques en plein champ et en forêt dans 27 placettes depuis 1993 et des solutions de sol à 20 et 70 cm de profondeur dans 16 placettes¹. Le brouillard a aussi été échantillonné dans 4 sites montagnards.

Cation : Ion dont la charge électrique est positive.

¹ Initialement, les solutions de sol étaient échantillonnées dans 17 placettes ONF, ed. (1996). "Notice de présentation du Réseau National de suivi à long terme des Ecosystèmes Forestiers", 38 pp. Office National des Forêts, Département des Recherches Techniques. ISBN 2 - 84207 - 021 - 6. . L'une d'entre elle a été perdue pendant la tempête de l'hiver 1999 et est en cours de réhabilitation.

Cations basiques, BC (« *base cations* ») ou **cations échangeables**:

BC = $\text{Ca}^{++} + \text{Mg}^{++} + \text{K}^+ + \text{Na}^+$. Unité : eq kg^{-1} de terre fine (Baize, 2000).

cmol/kg : Centimole de charge par kilogramme de sol sec, équivalent à $0,01 \text{ eq kg}^{-1}$.

Complexe adsorbant (« *adsorption complex* ») : L'ensemble des substances organiques et inorganiques présentes dans le sol et qui sont capables d'adsorber des ions ou des molécules ([http : //www.soils.org/sssagloss/search.html](http://www.soils.org/sssagloss/search.html)).

Complexer : Former des liens chimiques, généralement faibles et donc réversibles, entre deux molécules. La molécule complexée est alors comprise au sein d'une structure plus grosse et ses propriétés chimiques sont modifiées. La molécule complexée est souvent un métal, la molécule complexante, ou ligand, peut être inorganique ou organique.

Conditions redox : Caractéristiques chimiques du milieu qui déterminent s'il est oxydant ou s'il est réducteur. En milieu oxydant, en général en présence d'oxygène, l'ammoniac est transformé en nitrate et le dihydrogène de soufre en sulfate. En milieu réducteur comme en profondeur dans les sols ou les sédiments, les réactions inverses peuvent avoir lieu.

Eaux de surface : Ensemble des eaux douces, des cours d'eau, des lacs, étangs, mares ... Ce terme exclut les eaux souterraines, les eaux saumâtres des marais littoraux et les eaux de mer.

Écosystème : Ensemble structuré englobant une communauté vivante (biocénose) et l'habitat dans lequel elle vit (biotope).

[http : //webworld.unesco.org/water/ihp/db/glossary/glu/FRDIC/DICECOSY.HTM](http://webworld.unesco.org/water/ihp/db/glossary/glu/FRDIC/DICECOSY.HTM)

Équivalents : Unité qui permet de mesurer une quantité d'ions et qui prend en compte leur charge électrique. Rapportés à un volume de liquide ou à un poids de sol sec, les équivalents peuvent être utilisés pour caractériser des concentrations (eq l^{-1} ou eq kg^{-1}) Pour les cations monovalents (K^+ par exemple), la concentration en eq l^{-1} ou en eq kg^{-1} est égale à la concentration exprimée en moles par litre ou par kilogramme. Pour les autres ions (cations, Ca^{++} par exemple, ou anions, OH^- par exemple) la concentration en équivalents par litre ou par kilogramme est égale au produit de la valeur absolue de leur charge par leur concentration exprimée en mole par litre ou par kilogramme. Les deux unités, eq et mol_c , sont interchangeables. Le tableau ci-dessous donne quelques exemples de conversion entre différentes unités.

	mol	eq	g
SO_4^{2-}	1	2	16 g de S
NO_3^-	1	1	14 g de N
NH_4^+	1	1	14 g de N

Fertilité : Le concept de « fertilité chimique du sol » représente à la fois l'ensemble des nutriments disponibles pour la végétation et les réserves qui déterminent la fertilité à moyen et long terme (Augusto *et al.*, 2000b).

Gibbsite, Constante d'équilibre K_{Gibb} : Le gibbsite est un hydroxyde d'aluminium de formule $\text{Al}(\text{OH})_3$ qui est rare sous les climats tempérés. La constante d'équilibre permet de relier quantitativement les concentrations d'aluminium et de protons dans la solution du sol en prenant pour hypothèse que la source principale d'aluminium dans le sol est le gibbsite. Les valeurs maximum recommandées par le « *Mapping manual* » (UBA, 1996) sont au maximum de 950 mg eq^{-2} pour les sols minéraux alors que pour les sols organiques la

valeur minimum est de $9,5 \text{ m}^6 \text{ éq}^{-2}$ et correspond à des sols organiques (Hall *et al.*, 2001). L'unité de cette constante ($\text{m}^6 \text{ éq}^{-2}$) est celle de l'inverse du produit de deux concentrations (éq m^{-3}).

Habitat : Espace dont les éléments caractéristiques sont une communauté de plantes, d'animaux et un groupe de facteurs abiotiques (sol, climat, humidité ...) qui interagissent à une échelle spatiale donnée (Baretta-Bekker *et al.*, 1998).

Héliophile : Organisme qui recherche la lumière.

Horizon : Couche du sol formée par les processus d'érosion. Chaque horizon se différencie des horizons qui l'entourent par sa composition plus ou moins riche en matières organique et minérale, par sa couleur, par sa texture, son pH, son humidité, sa teneur en gaz ...

Inventaire forestier national, IFN : Établissement public à caractère administratif, l'IFN a été créé par décret en 1993. Il a trois objectifs : l'estimation de l'occupation boisée du sol, l'estimation de la ressource de bois sur pied des formations boisées et arborées de production et enfin il doit répondre à des demandes nouvelles inspirées par des préoccupations environnementales, qui l'ont conduit à adapter et compléter son dispositif sans en remettre en cause l'organisation générale. Ceci s'est traduit notamment par la collecte de nouvelles données floristiques et la caractérisation de nouvelles stations. L'IFN a ainsi pu contribuer à des études nationales et régionales de typologie des stations forestières, de comptabilité du patrimoine et d'évaluation d'indicateurs de gestion durable.
[http : //www.ifn.fr](http://www.ifn.fr)

Lessivage : Percolation des eaux à travers le sol entraînant des particules (d'argile, de fer...) ou des substances dissoutes (nitrate, sulfate ...).

Ligand : Corps, organique ou minéral, qui a tendance à se lier à un autre par une ou plusieurs liaisons (covalentes, électrostatiques ou une combinaison des deux). Semblable à complexant.

Litière (« *litter* ») : En forêt, la litière est l'ensemble des feuilles mortes se trouvant sur le sol. Plus la litière a du mal à se décomposer et plus elle est épaisse. La vitesse de décomposition dépend de beaucoup de facteurs comme le climat, l'acidité et le type de sol, la quantité de lumière qui arrive au sol à travers les arbres, l'espèce d'arbre, etc (INRA, 2001).

Lixiviation : Processus de relâchement des composants des particules du sol sous l'action de l'eau.

Macronutriments : Éléments qui sont essentiels pour les plantes à des concentrations relativement élevées. Ce sont : le carbone, l'hydrogène, l'oxygène, l'azote, le phosphore, le potassium, le calcium, le magnésium et le soufre (Manahan, 1994).

Micronutriments : Éléments qui sont essentiels pour la croissance et le développement des plantes mais seulement à des concentrations très faibles. Ces éléments sont généralement utiles pour le fonctionnement d'enzymes essentiels (Manahan, 1994).

Mycorhize : Association symbiotique d'un champignon avec les racines d'une plante. Le champignon mycorhizien intervient dans la nutrition hydrique et minérale de la plante hôte et lui assure une protection phytosanitaire efficace contre les nombreux pathogènes du sol (Marçais *et al.*, 2000).

Nitrification : Réaction d'oxydation de diverses formes d'azote (NH_3 , NH_4^+ , NO_2) dont le produit est le nitrate. La nitrification produit deux moles de proton pour chaque mole d'ammonium (NH_4^+) nitrifiée.

Nitrophile : Se dit de plantes qui poussent préférentiellement dans des milieux riches en azote.

pH : Fonction décrivant l'acidité d'un sol. $\text{pH} = -\log_{10}[\text{H}^+]$.

pKa : Fonction décrivant l'acidité d'un acide faible. $\text{pKa} = -\log_{10} \frac{[\text{A}^-][\text{H}_3\text{O}^+]}{[\text{AH}]}$, où A^- est

la forme basique de la substance A et AH sa forme acide. Le pouvoir tampon de l'acide faible est maximum quand le pH de la solution est égal au pKa de l'acide.

Pluiolessivat («*throughfall*») : Eau de pluie qui s'égoutte au sol après être tombée sur les feuilles des arbres, s'être chargée d'une partie de la matière sèche (S, Ca, Fe, Al...) qui se dépose sur les arbres par temps sec ou s'être enrichie d'ions lessivés des feuilles (Mn, K, Mg). Cette eau serait de 20 à 30 % plus chargée en azote que l'eau de pluie (Croise *et al.*, 2002).

RENECOFOR : RÉseau National de suivi à long terme des ÉCOsystèmes FORestiers créé en 1992 par l'Office National des Forêts. Ce réseau a pour but de mieux comprendre le fonctionnement à long terme (30 ans) de peuplements forestiers caractéristiques du territoire métropolitain, écosystèmes spécifiquement méditerranéens exclus. Ce réseau s'inscrit dans un ensemble de suivi des forêts organisé dans 34 pays européens. Voir le site Internet : <http://www.onf.fr/pro/Renecofor/>

Solution de sol : C'est l'eau contenue dans le sol. Elle contient et transporte de la matière dissoute, provenant de l'érosion des particules du sol. Cette matière se trouve essentiellement sous forme d'ions. Cations (H^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , Na^+ , Fe^{2+} , Mn^{2+} et Al^{3+}) et anions (HCO_3^- , CO_3^{2-} , HSO_4^- , SO_4^{2-} , Cl^- , F^- , anions organiques) forment des paires d'ions (CaSO_4 , FeSO_4). Cette eau a souvent un pH plus acide que l'eau des ruisseaux dans la même région car elle contient de fortes concentrations de CO_2 dissous, donc d'acide carbonique, suite à la dégradation bactérienne de la matière organique.

Spéciation : Terme utilisé en chimie pour différencier les formes des éléments chimiques en solution. Pour les métaux, ces formes peuvent être des ions chargés (par exemple Fe^{2+} , Fe^{3+} et Fe) ou non chargés combinés avec des anions non métalliques (chlorures, sulfates, carbonates, hydroxydes...) ou avec de la matière organique (Baretta-Bekker *et al.*, 1998).

Tampon : Système ou solution dont le pH varie peu lorsqu'on leur rajoute un acide ou une base.

Taux de saturation en bases : Proportion de cations basiques échangeables sur la capacité d'échange cationique du sol = $\text{BC}/\text{CEC} \times 100$. Plus ce taux est élevé plus le sol contient des cations basiques. Des corrélations linéaires positives ont été établies entre le taux de saturation en bases et le pH de la solution du sol (Baize, 2000; Falkengren-Grerup *et al.*, 1987).

Taux d'acidité d'échange : $\text{TAE} = (\text{Al}^{3+} + \text{H}^+) / \text{CEC} \times 100$ (Baize, 2000).

Acronymes

Acronyme	Brève description
AE	Acidité d'échange
ANC	« <i>Acid neutralising capacity</i> »
CEC	Capacité d'échange cationique
CCE	« <i>Coordination center for effects</i> », centre de données du PIC Cartographie et modélisation. Http://arch.rivm.nl/cce/
DEFORPA	Dépérissement des forêts et pollution atmosphérique
EGTEI	« <i>Expert group on technico economic issues</i> » (WGS-LRTAP) http : //www.citepa.org/forums/egtei/egtei_index.htm
EMEP	« <i>European monitoring and evaluation programme</i> » : Cooperative programme for monitoring and evaluation of the long range transport of air pollutants in Europe. http : //www.emep.int/
IIASA	« <i>International Institute for Applied Systems Analysis</i> » http://www.iiasa.ac.at/rains/index.html
IFN	Inventaire forestier national
LMTG	Laboratoire des Mécanismes et Transferts en Géologie (Université de Toulouse)
LRTAP	« <i>Long range transboundary air pollution</i> »
NEBEI	« <i>Network on Benefits and Economic Instruments</i> » (WGS-LRTAP) http : //www.unece.org/env/nebei/
PIC	Programme international concerté
RAINS	« <i>Regional Air pollution Information and Simulation</i> » http://www.iiasa.ac.at/~rains/doc/iiasa.htm
SAFE	Modèle dynamique suédois de la contamination des sols (polluants classiques)
SMART	Modèle dynamique néerlandais de la contamination des eaux de surface (polluants classiques).
SMB	« <i>Simple mass balance model (steady state critical load model)</i> »
SSMB	« <i>Steady state mass balance model</i> »
TAE	Taux d'acidité d'échange
UN-ECE	« <i>United Nation economic commission for Europe</i> »
CEE-NU	Commission économique européenne des Nations Unies
WGE	« <i>Working group on effects</i> »
WGS	« <i>Working group on strategies and reviews</i> »

ACIDIFICATION ET EUTROPHISATION : INTRODUCTION

Les rejets de polluants dans l'environnement sont devenus d'autant plus importants que l'activité industrielle a pris de l'ampleur. Les impacts n'ont pas toujours été visibles, observés ou reliés à ces rejets. Dans le cas de la pollution atmosphérique, les liens ont été faits entre les rejets de soufre et l'acidification des sols et des eaux dans les années 1970. Dans les années qui ont suivi, le rôle des composés azotés a été identifié : les nitrates conduisent à une accélération de la croissance des plantes et leur présence en excès peut aussi acidifier sols et eaux de surface, tout comme le fait le soufre. Le rôle de fertilisant des nitrates est connu et utilisé depuis longtemps en agriculture. Cet effet sur les milieux naturels ou semi-naturels comme les forêts n'est pas toujours bénéfique car il conduit à la prolifération de certaines espèces aux dépens d'autres moins communes : c'est le processus d'eutrophisation.

Au niveau européen la lutte contre ce type de pollution a été organisée au sein de la convention de Genève sur la pollution atmosphérique transfrontière, mise en place à partir de la fin des années 1970. C'est dans ce cadre que s'est développée la notion de charges critiques. Elle est conçue pour établir les niveaux maximum de dépôts acceptables sur chaque type d'écosystème et pour en déduire à travers la modélisation intégrée, d'abord les émissions maximum admissibles et ensuite les politiques de réduction de pollution à suivre. Le concept de charge critique a ainsi permis l'élaboration de politiques de réduction d'émissions tels que le Protocole d'Helsinki sur le soufre de 1985 ou le protocole multipolluants de Göteborg de 1999. On trouve dans la littérature scientifique des calculs de charges critiques appliqués à l'Asie ou aux pays sud-américains. L'acidification des sols et des eaux de surface est en effet de plus en plus visible dans les pays en voie de développement.

En France, les premiers programmes de recherche sur l'acidification des forêts datent du début des années 1980 avec le programme interministériel DEFORPA (Dépérissement des forêts et pollution atmosphérique). L'identification de ruisseaux acidifiés dans les Vosges a eu lieu à peu près simultanément. Les travaux de charges critiques ont commencé vers 1990. Un rapport de l'ADEME décrivait l'état des lieux en 1997 (ADEME, 1997). Le présent rapport tente de décrire l'état actuel des connaissances des processus qui contrôlent et déterminent les effets des composés soufrés et azotés sur les écosystèmes. Ce rapport est résolument placé dans l'optique de la pollution longue distance. Il a été toutefois consciemment choisi de ne pas intégrer les effets connus et simultanés de l'ozone, un autre polluant qui, loin de la source de ses précurseurs, affecte le fonctionnement d'écosystèmes. La littérature abonde d'études faites sur les forêts françaises mais il y a peu d'informations disponibles sur d'autres écosystèmes, tels que les zones humides ou les prairies. C'est peut être parce qu'en France ces écosystèmes sont relativement moins importants que dans d'autres pays et sont soumis à des apports de polluants locaux. Dans ces conditions, la pollution transfrontière dont les sources sont diffuses et lointaines du point d'impact a une importance relative moindre. Les études auxquelles il est fait référence dans ce rapport concernent donc essentiellement les forêts et le haut des bassins versants des cours d'eaux. L'acidification et l'eutrophisation sont deux phénomènes liés aux dépôts de composés azotés et sont traités en parallèle. Il est question ici de décrire leurs effets sur les sols, les forêts et les eaux de surface. Les trois parties du rapport décrivent successivement les processus géochimiques qui génèrent l'acidification et l'eutrophisation, les hypothèses et les calculs qui permettent d'élaborer les charges critiques et un état des lieux des écosystèmes français. Mais tout d'abord, et de façon à bien cadrer la discussion qui suit, les termes d'acidification et d'eutrophisation sont définis.

PARTIE A : APPROCHE QUALITATIVE ET DESCRIPTION DES MÉCANISMES

1 DÉFINITIONS

1.1 Acidification

L'acidité d'un sol ou d'une eau de surface est causée par la présence de protons (H^+). Leur caractère chimique leur permet d'intervenir dans de nombreuses réactions, en favorisant certaines, en empêchant d'autres. Ils réagissent avec de nombreuses substances de l'eau et du sol, solubilisant les métaux, dissociant les acides organiques et intervenant dans le fonctionnement biologique de nombreux organismes. Leur présence en large quantité rend un milieu acide, ce qui est mesuré par un faible pH. Un milieu aqueux dont l'acidité augmente (et le pH diminue) a tendance à devenir oxydant et, à partir d'un certain seuil d'acidité, de moins en moins propice au développement d'organismes vivants.

L'échelle de pH varie entre 0 et 14. Un milieu est dit neutre si son pH est égal à 7. Le monde terrestre (les sols, les cours d'eaux, les pluies) est un milieu naturellement acide. Le pH de la pluie dans une atmosphère non polluée est de l'ordre de 5,5 à 5,6. Dans les zones non polluées, sous les latitudes de l'Europe, les sols et les eaux de surface ont des pH habituellement compris entre 3 et 8. Les tourbières sont naturellement acides et les pH qu'on y mesure pour les sols et les eaux sont naturellement de l'ordre de 3 ou 4. Les sols les plus basiques, avec des pH autour de 8, sont les sols calcaires que l'on trouve par exemple dans le sud de la France. Les océans pour leur part sont plutôt basiques puisque leurs eaux ont un pH proche de 8.

Le pH est un paramètre qui permet d'évaluer le caractère acide d'un sol à un instant donné. Il est utile de compléter la connaissance de ce paramètre par celles d'autres caractéristiques du sol qui sont (Baize, 2000; NEGTA, 2001; Tao *et al.*, 2002) :

- Les cations échangeables, souvent appelés cations basiques : le calcium, Ca^{++} , le magnésium, Mg^{++} , le potassium, K^+ et le sodium Na^+ . Ces cations sont des éléments nutritifs essentiels pour la végétation et les animaux aquatiques. La somme de leurs concentrations est traditionnellement symbolisée par BC et exprimée en $eq\ kg^{-1}$ de terre fine (équivalent de charge par kg de terre fine c'est à dire tamisée).

$$BC = [Ca^{++}] + [Mg^{++}] + [K^+] + [Na^+]$$

- L'acidité d'échange AE aussi appelée cations acides : C'est la somme des concentrations des protons et des ions aluminium (Al^{3+} , $Al(OH)^{2+}$, $Al(OH)^+$) présents dans le sol.
- La capacité d'échange cationique (CEC) qui permet d'évaluer la quantité de cations qui peuvent être adsorbés sur le sol à un pH donné. La CEC correspond au nombre de sites chimiques chargés négativement sur les particules d'un sol. La CEC est une mesure de la capacité de tampon d'un sol. Cette capacité a des limites finies.

$$CEC = BC + AE$$

En combinant ces paramètres, on obtient :

- Le taux de saturation en bases (« *base saturation* ») : $BS = BC/CEC \times 100$. C'est le rapport des cations basiques (c'est à dire les éléments nutritifs dans le sol) sur la capacité d'échange cationique (c'est à dire la somme de toutes les espèces de cations échangeables). Ce taux donne une mesure du degré d'avancement des processus pédogéniques d'acidification.

- Le taux d'acidité d'échange : $AE / CEC \times 100$.
- L'alcalinité ou capacité du milieu à neutraliser les acides («*Acid neutralising capacity*», ANC) : C'est la somme de tous les cations basiques moins la somme de tous les cations acides :

$$ANC = BC - AE$$

Ces taux permettent d'évaluer la résistance du sol à un ajout d'acide. Un fort taux de saturation BS suggère que le sol pourra être soumis à un fort apport d'acide sans que son pH en soit largement modifié. On dira alors que le sol a un fort **pouvoir tampon** : il « tamponne » les effets des substances acidifiantes (et également les effets des substances basiques si le cas se présente) : un ajout relativement important d'acide ou de base ne modifiera pas le pH du sol. Ce sera le cas par exemple des sols calcaires qui contiennent de fortes concentrations de calcium. D'autre part, un fort taux d'acidité d'échange caractérise un sol qui contient une forte proportion d'ions acides et qui aura peu de résistance à une acidification supplémentaire (pas de pouvoir tampon).

L'acidification d'un sol se produit lorsque des apports naturels ou anthropiques d'ions H^+ remplacent les cations basiques adsorbés sur les particules de sol et présents dans les eaux interstitielles. Simultanément, une baisse du pH solubilise les ions aluminium qui eux aussi remplacent les cations basiques sur les particules du sol. Il en résulte une augmentation initiale des concentrations de cations dans la solution du sol, puis une diminution de leur concentration s'ils sont lessivés sans être remplacés par des apports atmosphériques ou par l'altération du sol. Il s'ensuit une baisse du taux de saturation en bases et une diminution de la fertilité du sol à laquelle peuvent s'ajouter les effets négatifs de la toxicité de l'aluminium (Bélanger *et al.*, 2002b).

Un effet secondaire de l'acidification des sols est le changement de leurs caractéristiques physiques. Les sols acides sont moins résistants à l'érosion et plus difficilement réhumectables s'ils s'assèchent que les sols basiques (Pernes - Debuyser et Tessier, 2001). Les problèmes d'érosion des sols sont de plus en plus souvent qualifiés de préoccupants à l'échelle mondiale mais aussi à l'échelle européenne.

L'acidification des eaux de surface se mesure par une baisse de pH, de l'alcalinité titrable et de l'ANC. L'ANC est souvent utilisé comme paramètre complémentaire car il reflète les proportions relatives d'ions basiques et acides et donc le pouvoir tampon de l'eau.

1.2 Eutrophisation

L'eutrophisation est un phénomène qui a d'abord été décrit pour les eaux de surface et les eaux côtières. Il correspond à une augmentation de la productivité des algues suivie de leur dégradation qui conduit à une désoxygénation partielle ou totale du milieu. Dans les lacs, c'est un phénomène lent et naturel correspondant au vieillissement du milieu. Il est toutefois accéléré par les rejets anthropiques de nutriments (et surtout de phosphore). L'apport de nutriments accroît la productivité du milieu et perturbe les cycles géochimiques naturels, particulièrement en augmentant la demande en oxygène et en modifiant les flux de nutriments lors de la dégradation de la matière végétale à la fin de son cycle de vie, par exemple à la fin de l'été. La modification des cycles de nutriments se traduit par de nouvelles proportions entre les concentrations des différents nutriments dans le milieu. Ceci provoque des changements des structures des peuplements phytoplanctoniques et par suite des changements des espèces zooplanctoniques. Les populations de poissons sont affectées en conséquence. Dans un premier temps, elles augmentent en phase avec l'accroissement de la production phytoplanctonique et

zooplanctonique, puis elles diminuent quand les niveaux d'oxygène deviennent insuffisants (Ramade, 2000).

Le concept de l'eutrophisation des eaux a été étendu aux écosystèmes terrestres. Les problèmes relatifs à une baisse de l'oxygène ne sont plus pertinents mais ceux relatifs aux modifications des flux de nutriments le restent. L'eutrophisation des milieux terrestres est généralement déclenchée par des apports excédentaires d'azote et par son accumulation dans l'écosystème. La production primaire augmente alors et la flore est modifiée au profit d'espèces nitrophiles, c'est-à-dire qui poussent préférentiellement dans les milieux riches en azote. Ces espèces nitrophiles deviennent dominantes car utilisant efficacement les ressources en azote, elles ont des taux de croissances supérieurs aux autres plantes et occupent donc progressivement l'espace et la lumière disponibles. À terme, on peut observer une disparition d'espèces adaptées à de faibles concentrations de nutriments dans les sols et donc à une baisse de la biodiversité (NEGTAP, 2001).

2 LES CYCLES NATURELS DES MINÉRAUX NUTRITIFS

2.1 Les éléments minéraux essentiels

Les plantes ont besoin pour pousser normalement d'un certain nombre d'éléments qu'elles obtiennent du sol ou des dépôts atmosphériques. Ces éléments ont été classés de façon arbitraire en macro nutriments (de l'azote au soufre dans le Tableau 2-1) et en micronutriments (à partir du chlore dans le Tableau 2-1). Trois autres éléments, non minéraux, sont essentiels : l'hydrogène, le carbone et l'oxygène et quelques éléments minéraux sont considérés comme bénéfiques mais non essentiels, tels que le sodium, la silice, le cobalt et le sélénium (Barak, 2002).

Dans les arbres, on observe que la concentration en éléments nutritifs (N, Ca, K, P, Mg) diminue avec l'âge du bois. La biomasse des arbres jeunes a donc des concentrations plus élevées en sels minéraux que les arbres adultes. Dans le cycle de vie normal, les arbres matures ont besoin de moins d'azote pour leur croissance et à quantités d'azote disponible égales, le taux d'azote dans leurs feuilles est plus important que pour les jeunes arbres. À l'échelle de la forêt cela implique que les concentrations de nutriments dans les arbres diminuent avec l'âge de la placette et que les sols s'appauvrissent alors que la forêt vieillit (Augusto *et al.*, 2000a; Trichet *et al.*, 1999). D'autre part, les sels minéraux puisés à chaque saison dans le sol servent à la constitution des feuilles et des jeunes branches mais pas à celle du tronc qui est essentiellement constitué de bois mort. Il en résulte que la fertilité du sol influe sur les concentrations dans les feuilles, les aiguilles ou les petites branches, mais pas ou peu dans le bois du tronc (Augusto *et al.*, 2000a). Ainsi les arbres qui poussent sur des sols riches en azote peuvent présenter de fortes concentrations d'azote dans leurs feuilles (NEGTAPE, 2001).

Le recyclage possible des nutriments entre les différents tissus de l'arbre est tel que des corrélations positives sont observées entre la biomasse totale d'un arbre adulte et la quantité de cations (Ca, K et Mg) qu'elle contient (Augusto *et al.*, 2000a).

Lorsqu'un élément n'est plus disponible en quantité suffisante pour soutenir la croissance des plantes, il devient l'élément limitant. C'est souvent le cas de l'azote dans les forêts. Si toutefois, les apports en azote deviennent excédentaires, d'autres éléments (souvent le potassium ou le magnésium) deviennent limitants. Associées à une acidification du sol, de telles déficiences peuvent conduire au dépérissement du peuplement d'arbres (Nys *et al.*, 1987). Les concentrations optimales des différents éléments nutritifs selon différents auteurs sont données dans le Tableau 2-2.

Le rôle des différents éléments essentiels est examiné dans les paragraphes suivants.

Comme pour les plantes des milieux terrestres, ces éléments nutritifs sont nécessaires pour la santé des plantes aquatiques. Leur présence est aussi essentielle pour les animaux : Ceux-ci régulent et ajustent en permanence les concentrations en ions dans leur sang et leurs divers tissus au moyen de processus d'échanges ioniques entre l'eau et le sang dans leurs branchies. De tels processus sont sensibles aux variations de concentrations en ions dans le milieu.

Tableau 2-1 : *Éléments minéraux essentiels pour les plantes et leurs concentrations typiques dans leurs tissus lors d'une croissance normale. ps = poids sec. La double ligne indique la limite entre macro et micronutriments. D'après Epstein, 1965.*

Élément	Symbole	mg/g ps	Pourcentage
Azote	N	15	1,5
Potassium	K	10	1
Calcium	Ca	5	0,5
Magnésium	Mg	2	0,2
Phosphore	P	2	0,2
Soufre	S	1	0,1
Chlore	Cl	0,1	
Fer	Fe	0,1	
Bore	B	0,02	
Manganèse	Mn	0,05	
Zinc	Zn	0,02	
Cuivre	Cu	0,006	
Molybdène	Mo	0,0001	
Nickel	Ni	0,0001	

Tableau 2-2 : *Concentrations limites de macroéléments pour les différents statuts nutritionnels des épicéas dans les aiguilles d'un an. Concentrations en mg g⁻¹ poids sec. D'après Landmann et al., 1995.*

	Ingestadt, 1959	Hüttl, 1986	van der Burg, 1988	Bonneau, 1988
Azote				
Déficient		< 12 -13	< 10 - 13	< 10 - 13
Adéquat		13 - 15	13 - 17	13 - 15
Optimal	15 - 23	> 15	17 - 21	17 - 19
Phosphore				
Déficient	< 0,8	< 1,1 - 1,2	< 1,1 - 1,4	< 1,0 - 1,5
Adéquat		1,2 - 1,5	1,4 - 2,0	1,5 - 1,9
Optimal	1,1 - 3,0	> 1,5	> 2,0	> 1,9 - 2,5
Potassium				
Déficient		< 4,0 - 4,5	< 4,0 - 6,0	< 3,0 - 4,0
Adéquat		4,5 - 6,0	6,0 - 8,0	4,0 - 6,0
Optimal	5,0 - 13,0	> 6,0	> 8,0	> 6,0
Calcium				
Déficient	< 0,2	<1,0 - 2,0	< 1,0 - 2,0	< 0,5 - 1,0
Adéquat		2,0 - 3,0	2,0 - 4,0	1,0 - 3,0
Optimal	0,8 - 1,9	> 3,0	> 4,0	> 3,0 - 5,0
Magnésium				
Déficient	0,2 - 0,7	< 0,7 - 0,8	< 0,4 - 0,7	< 0,6
Adéquat		0,8 - 1,0	0,7 - 1,0	0,7 - 1,0
Optimal	0,9 - 1,7	> 1,0	> 1,0	> 1,0 - 1,4

2.1.1 L'azote, N

Le cycle de l'azote dans les écosystèmes terrestres et aquatiques est représenté schématiquement sur la Figure 2-1.

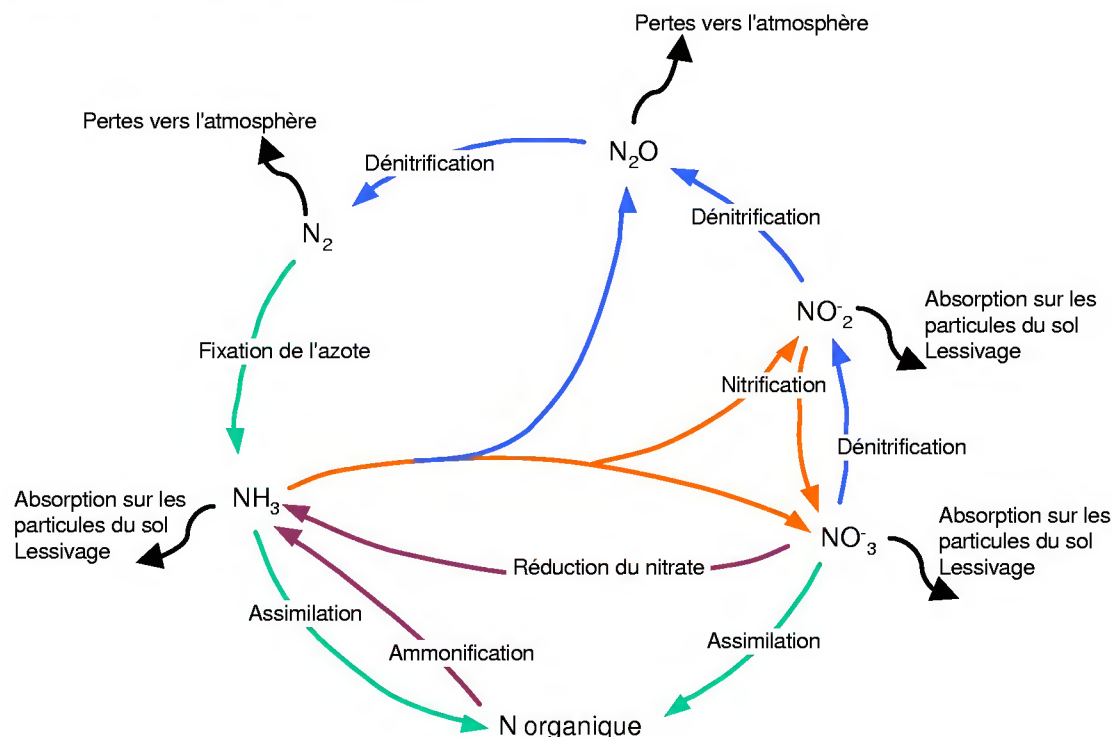


Figure 2-1: Schéma du cycle de l'azote dans les écosystèmes terrestres et aquatiques, d'après Baretta-Bekker et al., 1998. Flèches bleues : réactions biochimiques par lesquelles l'azote a tendance à quitter le sol ou les eaux. Flèches vertes : processus par lesquels l'azote est assimilé par la matière organique. Flèches rouges : réactions biochimiques par lesquelles l'azote reste dans l'écosystème. Flèches noires : processus géochimiques par lesquels l'azote quitte l'écosystème.

Les formes d'azote minéral disponibles pour les plantes sont le nitrate (NO_3^-) et l'ammonium (NH_4^+). Ces deux formes sont absorbées par les racines et par les feuilles, bien que l'ammonium associé à des particules relativement fines soit capté de façon moins efficace que le nitrate par le feuillage² (Bélanger et al., 2002a; Landmann, 2000; Lovett et Lindberg, 1993; ONF, 1999). Les taux d'absorption par les feuilles ne sont évalués qu'avec une large incertitude. Des valeurs pour l'absorption foliaire de l'ammoniac atteignant au maximum $30 \text{ kg ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ ont été calculées, bien qu'une valeur moyenne de $5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ soit proposée pour la France (Landmann, 2000). Les taux d'absorption de l'azote et de l'ammoniac dépendent sans doute du taux de pollution et des concentrations relatives de ces deux composés dans l'air (Bélanger et al., 2002a).

² Pour plus de détails (en images) sur la décomposition des feuilles et leur rôle dans les processus d'acidification, voir le site de l'INRA : <http://www.nancy.inra.fr/acidification/definitions/nitrif0.html>

L'azote gazeux (N_2) n'est pas assimilable directement par les arbres, mais il l'est par les légumineuses et certains microorganismes du sol qui peuvent le transformer, le rendant disponible pour les arbres. La fixation de l'azote gazeux (N_2) par des microorganismes a lieu à la surface des feuilles ou dans le sol à des taux évalués à moins de $5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ (Binkley *et al.*, 2000). Ce processus était probablement relativement important pour la croissance des forêts avant que les concentrations de NO_x dans l'atmosphère augmentent à cause des émissions anthropiques. Il n'y a toutefois aucune preuve qui permette d'affirmer que l'augmentation de la pollution atmosphérique a fait diminuer les taux de fixation de N_2 (Bélanger *et al.*, 2002a).

Une fois dans le sol, le nitrate ou l'ammoniac peuvent être lessivés et emportés en dehors du milieu sol mais peuvent aussi être adsorbés sur les particules du sol. En particulier, la partie la plus légère (les molécules les plus petites) de la matière organique du sol peut immobiliser une fraction importante de l'azote inorganique présent dans le sol (Compton et Boone, 2002). L'azote réduit sous forme d'ammoniac peut être nitrifié, c'est-à-dire oxydé et transformé en NO_2^- ou NO_3^- . Cette réaction libère 2 protons : elle est donc acidifiante et est ralentie en milieu acide.

A l'inverse, l'azote oxydé peut être dénitrifié. Cette réaction produit du diazote (N_2) et du protoxyde d'azote (N_2O), un gaz à effet de serre, dans des proportions variant en fonction des conditions environnementales. Certaines études suggèrent que la dénitrification dans les sols de forêts acides ou dans les sols très humides favorise la production du protoxyde d'azote sur celle du diazote (Paavolainen *et al.*, 2000). Une étude autrichienne suggère qu'il existe une corrélation entre la production de protoxyde d'azote et le taux de lessivage des nitrates (Zechmeister-Boltenstern *et al.*, 2002). En Allemagne, il a été montré que la production de protoxyde d'azote due à la dénitrification était plus importante en été que pendant le reste de l'année (Wolf et Brumme, 2002). De telles relations illustrent l'importance de l'activité microbienne pour la production de protoxyde d'azote. Différentes communautés bactériennes, dont les taux de production de N_2O et de N_2 varient, sont présentes selon les conditions de température, d'humidité, de pH et aussi de la valeur du rapport C/N du sol. Toutefois, les pertes d'azote sous forme de gaz sont faibles et de l'ordre de 1 % des quantités d'azote assimilées par les arbres ou de moins de $1 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ dans les forêts non fertilisées (Binkley et Hogberg, 1997).

Dans l'atmosphère ou à la surface des particules des sols, les réactions au cours desquelles NO^- et NO_2^- sont convertis en NO_3^- sont induites photochimiquement ou sous l'action de bactéries (Manahan, 1994).

Les vitesses et l'importance relative de ces processus sont encore mal établies : elles dépendent de nombreux facteurs, y compris l'âge des arbres, les espèces présentes, les taux de dépôts, l'utilisation des sols dans le passé (agriculture, pâturage, forêt) et les propriétés du sol (humidité, température, pH ...). Certains auteurs concluent que la plus grosse partie de l'azote déposé est accumulé dans le sol alors que d'autres concluent que c'est plutôt dans la biomasse que l'azote est stocké. Par exemple, en Suède, l'assimilation annuelle d'azote par les pins sylvestres (*Pinus sylvestris* L.) et les épicéas (*Picea abies* L.) est généralement de l'ordre de 15 à $50 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ ou davantage. Environ 1/3 de cet azote reste dans la biomasse et 2/3 est recyclé dans le sol via les litières, le lessivage et la sénescence des racines (Binkley et Hogberg, 1997).

2.1.2 Le soufre, S

Le cycle du soufre est comme celui de l'azote en partie contrôlé par les réactions microbiennes et donc par les conditions environnementales (température, humidité, pH...). La Figure 2-2 en donne un schéma simplifié.

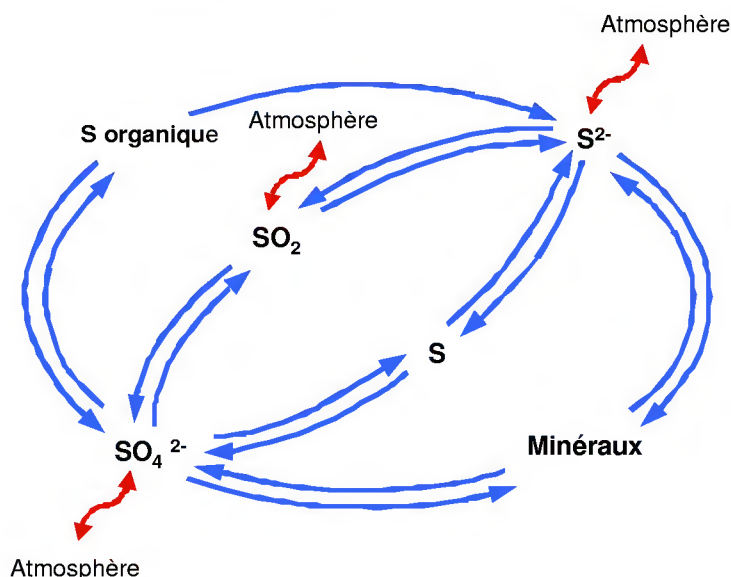


Figure 2-2 : Le cycle du soufre dans les sols et les eaux de surface.

Les minéraux de la croûte terrestre constituent la principale source de soufre dans l'environnement. Les sources naturelles de soufre pour l'atmosphère sont sous forme de dihydrogène de soufre (H_2S) et proviennent des éruptions volcaniques, des échanges de gaz avec l'océan et de la décomposition de la matière organique. À ces sources, il faut ajouter les rejets industriels de SO_x ($= \text{SO}_2 + \text{SO}_4^{2-}$), particulièrement ceux issus de la combustion des énergies fossiles. Le dihydrogène de soufre H_2S est rapidement oxydé en SO_2 . Celui-ci est lui-même oxydé par l'eau pour donner de l'acide sulfurique (H_2SO_4) qui se dépose sur le sol avec les pluies et les brouillards. L'acide sulfurique composé de deux protons (H^+) et d'un ion sulfate (SO_4^{2-}) est une substance avec un fort pouvoir acidifiant.

Le sulfate SO_4^{2-} qui se dépose sur le sol peut être immobilisé dans des minéraux insolubles (oxydes de fer et d'aluminium) ou peut rester dissous sous forme ionique (Manahan, 1994). Les mécanismes qui contrôlent cette adsorption et désorption des sulfates dans le sol sont encore mal connus (Walse *et al.*, 1998). L'immobilisation des sulfates dans les sols semble pouvoir se faire jusqu'à « saturation » du sol mais connaissant mal les processus d'adsorption des sulfates sur les particules du sol, on ne sait pas encore évaluer les niveaux de saturation. Toutefois, on observe que la désorption du sulfate des sols minéraux augmente avec la température de l'air et que les sols profonds et anciens ont une capacité de stockage supérieure aux sols jeunes et superficiels (Bélanger *et al.*, 2002b; Pretchel *et al.*, 2001).

Lorsque la saturation du sol est atteinte, le sulfate en excès est lessivé sous forme ionique. La charge négative de ces ions sulfates est équilibrée par celles de cations, en particulier par des cations basiques, pour lesquels le sulfate a une forte affinité. Ainsi, lorsque le sulfate est lessivé, il emporte avec lui les éléments nutritifs du sol qu'il entraîne vers les eaux de surface.

Les plantes peuvent absorber le soufre par leurs racines sous forme de sulfate mais aussi par leurs feuilles sous forme de dioxyde. Le soufre leur est indispensable pour la formation de certains aminoacides. Un excès de dioxyde de soufre dans l'atmosphère peut devenir toxique pour les plantes mais aux concentrations observées actuellement loin des sources d'émission aucun effet direct n'est observé sur les feuilles des arbres. La toxicité du soufre est donc de nos jours indirecte et découle de son pouvoir acidifiant. Suite aux réductions très importantes des émissions depuis deux décennies, le soufre peut devenir un élément limitant sur certains sols agricoles (comme par exemple en Finlande où on recommence à fertiliser certains champs avec des composés soufrés, Derome, 2002, communication personnelle) mais cela ne semble pas avoir été observé dans le cas de sols forestiers (Bonneau et Landmann, 1993; Manahan, 1994; NEGTAPE, 2001).

Pretchel *et al.* (2001) identifient 4 processus par lesquels le sulfate peut passer du sol vers les eaux de surface :

- La désorption du sulfate inorganique : c'est un processus essentiellement contrôlé par les équilibres thermodynamiques entre particules et eau du sol.
- La dissolution des minéraux du sol contenant du soufre, un processus qui est contrôlé par le climat et est aussi stable que lui.
- L'oxydation du soufre sous formes réduites.
- La minéralisation excessive du soufre organique.

Ces deux derniers processus sont essentiellement le résultat de l'activité biologique et sont donc dépendants de facteurs tels que la température, l'humidité, la qualité de la matière organique (rapport C/N par exemple car si la concentration en azote est élevée l'activité biologique l'est aussi)...

Des interactions synergiques entre les composés soufrés et les composés azotés sont soupçonnées. Ainsi, les effets du dioxyde d'azote sur les plantes peuvent être positifs ou négatifs, mais lorsque les concentrations de dioxyde de soufre sont proches de celles du dioxyde d'azote, l'effet combiné des deux composés a une forte probabilité d'être négatif (NEGTAPE, 2001).

2.1.3 Le potassium, K

Le potassium biodisponible pour les plantes est sous la forme du cation K^+ . Les forêts assimilent une partie du potassium dont elles ont besoin par leur feuillage, à partir de particules transportées par l'atmosphère. Une partie relativement grande du potassium contenu dans les feuilles peut être lessivée par les pluies. Ce lessivage fait partie du cycle naturel de cet élément (Cecchini, 2000e; Dambrine *et al.*, 1998a; Ragsdale *et al.*, 1992).

Le potassium est aussi absorbé par les racines des plantes. C'est un des éléments les plus abondants de la croûte terrestre mais il peut devenir limitant car il est fortement lié à l'intérieur des minéraux. Ses formes échangeables dans le sol sont le plus souvent associées aux particules d'argile (Manahan, 1994).

Un jaunissement du feuillage des arbres est possible si le potassium devient limitant, particulièrement sur des sols calcaires. Les conséquences des déficiences en potassium sont considérées comme moins inquiétantes que celles d'autres nutriments, en partie parce qu'elles sont courantes et n'ont pas d'effets sérieux sur la vitalité des arbres contrairement aux déficiences en magnésium (Landmann *et al.*, 1995; Landmann et Bouhot-Delduc, 1995).

2.1.4 Le calcium, Ca

Le calcium nécessaire aux plantes est essentiellement absorbé par leurs racines sous la forme du cation Ca^{2+} . L'assimilation au niveau du feuillage peut avoir lieu mais dans de moindres proportions que pour le magnésium et le potassium. Une carence en calcium peut se traduire par une mauvaise rétention des aiguilles des conifères et un ralentissement de la croissance des arbres (Bélanger *et al.*, 2002a; Landmann *et al.*, 1995; Landmann, 2000; Ragsdale *et al.*, 1992).

Dans les sols forestiers, le calcium est le cation basique qui se trouve en général en plus grandes quantités. Il y joue un rôle essentiel pour résister à l'acidification (Cecchini, 2000e; Ponette *et al.*, 1997).

Le calcium présent dans les pluvioléssivats est essentiellement issu de particules sèches déposées sur les feuilles et lessivées lorsqu'il pleut (Dambrine *et al.*, 1998a). Lorsque les feuilles ou les aiguilles sont carencées ou corrodées par l'acidité, elles deviennent plus perméables et le lessivage est intensifié.

2.1.5 Le magnésium, Mg

Le magnésium est absorbé par les racines et par les feuilles des arbres sous la forme du cation Mg^{2+} (Ragsdale *et al.*, 1992). La présence et la disponibilité de cet élément dans les sols sont essentielles pour la santé des forêts.

Le jaunissement de l'épicéa et du Douglas peut être causé par une déficience en magnésium sur un sol acide. Les déficiences en magnésium semblent parfois être aggravées par des déficiences en calcium (Bonneau et Landmann, 1993; Landmann *et al.*, 1995; Landmann et Bouhot-Delduc, 1995).

Comme pour le calcium, le magnésium présent dans les pluvioléssivats est essentiellement issu de particules sèches déposées sur les feuilles et lessivées lorsqu'il pleut (Dambrine *et al.*, 1998a).

2.1.6 Le phosphore, P

Les apports atmosphériques de phosphore sont négligeables par rapport aux apports de la roche mère, de la décomposition de la matière organique ou des engrais pour les sols et des rejets urbains pour les eaux. Toutefois, si le phosphore est présent en grandes quantités dans les sols, il l'est majoritairement sous des formes chimiques qui sont inaccessibles pour les plantes. C'est pourquoi de nombreuses forêts présentent des carences en phosphore (Ponette *et al.*, 1997; Ulrich et Bonneau, 1994).

Le phosphore est absorbé par les plantes sous la forme d'orthophosphates ($\text{H}_n\text{PO}_4^{n-3}$, $n=0, 1, 2$ ou 3). Aux pH habituels des sols, les formes H_2PO_4^- et HPO_4^{2-} sont prédominantes. À pH faibles ou élevés, l'orthophosphate est présent sous forme de composés solides qui sont peu biodisponibles (Manahan, 1994). Le phosphore est en général peu éliminé des sols par lessivage. On le retrouve donc en faibles quantités dans les eaux de surface et c'est pourquoi il y est souvent le facteur limitant la croissance des algues.

2.1.7 Les micronutriments

Les micronutriments sont des éléments qui, pour la plupart, sont nécessaires en faibles quantités pour le développement des plantes car ils sont utiles pour le fonctionnement de leurs enzymes. À plus fortes concentrations, ces éléments peuvent devenir toxiques. Ce sont, par exemple, le manganèse, le cuivre, le fer, le zinc, le chlore, le sodium, le cobalt, le nickel, le sélénium (Tableau 2-1) (Manahan, 1994; UNIFA, 2002).

L'acidification des sols contribue à solubiliser les métaux qui peuvent ainsi devenir biodisponibles à des concentrations qui peuvent être toxiques (Hernández *et al.*, 2002; Kotas et Stasicka, 2000; McBride *et al.*, 1997; Römken et Salomons, 1998). Une fois en solution, les métaux peuvent aussi être lessivés vers les eaux de surface.

L'aluminium est un élément non nutritif, dont certaines formes sont toxiques pour les plantes. Dans les sols acides, l'aluminium est solubilisé et est assimilable par les plantes alors qu'à des pH élevés, il précipite sous forme d'oxyde non disponible pour les plantes. Les effets de l'aluminium sur les plantes sont discutés plus en détail dans la section 4.2.

La pollution des écosystèmes par les métaux est un sujet à part entière, qui dépasse de beaucoup les objectifs de ce rapport. Il est toutefois d'actualité tant pour la pollution transfrontière que locale (Hernández *et al.*, 2002).

2.1.8 La matière organique

La matière organique du sol est essentiellement constituée de matières végétales, animales ou microbiennes en état de décomposition plus ou moins avancée. Cette décomposition ou reminéralisation remet à la disposition des plantes les éléments qui sont nécessaires pour leur croissance. La décomposition de la matière organique est le « travail » d'organismes (vers de terre, insectes, champignons...) et de microorganismes qui vivent dans le sol ou dans la litière. Ceux-ci puisent leur nourriture dans la matière organique et sont d'autant plus présents et actifs que sa valeur nutritive est importante, ce qui généralement se traduit par une concentration d'azote élevée par rapport à la concentration de carbone. On utilise souvent le rapport C/N (concentration de carbone organique / concentration d'azote) comme indicateur de la fertilité du sol. Une diminution du rapport C/N (c'est-à-dire une augmentation de la concentration en azote par rapport à celle du carbone) entraîne une minéralisation plus rapide de la matière organique du sol et donc une plus grande fertilité. Selon l'écosystème considéré et l'utilisation que l'on veut faire de ce rapport, plusieurs valeurs seuils sont présentées dans la littérature (Figure 2-3, Cecchini, 2000a; b ; 2000c ; 2000d ; 2000e ; 2000f ; NEG TAP, 2001).

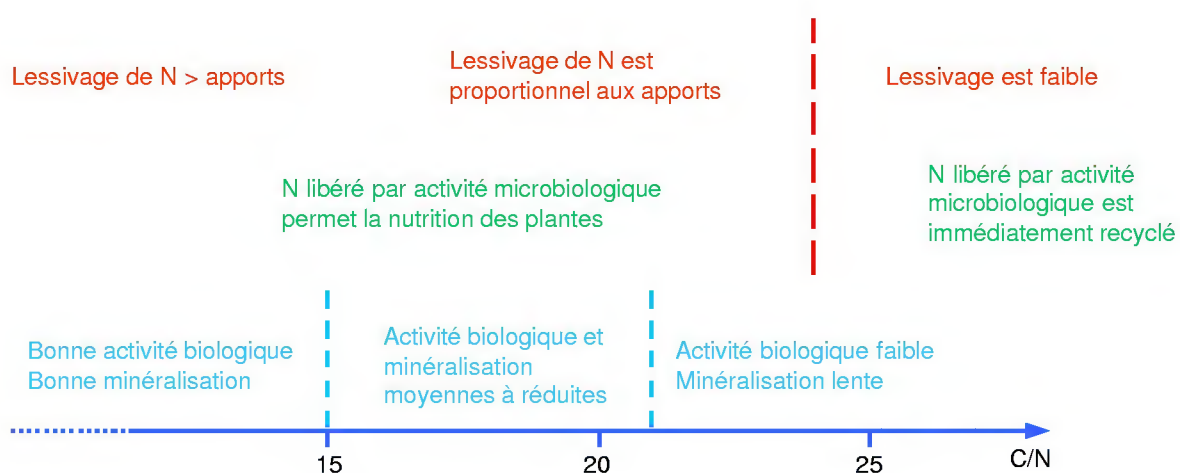


Figure 2-3 : Différents seuils pour la valeur C/N montrant les processus observés dans chaque gamme (Cecchini, 2000a ; 2000b ; 2000c ; 2000d ; 2000e ; 2000f ; NEG TAP, 2001).

La matière organique minéralisée libère dans le sol, et sous forme disponible pour les plantes, l'azote qu'elle contenait mais aussi les cations basiques, le soufre et tous les microéléments nécessaires aux plantes. En période de croissance, celles-ci pourront donc les utiliser au fur et à mesure que la minéralisation a lieu, mais si les taux de minéralisation sont supérieurs aux taux d'assimilation par les plantes (ce qui peut arriver en hiver ou si la pluviométrie est forte), les éléments nutritifs peuvent être lessivés et se retrouver dans les cours d'eau. Ils sont perdus pour le sol qui peut s'en trouver appauvri. Ils fertilisent les cours d'eau, jusqu'à, dans les cas extrêmes, entraîner des dysfonctionnements (ONF, 1999).

La matière organique est composée d'acides faibles (essentiellement humiques, fulviques, carboxyliques et phénoliques). Leur caractère d'acide faible leur confère un pouvoir tampon autour de leur pKa : lorsque le pH de la solution dans lequel ils se trouvent est proche de leur pKa, un ajout relativement important d'acide ou de base ne modifiera pas le pH du milieu. Le pKa des acides humiques, fulviques et carboxyliques est proche de 4, celui des acides phénoliques proche de 10. Il en résulte que les eaux naturelles chargées en matière organique ont des pH relativement stables autour de 5.

2.2 La chimie des processus d'échange des cations

Les processus d'échange des cations à la surface des sols sont contrôlés par des équilibres thermodynamiques entre les particules et la solution du sol. Ces équilibres sont déterminés par les propriétés chimiques des éléments, en particulier leur affinité avec les particules argileuses du sol et leurs concentrations relatives dans le milieu. D'une manière générale la force d'adsorption, ou affinité, des cations sur les particules du sol peut être comparée : adsorption forte : $\text{Al}^{3+} > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ = \text{NH}_4^+ > \text{Na}^+ > \text{H}^+$: adsorption faible (Cooper, 2002).

D'autre part, les cations auront tendance à se déplacer vers le milieu où leur concentration est la plus basse. En milieu acide ce processus est facilité : même si leur affinité pour les particules est relativement faible, les protons, s'ils sont en forte concentration dans l'eau, auront tendance à déplacer les autres cations. Cela peut entraîner une perte d'éléments nutritifs des sols vers les eaux. La figure ci-dessous schématise le type d'échange que l'on peut observer. Le transfert des cations basiques de la particule de sol vers l'eau sera facilité par la présence d'anions acides (SO_4^{2-} et NO_3^-) en solution.

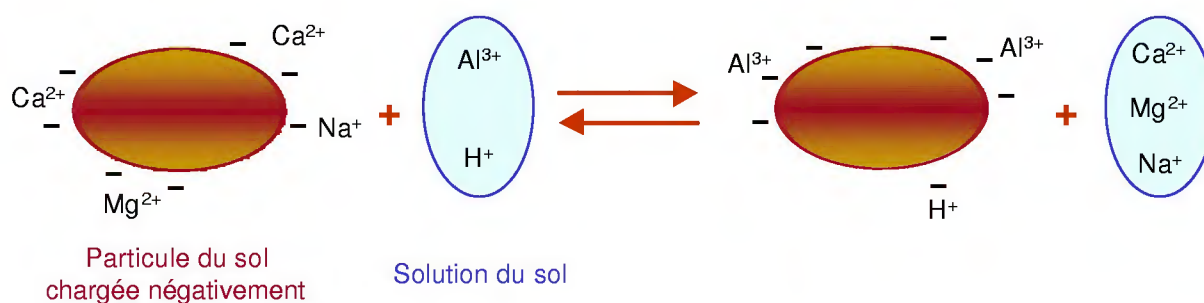


Figure 2-4 : Exemple d'échanges de cations entre la surface d'une particule de sol et la solution du sol. D'après Cooper, 2002.

Le nombre de charges négatives sur les particules des sols dépend de leur nature : les sables ont peu de sites auxquels peuvent s'attacher des cations, tandis que la matière organique, qui est en partie composée d'acides faibles, en présente davantage. Ces charges négatives sont autant de sites sur lesquels peuvent venir s'adsorber des ions positifs, les cations. Le nombre de sites d'adsorption pour les cations est représenté par la **capacité d'échange cationique** (CEC) du sol. Les sables ont normalement une CEC < 1 méq/100g, tandis que certains humus, riches en matière organique, ont des CEC de l'ordre de 300 - 400 méq/100g. La CEC d'un sol contenant une quantité habituelle de matière organique (environ 5 %) est de l'ordre de 10 à 30 méq/100g (Cooper, 2002 ; Manahan, 1994). Il est utile de connaître la capacité d'échange d'un sol, d'autant plus que c'est à partir de cette mesure qu'est établi le taux de saturation en bases du sol (somme des cations basiques / CEC), un paramètre nécessaire pour évaluer la fertilité du sol et sa capacité de résistance à l'acidification. La CEC diminue au fur et à mesure que la matière organique est minéralisée et quand le sol devient plus acide ou plus oxydant.

3 PROCESSUS CHIMIQUES D'ACIDIFICATION DES SOLS ET DES EAUX

3.1 Les sources atmosphériques d'acidification

3.1.1 L'azote atmosphérique

L'azote réactif d'origine anthropique est émis dans l'atmosphère essentiellement :

- sous forme d'oxyde d'azote ou NO_x (NO, NO₂⁻, NO₃⁻) produits par combustion (environ 100 millions de tonnes chaque année à travers le monde),
- sous forme d'ammoniac (NH₃) appliqué sur les sols comme fertilisant ou produit par les animaux d'élevage,
- sous forme de protoxyde d'azote (N₂O) et de monoxyde d'azote (NO) produits par la transformation microbienne des fertilisants azotés.

Les sources naturelles d'oxydes d'azote émettent plusieurs centaines de millions de tonnes d'azote par an (Galloway *et al.*, 1996; Manahan, 1994).

3.1.2 Le soufre atmosphérique

A la suite des efforts de réduction d'émissions qui ont eu lieu en Europe depuis les années 70-80, les émissions de soufre ont fortement diminué. La France a baissé ses émissions de soufre de 74 % entre 1980 et 1998 (Bouchereau et Oudart, 2000). Toutefois les activités anthropiques introduisent quand même environ 100 millions de tonnes de soufre dans l'atmosphère chaque année dans le monde, essentiellement à travers la combustion de charbon et de fuels et sous forme de SO₂. En présence d'espèces oxydantes aussi présentes dans l'atmosphère (radicaux libres, ozones, oxydes d'azote ...), le dioxyde de soufre est oxydé en sulfate et en acide sulfurique (Manahan, 1994).

Dans les zones où les apports atmosphériques ne sont pas dominants, les couches d'humus contiennent une large proportion de soufre organique, issu de la dégradation de résidus de plantes ou d'animaux. La proportion de sulfate par rapport au soufre total augmente avec la profondeur du sol.

3.1.3 Les retombées atmosphériques sèches et humides

Les retombées atmosphériques peuvent être sous la forme de dépôts secs (particules sèches ou gaz) ou de dépôts humides (pluie, pluviolessivats, neige, grêle, brouillards ou nuages). Les processus qui contrôlent ces dépôts sont très différents les uns des autres.

En dehors de toute pollution, le pH de l'eau de pluie est de 5,5. Ce pH légèrement acide est dû à la présence naturelle de gaz carbonique dans l'air qui forme de l'acide carbonique quand il se dissout dans l'eau de pluie. La présence d'acide sulfurique, nitrique et chlorhydrique est susceptible de faire baisser ce pH.

Les sources d'acides nitrique et sulfurique ont été décrites plus haut. Les chlorures ont deux sources principales : les océans et l'activité humaine. S'ils sont d'origine marine, les ions chlorures n'ont pas de pouvoir acidifiant car ils sont associés à du sodium ou du potassium. Cependant, s'ils sont d'origine anthropique (incinération de PVC par exemple), ils sont émis seuls et ils peuvent former de l'acide chlorhydrique qui a un important pouvoir acidifiant.

Des résultats d'études en Europe et aux États Unis suggèrent que les valeurs minimum de pH dans les précipitations sont de l'ordre de 2,3, les moyennes aux alentours de 3,5 - 4,8 (Cape, 1993). Toutefois, en 6 ans de mesures du réseau RENECOFOR (1993 - 1998), aucun pH aux environs de 3 n'a été mesuré pour l'eau de pluie en France. La majorité des mesures se situent entre 4,5 et 5,5 (ONF, 1999; Ulrich *et al.*, 1993).

L'eau de pluie qui tombe sur les arbres et s'égoutte ensuite au sol (les pluviollessivats) se charge de la matière qui est déposée sur les feuilles par temps sec, en particulier de polluants acides (Ulrich *et al.*, 1999) mais aussi en matière organique dont 90 % est acide ce qui est dû aux acides carboxyliques et phénoliques qui la composent. La contribution de la matière organique à l'acidité des pluviollessivats dépend de leur concentration et augmente avec le pH. Elle est plus importante au printemps et en été qu'à l'automne ou en hiver (Fillion *et al.*, 1999).

La neige reste en contact avec le feuillage pendant de longues périodes durant lesquelles des échanges de cations ont lieu. Des concentrations de polluants jusqu'à 100 fois supérieures dans la neige en contact avec le feuillage que dans le reste de la neige ont été mesurées (Henderson, 1990). Ce type d'étude est rare et mériterait d'être vérifié pour comprendre le cycle des échanges qui affectent les arbres de haute montagne. En France, la proportion de forêts où la neige reste de longues périodes sur les arbres est faible par rapport à la surface totale des forêts (environ 15 millions d'hectares).

Les dépôts via les brouillards se différencient des autres types de dépôts humides par plusieurs caractéristiques (Fowler *et al.*, 1990; Ulrich *et al.*, 1993):

- Les gouttelettes qui forment les nuages sont jusqu'à 100 fois plus concentrées en polluants que les gouttes de pluie.
- Le bas des nuages est généralement plus chargé en polluants que le haut.
- Les brouillards de plaine sont généralement constitués de gouttelettes plus fines et sont donc moins mouillants que les brouillards de montagne.
- La fréquence des brouillards, et donc leur contribution pour les dépôts, augmente avec l'altitude.
- Les taux de dépôt de l'eau des nuages et des brouillards peuvent être jusqu'à 4 fois supérieurs sur les arbres que sur l'herbe. En effet, les arbres forment une surface rugueuse qui présente beaucoup plus de points de contact par unité de superficie qu'une zone couverte d'herbe.

En conséquence, dans les forêts de montagne, jusqu'à la moitié des composés apportés par les dépôts humides peut provenir directement des gouttelettes des brouillards (Cape, 1993; Kroll et Winkler, 1990 ; Saxena *et al.*, 1989). La contribution des brouillards en plaine est plus faible. Dans une vallée aux environs de Berne, elle serait de 5-6 % du dépôt total dans une période comprise entre l'automne et le printemps (Fuhrer, 1986).

La contamination des dépôts atmosphériques a un impact sur la chimie des sols mais peut aussi avoir un impact direct sur la santé des arbres. En effet, des réactions biochimiques entre les substances apportées par l'eau et celles présentes dans les feuilles peuvent perturber la santé des plantes. En particulier, les équilibres ioniques entre l'eau des précipitations et les tissus des feuilles peuvent être modifiés.

Un grand nombre de facteurs peuvent influencer la virulence de l'impact : l'espèce de l'arbre, sa position, le sol sur lequel il pousse, la quantité, la fréquence de l'exposition. Il faut noter toutefois que si de telles observations ont été faites, elles sont souvent le fruit d'expériences de laboratoire sur de jeunes plants. Or il est possible que ces résultats ne soient pas tous directement transposables aux arbres adultes (Cape, 1993).

À partir d'un pH dans les précipitations inférieur à 3,5, la structure microscopique des surfaces des feuilles peut être endommagée. Lorsque le pH des précipitations est inférieur à 3, les dégâts sur les feuilles sont généralement visibles bien que certaines espèces résistent bien jusqu'à des pH de l'ordre de 2. En France comme en Grande Bretagne aucun effet toxique direct causé par la présence de composés azotés dans les pluies n'a été observé sur les arbres (Bonneau et Landmann, 1993 ; Cape, 1993; NEGTA, 2001).

Les ions présents dans l'eau déposée sur des feuilles sont d'autant mieux absorbés par celles-ci que leur concentration est grande. Les apports en ions sont donc particulièrement importants quand l'eau se concentre en solutés au fur et à mesure que les gouttes d'eau sèchent sur les arbres. Il en résulte que l'impact des polluants contenus dans les pluies et les brouillards est d'autant plus important que les pluies et les brouillards sont intermittents et que les forêts se trouvent aux altitudes correspondant à la base des nuages (Cape, 1993).

Des dépôts humides acides augmentent le taux de lessivage des cations (Ca^{++} , K^{+} et Mg^{++}) des feuilles. À des pH très bas, il y a alors modification de la structure de la feuille. Aux pH généralement observés sur le terrain, il n'a pas pu être démontré que cette perte de cations était détrimentale à la santé des arbres. Ce lessivage est probablement faible et est sans doute compensé par l'assimilation par les racines (Cape, 1993).

Les dépôts secs et humides sont aussi fonction du relief du sol et de la végétation qui l'occupe. Les prairies reçoivent moins de dépôts atmosphériques que les forêts. Il y a des différences sensibles entre les différentes espèces d'arbres. Augusto et Ranger (2001) suggèrent que les conifères captent plus efficacement les dépôts atmosphériques que les feuillus et se réfèrent à une étude de Ranger et Nys (1994) selon laquelle les épicéas captent 155 % plus d'azote atmosphérique que les chênes sessiles, 50 % plus de soufre, 10 % plus de calcium et 15 % moins de potassium.

3.1.4 Dépôts atmosphériques en France

Les Tableaux 3-1 et Tableau 3-2 donnent des valeurs de dépôts atmosphériques en azote, soufre et cations basiques en France.

Les valeurs moyennes des dépôts d'ammoniac en France (Tableau 3-2) sont couramment de l'ordre de 5 à 8 $\text{kg ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ ce qui correspond aux prédictions du modèle EMEP (4 - 10 $\text{kg ha}^{-1} \text{an}^{-1}$). Les valeurs les plus élevées (> 10 $\text{kg ha}^{-1} \text{an}^{-1}$) se trouvent dans les montagnes du nord-est de la France (Ardennes, Vosges) tandis que les valeurs les plus faibles (2 - 3 $\text{kg ha}^{-1} \text{an}^{-1}$) sont mesurées dans le sud-est. Les variations locales (2 - 12 $\text{kg ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ dans les Vosges) sont du même ordre de grandeur que les variations nationales. La Bretagne est la région où les émissions sont les plus fortes mais aucune mesure de dépôts ne semble y avoir été faite (Landmann, 2000; Ulrich *et al.*, 1993).

Tableau 3-1 : *Apports atmosphériques hors et sous couvert mesurés dans le réseau RENECOFOR entre 1993 et 1996 ou issus des données de diverses mesures entre 1966 et 1990. (1) Calcul approximatif ; (2) Données RENECOFOR ; (3) Autres données. (Ranger et al., 2000; Ulrich et al., 1993; Ulrich et al., 1998)*

	Apports hors couvert kg ha ⁻¹ an ⁻¹		Apports totaux sous couvert kg ha ⁻¹ an ⁻¹		Dépôt atmosphérique total au sol ⁽¹⁾ kg ha ⁻¹ an ⁻¹
	Valeur moyenne	Amplitude	Valeur moyenne	Amplitude	
Azote nitrique	4	2 - 8	5	0 - 12 ⁽²⁾ 1 - 33 ⁽³⁾	
Azote ammoniacal	5	2 - 11	5	0 - 10 ⁽²⁾ 1 - 33 ⁽³⁾	
Azote	9		10		15
Soufre	7	4 - 19	12	6 - 37 ⁽²⁾ 10 - 95 ⁽³⁾	12
Sodium	12	2 - 49	23	2 - 136 ⁽²⁾ 4 - 62 ⁽³⁾	23
Potassium	2	1 - 3	22	11 - 37 ⁽²⁾ 5 - 74 ⁽³⁾	3
Calcium	7	2 - 18	12	6 - 24 ⁽²⁾ 4 - 48 ⁽³⁾	10
Magnésium	2	0 - 7	4	1 - 19 ⁽²⁾ 1 - 13 ⁽³⁾	2

Tableau 3-2 : *Niveaux minimum et maximum de dépôts d'azote ammoniacal dans différents réseaux d'études. Tableau extrait de Landmann, 2000.*

Dépôts de NH ₃ ou NH ₄ ⁺	Origine	Nombre de sites	Années de référence	Min kg ha ⁻¹ an ⁻¹ Région	Max kg ha ⁻¹ an ⁻¹ Région
Humides (mesures)	Bapmon	6	1979-1989	1 Sud Est	6,2 Nord
Totaux hors forêt (mesures)	Bapmon, MERA, EMEP, RENECOFOR	27	1993-1995	2-3 Sud Est	13 Montagnes de l'Est
	Vosges	10	1989-1991	3 Vosges	12 Vosges
Totaux en forêt (mesures)	RENECOFOR	27	1993-1996	0,4 Sud Est	10,5 Ardennes
	Vosges	10	1989-1991	1 Vosges	12 Vosges
	Études diverses	25	1978-1990	1 Sud Est	33 Ardennes
Totaux (model)	EMEP		1995	2 - 4 Sud Est	10 - 20 Bretagne > 20 localement

3.2 L'acidification dans les sols

La Figure 3-1 représente schématiquement les principaux processus qui peuvent acidifier les sols (flèches rouges et foncées) ou les protéger contre l'acidification (flèches bleues et claires). Ces processus sont discutés plus en détail dans les paragraphes suivants.

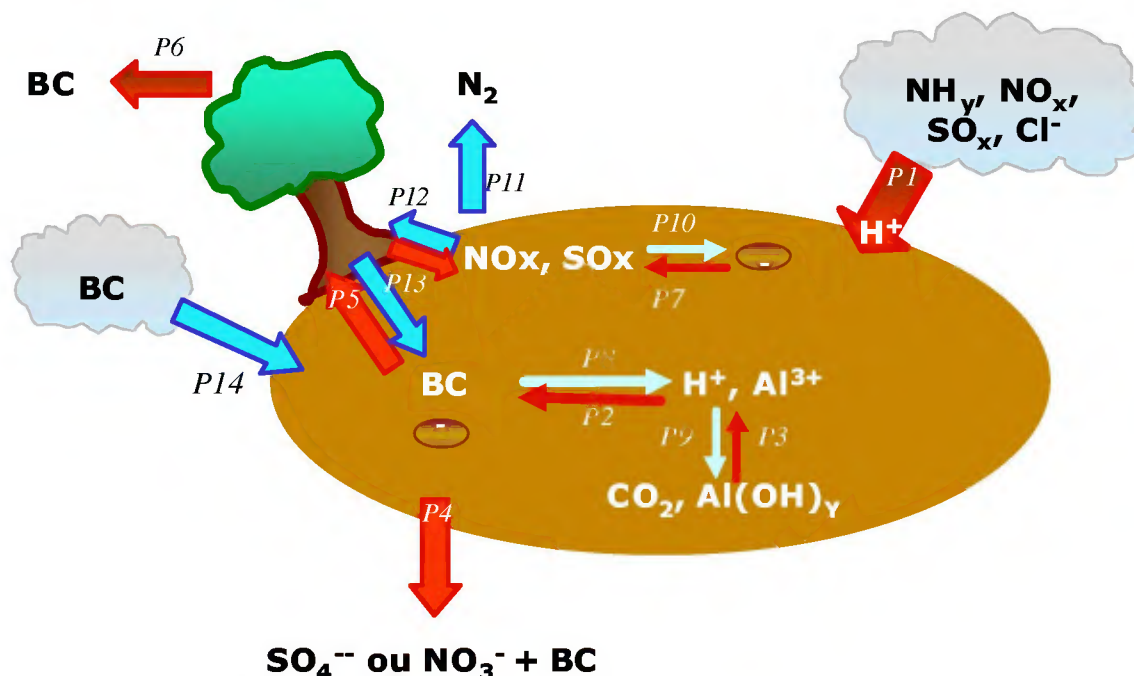


Figure 3-1 : Représentation schématique des principaux processus contrôlant l'acidification du sol. Les flèches rouges symbolisent les mécanismes acidifiants, les bleus les mécanismes freinant l'acidification. Les numéros sont repris dans le texte.

3.2.1 Mécanismes acidifiants

Tout processus qui diminue la quantité de cations échangeables du sol et/ou augmente le nombre de charges négatives du sol sans augmenter la teneur en cations basiques est un processus qui acidifie le sol. Ces processus peuvent être naturels ou avoir des causes anthropiques. Ce sont :

- P1 : Les dépôts atmosphériques de substances acidifiantes. Voir Section 3.1.
- P2 : Le déplacement des cations basiques adsorbés sur les particules de sols par les protons et les ions aluminium. Voir Section 2.2.
- P3 : Dissolution des oxydes d'aluminium et formation de bicarbonates. Voir Section 2.1.7. La formation des carbonates est le résultat des équilibres chimiques entre le gaz carbonique (CO_2) dissous dans l'eau et les carbonates (CO_3^{2-} , HCO_3^- et H_2CO_3). Aux pH naturels des eaux de surface, les formes dominantes sont la forme hydratée de CO_2 et HCO_3^- .
- P4 : Le lessivage de cations basiques des sols vers les eaux. Quand la quantité d'anions dans la solution augmente suite à des apports atmosphériques, à une production d'anions dans le sol (nitrification) ou à une fertilisation, la charge de ces anions dans l'eau doit être balancée par des cations ou des protons qui étaient précédemment

adsorbés aux particules du sol. Binkley et Hogberg (1997) rapportent les résultats d'une étude qui suggère que 30 % des cations basiques du sol pourraient être perdus quand les ions sulfate et nitrate sont lessivés d'un horizon du sol mais notent que cette estimation pourrait être excessive.

- P5 : L'assimilation des cations basiques par les plantes : ces processus conduisent à une baisse du taux de saturation en bases du sol et donc à une baisse de sa capacité à résister à l'acidification. Cela se produit :
 - ⇒ Au fur et à mesure qu'une forêt vieillit et que de plus en plus de cations sont stockés dans la biomasse (Binkley et Hogberg, 1997; Thimonier *et al.*, 1994).
 - ⇒ Lorsque la croissance des plantes est accélérée par un nouvel apport d'azote (par fertilisation ou par apport atmosphérique).

De plus, ce processus est accompagné par le rejet par les racines d'un proton pour chaque cation monovalent (K^+ , NH_4^+) et de deux protons pour chaque cation bivalent (Ca^{2+} , Mg^{2+}). Un proton est également libéré dans le sol pour chaque molécule d'ammoniac absorbée par la plante. Les charges électriques sont ainsi équilibrées dans la masse de la plante et dans le sol mais le résultat est une augmentation du nombre de protons, et donc de l'acidité, dans le sol.

- P6 : Export des cations basiques lors de récoltes. Ces exports sont accompagnés d'exports d'azote et de soufre dans la matière organique des plantes coupées et ramassées. Il a toutefois été montré que la fertilité des sols est mieux conservée si le bois mort des forêts est laissé sur place plutôt que ramassé.
- P7 : Désorption d'anions acides des particules du sol. Les anions (nitrate et sulfate) peuvent être adsorbés à la surface des particules, où ils sont stockés, jusqu'à « saturation » du sol (processus P10). Le processus inverse de désorption permet le retour vers des concentrations « normales ». Les vitesses de ces processus sont mal connues.

(Processus non représentés sur la Figure 3-1)

- La minéralisation incomplète de la matière organique : celle-ci transforme les résidus des plantes et d'animaux et conduit à la formation de nitrates, d'acides organiques par les organismes vivant dans le sol (champignons, bactéries, racines). L'activité des organismes du sol peut être accélérée à la suite d'éclaircissements de la forêt, lors de coupes de bois par exemple, car cela change les conditions climatiques locales (davantage d'ensoleillement et température plus élevée, Waide *et al.*, 1987). La quantité d'acide issue de cette matière organique dépend de sa nature, de ses taux d'accumulation et du pH du sol (Binkley et Hogberg, 1997; NEGTA, 2001). Ainsi les sols sous les conifères sont plus acides que sous les feuillus en partie parce que les conifères, plus que les feuillus, filtrent et retiennent efficacement les apports atmosphériques, en particulier les ions acides tels que les sulfates. Ces dépôts sont transférés au sol soit lors de lessivage par la pluie soit lorsque les aiguilles tombent (Augusto et Ranger, 2001). Les conifères produisent aussi une litière qui est lente à se décomposer et qui génère de fortes quantités d'acides organiques, qui sont acidifiants. Le nitrate libéré par la minéralisation de la matière organique est acidifiant s'il est en excès par rapport à son assimilation et son immobilisation par les plantes et les microorganismes.

- La nitrification (représenté sur la Figure 2-1 mais pas sur la Figure 3-1) : cette réaction, catalysée par certains micro-organismes spécifiques, oxyde l'ammonium (NH_4^+) en nitrite (NO_2^-) puis en nitrate (NO_3^-). Elle génère deux protons pour chaque molécule d'ammonium transformée en nitrate. Elle est donc acidifiante. La nitrification atteint des taux maximum à des pH du sol compris entre 5,5 et 6,5 (Kasica et Good, 1997). Des périodes courtes mais intenses de nitrification seraient à l'origine d'accumulations de nitrate dans le sol pendant les périodes de sécheresse. Ce nitrate accumulé peut abaisser le pH de l'eau du sol aux premières pluies de plusieurs dixièmes d'unités pH (Binkley et Hogberg, 1997). De tels phénomènes sont naturels et observés après chaque épisode pluvieux mais peuvent être amplifiés par des changements climatiques si ceux-ci conduisent à des périodes de sécheresse prolongées. Ils peuvent être particulièrement néfastes s'ils ont lieu au moment où une espèce est à un stade de vie sensible (œufs ou larves par exemple).

3.2.2 Les mécanismes freinant l'acidification

- P8 : Déplacement d'anions acides des particules du sol par des cations basiques. Cette réaction peut avoir lieu si le stock de cations basiques est augmenté par une minéralisation complète de la matière organique ou par un apport extérieur tel que le chaulage qui introduit une source de cations basiques rapidement solubles. Les expériences menées dans les pays scandinaves ne concluent pas toutes que le chaulage a un effet bénéfique sur la santé des forêts. Les sites français qui ont été chaulés semblent avoir bénéficié du traitement (Binkley et Hogberg, 1997; Landmann, 1999; NEGTA, 2001).
- P9 : Formation de gaz carbonique et précipitation d'aluminium : cette réaction dépend des conditions environnementales (température, pH ...).
- P10 : L'immobilisation des sulfates et des nitrates sur les particules du sol. Cela peut se faire selon plusieurs routes dont l'adsorption des sulfates sur les oxydes de fer et d'aluminium ou l'incorporation de l'azote inorganique (nitrate ou ammonium) dans la matière organique du sol. Ce dernier processus est rapide : de quelques minutes à quelques jours (Compton et Boone, 2002; Koptsik *et al.*, 1999; NEGTA, 2001).
- P11 : La réduction microbienne des sulfates (réaction réversible) et des nitrates (dénitrification) qui est un processus qui élimine le nitrate présent dans le sol ou à la surface des arbres. Les taux de ces réactions sont fonctions de l'humidité, de la température, de la quantité et de la qualité (rapport C/N) de la matière organique dans le sol. Des taux mesurés dans le sol d'une forêt canadienne sont $10 \text{ mmol m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ en conditions aérobiques (= en présence d'oxygène), $65 \text{ mmol m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ en conditions anaérobiques (= en l'absence d'oxygène). La dénitrification peut être un processus particulièrement significatif dans le calcul des flux d'azote en automne quand les sols sont humides et chauds ce qui favorise les conditions anaérobiques (Bélanger *et al.*, 2002a; Mellilo *et al.*, 1983; NEGTA, 2001; Strong et Fillery, 2002).
- P12 : L'assimilation d'ions acides par les plantes. L'immobilisation de l'azote dans le sol par des champignons (mycorhizal fungi) est un processus qui a été suggéré comme puits pour l'azote (Aber *et al.*, 1998).
- P13 : La minéralisation complète de la matière organique (en particulier celle du bois mort dans les forêts) détruit les acides organiques et rend au sol les cations qui ont formé les éléments nutritifs de la plante. Des études ont montré que cette reminéralisation était suffisante pour que le pH du sol augmente d'une unité. Cette « alcalinisation » du sol serait du même ordre de grandeur que l'acidification qui a lieu

lors de la croissance de la forêt ce qui impliquerait que les forêts soient soumises à un cycle naturel d'acidification / alcalinisation. Des études sont nécessaires pour valider cette hypothèse (Binkley et Hogberg, 1997; Dambrine *et al.*, 1998b).

- P14 : Dépôts atmosphériques de cations : ce processus est important sur la France. Les poussières venues du Sahara y renouvellent régulièrement le stock de cations basiques contrebalançant ainsi au moins en partie les effets des apports acides. L'activité industrielle produit aussi des particules chargées en cations basiques. Les procédés de collection des poussières étant de plus en plus efficaces, la quantité de cations basiques d'origine industrielle se déposant sur les sols a diminué parallèlement aux dépôts de sulfate et plus vite que le total des dépôts des substances acidifiantes (les dépôts de nitrates ont peu baissé). Il a été suggéré que cette baisse de dépôts de cations basiques pourrait expliquer l'absence d'amélioration dans les cours d'eau nord américains et européens (Bélanger *et al.*, 2002a ; Boudot *et al.*, 2000 ; Hedin *et al.*, 1994 ; Hedin et Likens, 1996 ; Psenner, 1999; Stoddard *et al.*, 1999).

(Processus non représentés sur la Figure 3-1)

- Une forte pluviométrie : si la pluie est moins acide que le sol, elle dilue l'acidité de la solution du sol ce qui en augmente le pH (Augusto et Ranger, 2001).
- Le rejet dans le sol d'ions OH⁻ par les racines pour chaque anion (NO₃⁻, SO₄⁻) absorbé. Ce processus permet d'équilibrer les charges électriques dans la plante et dans le sol.
- L'altération de la roche : elle libère des cations de la roche mère. Les processus qui contrôlent les vitesses d'altération sont mal connus. Il serait pourtant essentiel de pouvoir les définir avec précision pour en déduire l'évolution des sols sur le long terme. Ces taux d'altération dépendent de la nature de la roche mère mais aussi des espèces végétales présentes (Binkley et Hogberg, 1997). Dans les sols dont l'épaisseur ne dépasse pas environ 40 cm, les plantes à racines profondes (tels que les arbres) peuvent faire remonter des cations depuis la roche mère, s'opposant ainsi à l'acidification des sols (Havlicek et Gobat, 1996). Les conifères semblent être associés à des taux de dissolution plus rapides que les feuillus, en partie parce que les sols sous les conifères sont plus acides que sous les feuillus et en partie parce que les espèces de champignons qui interviennent dans la dissolution des minéraux ne sont pas les mêmes sous les deux types d'arbres. Quelques exemples de taux d'altération des roches sont donnés dans le Tableau 3-3. Certaines études suggèrent qu'il y a au moins un ordre de grandeur de différence entre les taux de dissolution des minéraux mesurés en laboratoire et ceux calculés à partir de mesures sur le terrain (Augusto *et al.*, 2000b).

Tableau 3-3 : Exemples de taux d'altération des sols (Kämäri *et al.*, 1995; Koptsik *et al.*, 1999; Sverdrup et Warfinge, 1995)

Location du sol	Type de sol	Type de végétation	Taux d'altération
Frontière Norvège - Russe	Podzols fins et grossiers	Forêts de pins et bouleau épars. Buissons.	50 - 28 éq ha ⁻¹ an ⁻¹
Suède	Calcul du modèle PROFILE		> 300 éq ha ⁻¹ an ⁻¹ pour plus de la moitié de la Suède
Finlande subarctique	Podzols		Ca, Mg : 350 éq ha ⁻¹ an ⁻¹ K, Na : 100 éq ha ⁻¹ an ⁻¹

Les facteurs qui affectent la dissolution des minéraux sont (Augusto *et al.*, 2000b) :

- ⇒ Le pH : les taux de dissolution sont minimaux entre pH 4,5 et 8 et augmentent en solutions acide et basique.
- ⇒ La température : la dissolution des minéraux généralement augmente avec la température mais pas la solubilité de l'aluminium qui elle diminue. Les changements climatiques pourraient expliquer jusqu'à 10 % de la baisse des concentrations d'aluminium dans les lacs tchèques (Skjelkvåle, 2003).
- ⇒ La force ionique de la solution : les taux de dissolution diminuent lorsque la solution du sol est fortement chargée en ions calcium, potassium et sodium. À l'inverse, ils augmentent si la solution du sol est renouvelée (forte pluviométrie).
- ⇒ La présence de ligands augmente la dissolution des minéraux en neutralisant une partie des éléments présents en solution. Les équilibres de dissolution des particules se font alors comme s'il n'y avait pas de minéraux précédemment dissous.
- ⇒ La forme et la taille des particules minérales : plus leur surface spécifique est grande, plus la dissolution est importante. Plus il y a de sites à haute énergie et des défauts à la surface des particules, plus la dissolution est rapide. Le nombre de ces sites diminue avec le temps ce qui explique une baisse des taux d'altération avec le temps.
- ⇒ La position du minéral dans le sol : les taux de dissolution sont plus élevés dans les couches de surface (0-5 cm) qu'en profondeur (40 cm) sans doute à cause de la plus grande activité biologique en surface, de la présence de la matière organique, d'une différence de l'hydrologie, de l'effet tampon des sols, en bref d'une plus grande réactivité des couches de surface. Ceci est vrai lorsque de nouvelles particules sont ajoutées au sol comme c'est le cas dans un système expérimental. Dans un sol naturel, soumis à l'érosion depuis «longtemps», les principales sources de cations basiques peuvent se trouver dans des couches plus profondes (Koptsik *et al.*, 1999), peut être parce que les couches de surface sont lessivées au fur et à mesure que de nouvelles particules «solubles» y sont apportées.

Rappelons ici que le pouvoir tampon du sol est une caractéristique du sol qui correspond aux réserves qu'il a pour assimiler des apports acidifiants sans que son pH soit modifié. Les acides organiques, l'aluminium à des pH inférieurs à 5, les carbonates dans la solution du sol, la teneur en cations basiques des minéraux qui le composent contribuent au pouvoir tampon (Bélanger *et al.*, 2002b).

3.3 L'acidification dans les eaux de surface

Les études des lacs et des cours d'eau montrent que les caractéristiques du bassin versant sont déterminantes pour la qualité des eaux de surface. En particulier, sont identifiés comme paramètres déterminants (Dambrine *et al.*, 1998b; Guérol, 1999; Kamenik *et al.*, 2001; Kopacek *et al.*, 2004) :

- La taille du bassin versant : plus il est étendu, plus l'eau a le temps de s'infiltrer vers des horizons où son acidité sera neutralisée. Les cours d'eau en tête de bassin versant auront donc tendance à être acidifiés. C'est dans ces zones que sont faits de nombreux captages d'eau potable en France.
- La position géographique, à cause d'une différence d'utilisation des sols (présence de pâturages au nord où il y a apport d'azote sous forme de déjections animales) et

d'ensoleillement (productivité accrue dans le sud qui conduit à une rétention d'azote dans les plantes).

- La nature des sols rencontrés : plus l'eau traverse des zones dont le sol est riche en bases, plus son acidité est neutralisée.
- La végétation du bassin versant qui retient l'eau, ce qui augmente le lessivage des sols (et donc le pH des eaux). La végétation aquatique influence aussi la chimie de l'eau.
- La pente du bassin versant : plus elle est importante, plus le lessivage des sols est augmenté.
- L'exposition des lacs : il en dépend les taux d'enneigement et le temps de gel du lac, ce qui influence les taux de lessivage et la végétation dans le lac.

En général, les dépôts atmosphériques directs de l'atmosphère vers l'eau, sans passer par les sols, ne représentent qu'un pourcentage faible par rapport aux apports totaux, surtout dans les milieux éloignés de sources locales. Attention toutefois aux généralités : Rimmelin *et al.* (1999) ont montré qu'une part significative (26 % sur l'année) des apports d'azote minéral au bassin d'Arcachon était d'origine atmosphérique.

Ainsi l'influence des dépôts atmosphériques sur les concentrations observées dans les eaux de surface est plus ou moins modulée en fonction des caractéristiques du bassin versant et de la végétation qui le couvre. Cela peut conduire à des réponses différentes aux baisses des dépôts. Dans la plupart des régions européennes et en Amérique du Nord, on observe un temps de latence entre la baisse des dépôts et la baisse des concentrations dans les eaux de surface. À l'inverse, dans les Alpes et dans les îles britanniques, la réponse est presque immédiate (Skjelkvåle, 2003).

Une modélisation du passage des nitrates du sol vers les eaux de surface en Bretagne montre que ce transfert se fait en plusieurs étapes et à des vitesses différentes. Les nitrates déposés sur le sol traverseraient les 20 premiers centimètres du sol en une dizaine d'années, car ils sont recyclés plusieurs fois avant de quitter cette zone. Il leur faudrait ensuite 4 à 5 ans pour atteindre la nappe phréatique, située à une profondeur d'environ 10 m. Le transfert de la nappe à la rivière est l'étape la plus lente : il faudrait alors entre 10 et 15 ans. Le transfert est toutefois d'autant plus rapide que les dépôts ont lieu à proximité des cours d'eau (Bordenave, 2002).

Les conditions climatiques influencent aussi l'acidification des eaux : des épisodes hydrométéorologiques tels que la fonte des neiges ou de fortes pluies peuvent causer des acidifications temporaires des eaux de surface qui ont perdu peu ou prou leur pouvoir tampon. Ainsi, en tête de ruisseau dans les Alpes, des événements acides ont été observés à la fonte des neiges et à la suite d'orages (Guérol, 1999; Lepori *et al.*, 2003; Robinson *et al.*, 2001).

L'apport de sels marins peut également être une cause temporaire d'acidification des eaux de surface à proximité des côtes. Apportés par les embruns au cours de tempêtes, les sels marins sont constitués de cations (Na^+ , Ca^{++} , K^+ , Mg^{++} , ...) et d'anions (Cl^- , SO_4^{2-} , ...). L'acidification qu'ils causent est le résultat d'une modification des équilibres chimiques du sol et de l'eau du sol causée par une modification des proportions de cations acidifiants par rapport aux cations basiques. Ceux-ci déplacent sur les particules du sol les ions aluminium et les protons qui, lessivés, causent une acidification des eaux douces voisines. Cet effet est réversible et disparaît après quelques jours ou quelques semaines lors d'épisodes isolés.

Toutefois, pendant les années où les tempêtes sont fréquentes³, une accumulation de sels marins dans les écosystèmes peut générer une augmentation de l'acidité des eaux. Cette acidification naturelle cause un bruit de fond qu'il est important, mais parfois difficile, de séparer des évolutions de l'acidification causées par les variations de la pollution atmosphérique (Evans *et al.*, 2001b). C'est pourquoi, dans les modèles, le « sulfate marin » est habituellement soustrait des dépôts de sulfate mesurés. Le sulfate marin est estimé à partir du rapport $\text{SO}_4^- / \text{Cl}$ qui est constant dans l'eau de mer (les variations de ce rapport sont négligeables comparées aux incertitudes dont on s'accommode dans le cadre des études sur l'acidification et l'eutrophisation ; Evans *et al.*, 2001a; NEG-TAP, 2001). L'effet des apports marins est particulièrement sensible dans les zones où les sols sont plutôt acides et a été observé en Grande Bretagne, en Norvège, dans le sud de la Suède et aux États-Unis (Evans *et al.*, 2001b; Skjelkvåle *et al.*, 2001a; Wright *et al.*, 1988).

Dans les lacs et les cours d'eau acidifiés, l'alcalinité peut être régénérée par un certain nombre de processus naturels, semblables à ceux observés dans les sols : la réduction des sulfates, la dénitrification, les échanges d'ions avec les sédiments, la dégradation de la matière organique dissoute. Cette régénération peut se faire en suivant le « chemin inverse » de l'acidification : Le pH augmentera à la vitesse à laquelle il a diminué pendant l'acidification.

Si l'acidification a été intense, la régénération peut suivre un chemin différent, le long duquel les valeurs du pH, de l'ANC, les teneurs en cations, en azote ou en soufre, donneront au milieu des propriétés différentes de celles qu'il a eues pendant l'acidification. En particulier, on observe souvent que le pouvoir tampon des eaux de surface est plus important avant qu'il ait été soumis à l'acidification qu'après. Il en résulte que pendant les périodes de rétablissement, le système peut avoir un pouvoir tampon beaucoup plus faible qu'avant son acidification. Tout processus menant à une acidification (tel qu'un orage) aura alors un impact beaucoup plus important qu'avant la dégradation du système (Figure 3-2).

Malgré les baisses sensibles des émissions en Europe, le soufre reste le principal responsable de l'acidification des ruisseaux européens. Pretchel *et al.* (2001) ont observé une relation linéaire entre apports atmosphériques de soufre et concentration de sulfate dans les eaux de surface. Une telle relation à l'échelle de l'Europe cache de fortes variations régionales. Par exemple, selon Rogora *et al.* (2001), les dépôts atmosphériques d'azote contribuent à l'acidification du Lac Majeur en Italie qui est en partie compensée par les cations basiques apportés par la poussière venue du Sahara.

³ Il en résulterait une relation entre l'oscillation nord atlantique et l'acidification des lacs de l'ouest de la Grande Bretagne. L'oscillation nord atlantique est un phénomène océanique et météorologique cyclique qui influence le climat (températures, précipitations) tout autour du bassin atlantique, et tout particulièrement sur l'Europe. <http://www.ifremer.fr/lpo/thuck/nao/nao.html>

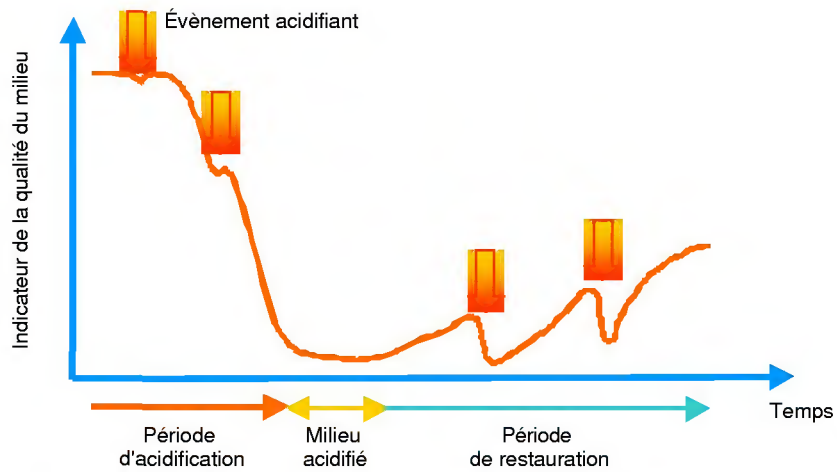


Figure 3-2 : Représentation schématique de l'évolution de la qualité du milieu aquatique mesurée par exemple par son pH ou son alcalinité en fonction du temps pendant une période d'acidification suivie d'une période de restauration. Les grosses flèches représentent des événements acidifiants (par exemple un orage) de même intensité mais d'effets différents selon la période.

4 LES EFFETS DE L'ACIDIFICATION SUR LES ORGANISMES VIVANTS

4.1 Impacts de l'acidification sur la flore

Les forêts européennes se sont développées sur des sols dans lesquels il y avait un élément nutritif limitant, généralement l'azote mais cela a pu aussi être le potassium ou le magnésium. Les forêts, et plus généralement les écosystèmes naturels ou semi-naturels, se sont adaptés aux limites de leurs sols, en ayant des taux de croissance et des espèces adaptées aux réserves disponibles. Les plantes se sont adaptées aux disponibilités en eau, en carbone, en lumière et en température. Les activités humaines ont modifié ces paramètres et ont donc modifié le développement de ces écosystèmes. Ces modifications ont été dans certains cas voulues et sont gérées activement (zones agricoles, pâturages, exploitations forestières...). Dans d'autres cas, qui nous intéressent ici, elles sont dues à la pollution et sont donc les conséquences négatives de l'activité industrielle. Ces dernières modifications du milieu naturel ont sans doute commencé au début de l'ère industrielle au XIX^{ème} siècle et ont pris des proportions critiques (ou ont été clairement identifiées à grande échelle) depuis une trentaine d'années.

D'un point de vue très théorique et simplifié, on peut imaginer que l'ajout de composés azotés à un écosystème se traduit par des modifications progressives de son fonctionnement :

1. Augmentation de la croissance des plantes.
2. Apparition d'espèces nitrophiles.
3. Saturation des sols en composés azotés.
4. Acidification des sols : baisse du pH et pertes de cations basiques ; dépérissement des plantes.
5. Titration des écosystèmes aquatiques, c'est-à-dire remplacement progressif des cations basiques par les cations acides avec *in fine* baisse du pH et des concentrations de cations basiques puis dépérissement de la flore et de la faune aquatique.

En parallèle, apparaît une sensibilité accrue aux stress naturels, tels que, pour la forêt, les vents, la sécheresse et les parasites.

Ce schéma, volontairement simpliste et qui ne prend pas en compte les effets de polluants autres que les composés azotés, suggère une stricte succession des effets alors que les changements dans les écosystèmes naturels sont progressifs et peuvent être simultanés. En particulier, l'apport de composés soufrés accélère l'apparition de l'acidification mais n'exclut pas qu'il y ait eutrophisation. C'est pourquoi, au sein de la convention LRTAP, on envisage les effets combinés des dépôts soufrés et azotés et non plus seulement l'acidification par le soufre en excluant les effets de l'azote. Le protocole de Göteborg est en conséquence « multi-polluants et multi-effets ». La suite de ce chapitre expose les stades de dégradation des milieux lors d'apports excessifs en polluants azotés et soufrés.

Les effets négatifs de l'acidification sur les plantes ont été observés dans les cas où les doses de composés soufrés et azotés étaient importantes. Les effets des deux polluants s'ajoutaient pour modifier les caractéristiques du sol en l'appauvrissant de ses cations basiques et en dissolvant dans la solution du sol les ions métalliques jusqu'à des concentrations qui étaient toxiques pour les plantes. Les émissions de soufre en France ont baissé de 80 % depuis le maximum observé dans les années 1980, celles des oxydes d'azote ont baissé de 29 % mais celles d'ammoniac ont augmenté de 3 % (Figure 11-2). L'image donnée par ces valeurs françaises reflète plus ou moins ce qui s'est passé ailleurs

en Europe et aux États-Unis (Brignon et Soleille, 2002; Hadley et Toumi, 2002; Kelleher, 2002; NEGTA, 2001). C'est peut être grâce à l'effort fait sur les émissions de soufre que les écosystèmes forestiers n'ont pas tous connu les effets de l'acidification à l'échelle catastrophique prédite dans les années 70-80 (Landmann, 2002). Toutefois, les émissions de composés acidifiants continuent de laisser leur marque sur les écosystèmes européens et français.

Du point de vue de l'exploitation forestière, l'apport d'azote par l'atmosphère peut être considéré, dans une certaine mesure, comme un avantage. D'après les études de l'INRA, les sols forestiers sont en général des sols dont la fertilité est limitée. Leur productivité dépend d'une quantité réduite d'éléments limitants, en particulier de la quantité d'azote disponible (INRA, 2002a). Les apports anthropiques de cet élément peuvent en partie expliquer les fortes hausses de productivité observées dans les forêts européennes : la croissance des forêts suédoises est en moyenne 30 % plus élevée en 1990 qu'en 1950 (Binkley et Hogberg, 1997), l'accroissement radial des arbres a augmenté entre 1850 - 1865 et 1986 - 1990 dans plusieurs régions françaises comme le montre le Tableau 4-1 ci-dessous (INRA, 2002b) :

Tableau 4-1 : Accroissement radial des arbres dans les forêts françaises entre 1850-1860 et 1986-1990 (INRA, 2002b).

Espèce	Région	Accroissement
Sapin	Vosges	160 %
Sapin	Jura	130 %
Épicéa	Vosges	130 %
Hêtre	Vosges	90 %
Chêne sessile	Plateau lorrain	90 %
Chêne pédonculé	Plateau lorrain	55 %

Toutefois, ces chiffres doivent être considérés avec précaution car ils reflètent non seulement les effets des apports en nutriments mais aussi des changements dans les techniques de sylviculture, des modifications de méthodologie de mesure ainsi que des changements des conditions climatiques (INRA, 2002b). Dhôte *et al.* (2000) insistent sur le fait qu'on connaît mal les causes des changements de productivité des forêts ni l'importance relative des trois facteurs qui peuvent avoir une influence positive sur la productivité : les dépôts d'azote, l'augmentation de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère et le réchauffement du climat auquel est associée une augmentation des périodes de croissance de la végétation sur l'année. En effet, des corrélations significatives ont montré l'influence positive des dépôts d'azote sur la croissance des arbres mais aussi les influences positives de l'augmentation de la température et du taux de CO₂ dans l'atmosphère (Cannell *et al.*, 1998 ; NEGTA, 2001). Hasenauer *et al.* (1999) suggèrent qu'en Autriche les périodes annuelles de croissance des arbres se sont allongées de 14 jours depuis 1961 suite aux changements climatiques. Les Allemands Fabian et Menzel avancent un allongement des périodes de croissance de 10,5 jours entre 1959 et 1993 (Fabian et Menzel, 1999).

Une forte productivité se manifeste par une augmentation de la hauteur des arbres et de leur indice foliaire (volume de l'arbre / nombre de feuilles). Ces deux paramètres sont des facteurs qui peuvent augmenter la fragilité des arbres face aux intempéries et aux vents violents, face aux sécheresses (le stress hydrique est augmenté lorsqu'il y a davantage de feuilles) et face aux besoins en nutriments. Des éclaircies peuvent limiter ces causes de fragilité des forêts.

L'azote anthropique qui est apporté aux écosystèmes par l'atmosphère peut être utilisé par les plantes pour leur croissance mais peut aussi dans une certaine mesure accroître le taux d'azote dans les feuilles des arbres. Cela se traduit par une augmentation du rapport C/N dans les tissus des plantes et de leur litière. Il s'ensuit une modification du cycle de l'azote et plus particulièrement des taux de minéralisation dans les sols, comme il a été décrit dans la section 2.1.8. Une augmentation de la teneur en azote dans les feuilles peut aussi rendre les plantes plus sensibles aux attaques des insectes, à la sécheresse et au gel (Côté et Ouimet, 1996; NEGTA, 2001).

La sensibilité à la sécheresse peut être reliée à la présence des champignons symbiotiques (mycorhizes) qui vivent au niveau des racines des arbres. Les arbres échangent des composés carbonés contre une partie de leur alimentation hydrique et minérale fournie par les champignons. Mais il semble que la croissance de ces champignons diminue avec le rapport C/N des composés organiques produits par les racines des arbres. Une augmentation des dépôts atmosphériques d'azote augmente ainsi la sensibilité des arbres aux sécheresses (Marçais *et al.*, 2000). De plus, il est possible, bien que non vérifié, que la qualité du bois soit altérée quand sa concentration en azote augmente. Ceci pourrait avoir des conséquences pour l'industrie du bois (Dhôte *et al.*, 2000).

A court terme, l'acidification d'un sol solubilise les cations et donc les rend plus disponibles pour les plantes en général et les arbres en particulier ce qui augmente les taux de croissance, tant que l'abondance en cations basiques est suffisante. À long terme, l'acidification cause un lessivage du sol et une diminution des taux de cations basiques ce qui entraîne des carences en éléments nutritifs pour les plantes et une baisse de productivité (INRA, 2002a; NEGTA, 2001). Les cations, l'azote et le soufre excédentaires passent du sol au cours d'eau dans lesquels les excès d'éléments nutritifs modifient la composition de la flore et de la faune. Dans les eaux comme dans les sols, on observe alors des phénomènes d'acidification. Cela se traduit par une baisse de pH et une baisse de l'ANC.

4.2 La toxicité de l'aluminium

L'acidification des sols peut causer la perte des éléments nutritifs du sol, être toxique pour certaines plantes, mais en plus force le passage en solution de métaux lourds (aluminium, manganèse, cuivre, zinc, cadmium ...) précédemment liés aux particules du sol. Même ceux de ces métaux qui font partie des éléments essentiels pour la croissance des plantes (Tableau 2-1) deviennent rapidement toxiques s'ils sont présents en excès. Dans les sols acides, ces métaux passent sous forme ionique dans la solution du sol, c'est-à-dire sous une forme souvent considérée biodisponible et à des concentrations relativement hautes.

L'aluminium est le troisième élément le plus abondant dans la croûte terrestre : il en compose environ 8 %. C'est naturellement le métal dont la teneur dans les sols est la plus élevée (aluminium total 700-990 méq/100g sol, Al^{3+} échangeable 0,6-3 méq/100g sol, (Guibaud et Ayele, 1997). Sa forte concentration dans le sol et sa forte affinité pour les particules argileuses en font un élément qui intervient pour remplacer les cations basiques sur les sites d'adsorption du sol. Il participe donc aux processus de baisse de fertilité des sols.

Comme tous les métaux, l'aluminium peut devenir toxique lorsque sa biodisponibilité augmente. Il a été montré qu'à des concentrations supérieures à $50\text{--}80\ \mu\text{mol l}^{-1}$ dans la solution du sol, l'aluminium devenait toxique pour les jeunes pousses d'épicéas (études citées par De Wit *et al.* (2001) et par Boudot *et al.* (1995)). De fortes concentrations dans les solutions du sol induisent une nécrose des racines, une inhibition de la croissance des racines secondaires et sont reliées à un jaunissement des feuilles. Cette toxicité est aussi fonction de la présence de calcium et de magnésium dans les sols car l'aluminium est absorbé par les racines par les mêmes mécanismes que ces deux cations basiques. La compétition entre l'aluminium et les cations basiques auprès des sites d'absorption sur les racines fait qu'un excès d'aluminium peut empêcher l'assimilation des éléments nutritifs. Inversement, la toxicité de l'aluminium est diminuée si les concentrations de calcium ou de magnésium augmentent.

Parmi les facteurs qui facilitent la solubilisation de l'aluminium dans le sol, on trouve la baisse du pH, l'augmentation de la force ionique et l'augmentation de la matière organique dissoute (Guibaud et Ayele, 1997). Il faut aussi noter que si l'aluminium est solubilisé dans les sols, il sera transporté par ruissellement vers les eaux de surface où ses formes biodisponibles sont également toxiques (Ormerod *et al.*, 1989). Dans les eaux de surface non polluées, la concentration moyenne d'aluminium est de l'ordre de $0,2\ \text{mg l}^{-1}$ (équivalent à $9\ \mu\text{mol l}^{-1}$). Dans les eaux soumises à l'acidification, on observe des corrélations significatives entre les concentrations en aluminium et celles de nitrate et de soufre (Figure 4-1) (Maitat *et al.*, 2000; Sposito, 1996).

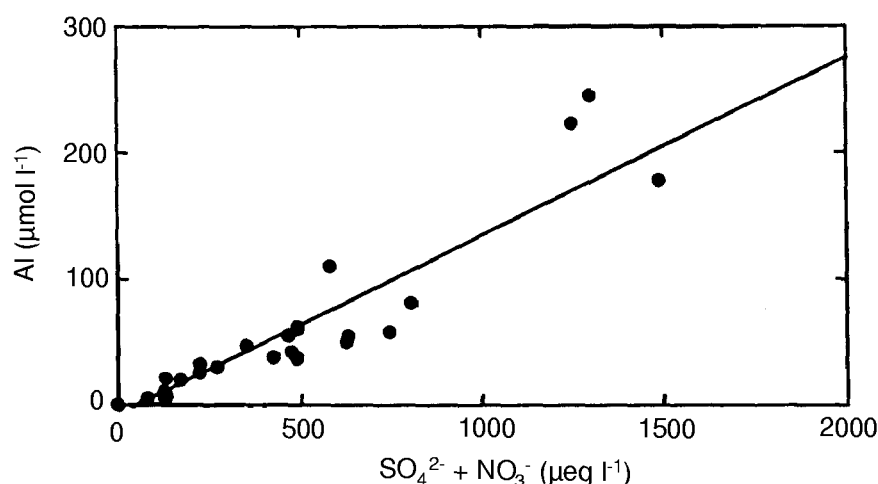


Figure 4-1 : Concentration d'aluminium dans les eaux de surface en fonction de la concentration en ions acidifiants (Sposito, 1996).

Des études sur des zones agricoles suggèrent qu'en dessous d'un pH de l'eau du sol de 5,5 l'aluminium peut causer une baisse de la productivité. En milieu forestier, des valeurs entre 4,4 et 6 ont été proposées (Bouthier et Castillon, 2001; Hendershot et Bélanger, 1999). Toutefois, le paramètre le plus utilisé est le rapport des concentrations en aluminium sur les concentrations en cations basiques (Al / BC) dans les solutions du sol. Les conditions sont estimées défavorables à la croissance des plantes lorsque le rapport des molarités Al / BC est supérieur à 1 (Bonneau et Landmann, 1993; Cronan et Grigal, 1995; Dambrine *et al.*, 1993; Sverdrup et Warfinge, 1993). Party *et al.* (2001b) ont vérifié que la valeur 1,2 pour le rapport Al / BC correspondait à une limite au-dessus de laquelle les conditions de croissance des plantes deviennent défavorables dans les Vosges. Toutefois, l'utilisation de ces ratios est contestée par plusieurs auteurs et par des études réalisées sur

des forêts suédoises, norvégiennes et françaises (Augusto et Ranger, 2001; Binkley et Hogberg, 1997; De Wit *et al.*, 2001; Högberg et Jensen, 1994; Ilvesniemi et Starr, 1994; Løkke *et al.*, 1996). Seules quelques formes de l'aluminium seraient toxiques (essentiellement Al^{3+} et des polymères⁴ Al_{13} , Bouthier et Castillon, 2001) alors que le calcul du ratio Al / BC ne prend en compte que la concentration totale en aluminium et non pas sa spéciation. La mesure de l'aluminium total n'est donc pas un indice utile pour juger de la toxicité de l'aluminium. Pour prendre en compte la spéciation de l'aluminium dans les sols ainsi que les différences de toxicité des différentes espèces chimiques, Boudot *et al.* (1995) suggèrent l'utilisation d'un indice de toxicité de l'aluminium. Cette approche leur permet de conclure que l'aluminium est toxique pour les arbres essentiellement en dehors des périodes de croissance. D'autre part, Göransson et Eldhuset (2001) suggèrent que c'est la disponibilité en cations basiques qui est prépondérante pour la santé des forêts, et non pas la toxicité reconnue de l'aluminium. Enfin, l'utilisation du paramètre BC égal à la somme des cations basiques peut cacher les carences de l'un ou l'autre de ces éléments nutritifs.

Cependant, l'acidification solubilise et rend davantage disponible l'aluminium, mais avec lui tous les autres métaux. Ceux-ci sont présents en quantités bien inférieures mais ont, pour certains, des toxicités supérieures à celle de l'aluminium. Ce sont des paramètres plus difficiles à mesurer, donc mesurés moins souvent. On ne sait en conséquence pas le rôle qu'ils peuvent jouer et encore moins les synergies ou les antagonismes qu'il peut y avoir lorsque plusieurs métaux sont présents. Les méthodes analytiques qui pourraient mesurer la fraction biodisponible de l'aluminium, comme des autres métaux lourds, ou leur spéciation dans le sol restent à développer et à valider. À tort ou à raison, ou simplement pour des questions pratiques, le rapport des concentrations Al / BC dans la solution du sol reste souvent invoqué comme un facteur expliquant le dépérissement des arbres. Ce rapport est utilisé dans les modèles de calculs de charges critiques de l'UN-ECE.

4.3 Impacts de l'acidification sur la faune

4.3.1 Faune aquatique

En France, l'existence de ruisseaux acidifiés, avec atteinte sur les populations de truites, a été démontrée pour la première fois en 1987 par Massabuau *et al.* (1987). Le début du processus a été daté aux alentours de 1850 par l'analyse des sédiments lacustres (Kreiser *et al.*, 1995).

Il y a eu quatre programmes de suivi des populations animales dans les lacs et les cours d'eau de montagne européens. Leurs résultats permettent de mieux comprendre les effets de l'acidification sur les populations de poissons. Il s'agit des programmes de la communauté européenne AL : PE («*Acidification of mountain lakes : palaeolimnology and ecology* », 1991-1993), AL : PE2 («*Remote mountain lakes as indicators of air pollution and climate change* », 1993-1995), MOLAR («*Measuring and modelling the dynamic response of remote mountain lake ecosystems to environmental change : A mountain lake Research programme* », 1996-1999) et EMERGE («*European Mountain lake Ecosystems : Regionalisation, diagnostics and socio-economic Evaluation* », 1999-2003) (Rosseland *et al.*, 2000).

Il a été montré que les poissons (truites et ombles ont surtout été étudiés) peuvent s'adapter dans une certaine mesure à une acidification du milieu lorsqu'elle est chronique (Rosseland

⁴ Al_{13} représente le polycation $\text{Al}_{13}\text{O}_4(\text{OH})_{24}^{7+}$. Sa présence en quantités jugées toxiques dans les sols n'est encore ni prouvée ni infirmée (Furrer *et al.*, 1999 ; Gérard *et al.*, 2001).

et al., 2000). Toutefois des situations changeantes causant des variations de pH, même faibles, peuvent aussi s'avérer dangereuses. En effet, les organismes aquatiques ne peuvent en général pas adapter leurs mécanismes de régulation ionique quand des variations de minéralisation ont lieu rapidement. Or les eaux des ruisseaux de montagne comptent parmi les plus déminéralisées du monde. Leur pH est donc très sensible aux apports d'ions qui suivent les épisodes de pluie ou la fonte des neiges. Ces apports sont d'autant plus susceptibles de se produire que les zones sont soumises à des dépôts acidifiants. Lorsque les événements acidifiants coïncident avec les stades les plus sensibles du cycle de vie des organismes (reproduction, stades juvéniles...), les effets de l'acidification peuvent être catastrophiques pour la survie des populations (Massabuau, 1985; Massabuau *et al.*, 1995; Rosseland *et al.*, 2000).

Selon certaines études françaises, le pH constitue le meilleur indicateur et le premier facteur de toxicité pour les invertébrés, l'aluminium n'intervenant que secondairement : la diminution des populations s'observe dès que le pH est inférieur à 6,5 (Dambrine *et al.*, 1998b; Massabuau *et al.*, 1995).

Quelle que soit la façon de la mesurer, la baisse de biodiversité est une conséquence incontestée de l'acidification des cours d'eau. Comme dans tout écosystème, la disparition de certains organismes peut entraîner une désintégration de la chaîne alimentaire. Les travaux de Dangles et Guérol (2001) ont montré que les « déchiqueteurs » (invertébrés se nourrissant sur les feuilles des arbres tombées dans les ruisseaux) diminuaient considérablement les taux de désintégration de la matière organique allochtone (c'est-à-dire des plantes terrestres) dans les ruisseaux. Dans les cas étudiés, les déchiqueteurs étaient responsables de plus de 65 % de la perte de masse de feuilles placées dans des ruisseaux. L'absence de ces déchiqueteurs dans les cours d'eau implique un cycle de la matière organique ralenti et une source de nourriture diminuée pour d'autres organismes tels que les filtreurs qui se nourrissent des petits morceaux de feuilles (qui ont échappé aux déchiqueteurs) et de pelotes fécales. C'est donc toute la chaîne alimentaire qui est modifiée.

4.3.2 Faune terrestre

Les effets néfastes de l'acidification sur la faune aquatique ont été démontrés à plusieurs reprises. Les études pour les populations d'organismes terrestres sont moins nombreuses et moins concluantes. Il est toutefois probable que dans les zones où l'acidification est importante les oiseaux souffrent d'un manque de calcium, ce qui augmente la fragilité des œufs et affecte les capacités de reproduction des espèces (NEGTA, 2001).

D'autre part, des études menées à proximité des sources (Seniczak *et al.*, 2002) ont montré que la distribution et la diversité des mites dans le sol étaient affectées par les retombées atmosphériques provenant d'usines proches du site d'investigation. Ces auteurs concluent que les changements de population des mites dans le sol diminuent les taux de transformation de la matière organique et nuisent au recyclage des minéraux nécessaire à la croissance des arbres. De tels impacts ne sont significatifs que sur un pourcentage limité du territoire.

5 PROCESSUS D'EUTROPHISATION

5.1 Écosystèmes terrestres

Dans de nombreuses études de fertilisation, des changements dans la nature et la fréquence des espèces présentes ne sont observés qu'après plusieurs années et plusieurs séries d'addition de fertilisant azotés. Par exemple, ce n'est qu'au bout de la 6^{ème} année d'expérimentation que Carroll *et al.* ont observé une baisse significative des espèces non nitrophiles de la prairie qu'ils étudiaient (Carroll *et al.*, 1997 ; Carroll *et al.*, 2000 ; Lee et Caporn, 1999 ; Morecroft *et al.*, 1994). En conséquence, des études comparant un même site à plusieurs années voire décennies d'intervalle sont en général nécessaires pour évaluer l'impact de l'eutrophisation sur les écosystèmes naturels et semi-naturels. Les effets sur les plantes supérieures sont plus lents que sur les espèces plus primitives telles que les mousses ou les lichens dont la composition est souvent rapidement affectée par les dépôts de polluants azotés et soufrés.

Les expériences de fertilisation des sols ont montré que jusqu'à une certaine limite (80 % de l'azote théoriquement absorbable par le sol) l'azote ajouté au sol sous forme de fertilisant restait stocké dans l'écosystème et était recyclé rapidement, étant tour à tour absorbé par les plantes et minéralisé dans le sol (Andersson *et al.*, 2001). Les proportions relatives d'azote stocké dans le sol et stocké dans la biomasse qui le couvre font encore l'objet de débats. Il est toutefois établi qu'une augmentation d'azote dans un écosystème en modifie progressivement la composition floristique. Les auteurs du rapport NEG-TAP 2001 regrettent l'absence d'indicateurs clairs et sensibles pour évaluer l'impact exact des dépôts d'azote sur les sols mais reconnaissent que leur augmentation a contribué à modifier la flore des habitats naturels et semi-naturels dans les Iles Britanniques. En France, une hausse significative du nombre d'espèces nitrophiles a été observée dans les chênaies et les hêtraies (INRA, 2002a). Le programme d'étude DEFORPA a mis en évidence une eutrophisation de la flore herbacée sous couvert forestier dans le nord est de la France. Cette eutrophisation pourrait être induite par le vieillissement des forêts mais tous les indices, tels qu'une eutrophisation plus poussée aux lisières soumises aux vents dominants, convergent et désignent les apports atmosphériques d'azote comme responsables principaux (Dupouey *et al.*, 1993; Picard, 2001; Ranger *et al.*, 2000; Thimonier *et al.*, 1994).

L'eutrophisation des écosystèmes terrestres est dommageable d'un point de vue environnemental car les espèces nitrophiles sont des plantes communes et elles envahissent les sols aux dépens d'espèces moins courantes qui préfèrent les sols moins riches. La biodiversité s'en trouve diminuée (Dupouey *et al.*, 1993; NEG-TAP, 2001).

L'apparition d'espèces caractéristiques des sols acides est limitée aux zones où l'acidification est intense (Fischer, 1999). Elle peut se faire simultanément à l'apparition des espèces nitrophiles comme cela a été le cas sur les 2/3 des sites d'étude de Thimonier *et al.* (1994) en Lorraine. Mais si d'autres facteurs, comme par exemple le phosphore, deviennent limitants (NEG-TAP, 2001), le nitrate déposé en excès peut devenir acidifiant dès lors que tous les sites du sol qui peuvent le complexer et l'immobiliser sont saturés. Les dépôts atmosphériques de soufre contribuent aussi, bien sûr, à l'acidification des milieux.

5.2 Écosystèmes aquatiques

La production primaire dans les eaux douces non polluées est en général limitée par le phosphore et non par l'azote comme c'est le cas dans les sols. Les apports atmosphériques en phosphore ne sont pas susceptibles de causer un déséquilibre majeur des écosystèmes aquatiques. Les exemples d'eutrophisation d'eaux douces les plus connus résultent des apports de phosphore venant de rejets urbains, au sur-stockage en poissons forageurs (qui remettent les nutriments des sédiments en suspension) ou zooplanctivores (le zooplancton limite la croissance des algues et l'augmentation excessive de leur biomasse) et aux apports en phosphates venus de l'agriculture. Cette problématique est en dehors de celle étudiée dans ce rapport.

Toutefois, certaines études suggèrent que les apports continus d'azote par la voie atmosphérique introduisent des modifications dans l'écologie des eaux de surface. Les espèces phytoplanctoniques présentes varient dans les cours d'eau faiblement minéralisés aux USA avec les concentrations en azote (Lafrancois *et al.*, 2003; Saros *et al.*, 2003). Dans les lacs karstiques espagnols, la croissance du phytoplancton et le cycle de l'azote semblent également avoir été modifiés par les apports atmosphériques (Camacho *et al.*, 2003). Les études qui démontrent l'impact eutrophisant de l'azote atmosphérique sur les cours d'eau faiblement minéralisés (en particulier les eaux de montagne) sont encore relativement rares et sans doute parce que les effets sont relativement difficiles à observer. Ils n'en perturbent potentiellement pas moins l'écologie fragile de ce type de milieu.

PARTIE B : APPROCHE QUANTITATIVE ET MODÈLES

6 LA MODÉLISATION DE L'ACIDIFICATION ET DE L'EUTROPHISATION

6.1 Concentrations critiques et charges critiques : définitions

6.1.1 Concentrations critiques

Initialement, la charge critique a été définie comme étant «une estimation quantitative de l'exposition à un ou plusieurs polluants en dessous de laquelle des effets nocifs significatifs sur des éléments sensibles spécifiés de l'environnement n'apparaissent pas dans l'état actuel des connaissances» (Nilsson et Grennfelt, 1988). Cette définition, qui reste la définition officielle des charges critiques, a été discutée à plusieurs reprises depuis 1988 dans la mesure où elle ne prenait pas en compte la notion de «développement durable» et qu'elle ne reflétait pas l'incertitude des prédictions (Løkke *et al.*, 2000). Elle n'a toutefois pas été modifiée dans le cadre de la Convention de Genève.

Les charges critiques ont été conçues comme un instrument de mesure et de modélisation de l'impact des polluants sur l'environnement. Cette définition des charges critiques peut donc être traduite en un certain nombre de termes quantifiables et reliés entre eux par une série de modèles représentés sur la Figure 6-1.

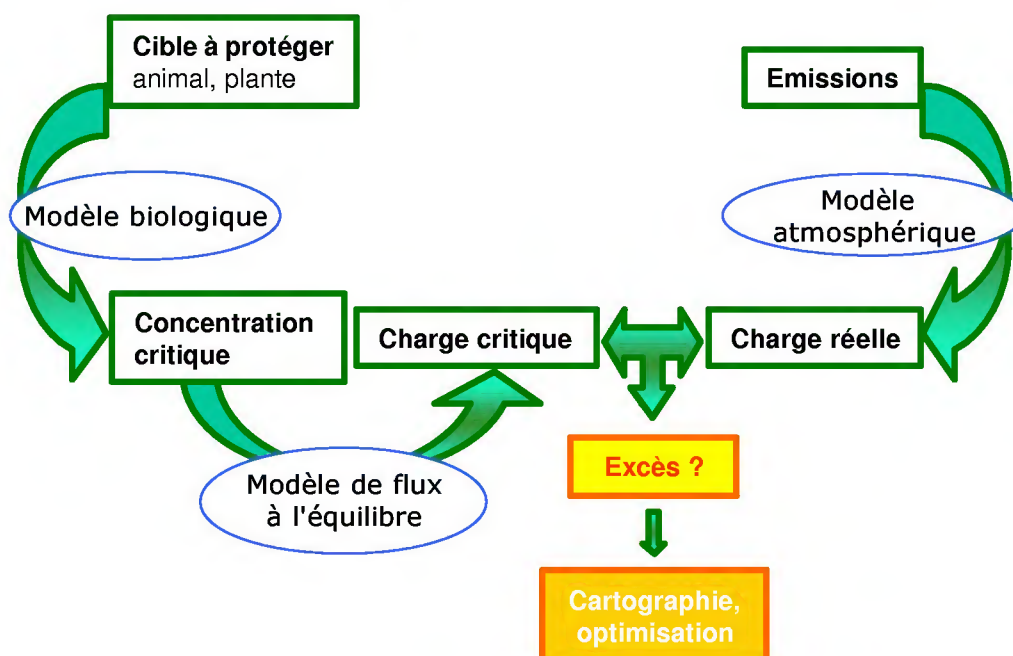


Figure 6-1 : Schéma représentant les relations entre les concepts de concentrations et de charges critiques, les écosystèmes à protéger, les émissions de polluants et leurs dépôts. Les cases jaunes schématisent l'utilisation des charges critiques comme outils d'aide à la décision.

Tout d'abord de façon à évaluer les «effets nocifs significatifs sur les éléments sensibles spécifiés», on utilise des **critères biologiques** ou «indices biologiques» : ceux-ci permettent d'évaluer l'impact du polluant sur le milieu. Ce sont par exemple la nécrose des racines des arbres ou la biodiversité. Selon le workshop sur les charges critiques qui a eu lieu à Copenhague en 1999, un critère biologique est «une caractéristique structurelle ou

fonctionnelle d'un écosystème qui puisse être affectée par des changements dans les dépôts atmosphériques acidifiant ou eutrophisant ». Ces indicateurs dépendent des écosystèmes (forêts, tourbières, zones humides ...) et aussi des buts à atteindre (production ou biodiversité). Ils doivent permettre de détecter des changements dans les dépôts de composés acidifiants et eutrophisants avec un temps de réponse de 10 à 20 ans et pour lesquels des relations doses-réponses solides peuvent être identifiées (Løkke *et al.*, 2000).

Forme mathématique de ces relations doses-réponses, le modèle biologique représenté sur la Figure 6-1 associe aux critères biologiques un ou plusieurs **critères chimiques**. Ces critères sont souvent des concentrations (concentration d'azote dans le sol ou dans les tissus des plantes) ou des paramètres dépendant directement de concentrations (CEC, ANC, pH ...). Le critère chimique est donc fixé : c'est une « valeur critique » ou « seuil » qui ne doit pas être dépassé pour que les « effets nocifs significatifs ... n'apparaissent pas ». La « valeur critique » à ne pas dépasser est celle d'un paramètre tel que le pH, la CEC, l'ANC, la concentration en azote dans le sol, etc.

Ces critères seront présentés dans la Section 7. Il persiste d'importantes difficultés relatives à leur évaluation et à leur utilisation.

6.1.2 Charges critiques et excès

Le dépassement du critère chimique dans un milieu n'est possible que s'il y a, ou s'il y a eu dans le passé, des apports de polluant. Ces apports sont appelés « charges ». La **charge critique** est l'apport qui fait que la concentration de polluant dans le milieu deviendra égale à la concentration critique. Dans les écosystèmes, l'apport de polluant se fait sur une période de temps plus ou moins longue. Le concept de la charge critique est toutefois basé sur l'hypothèse d'un apport constant sur une période infinie, dans un système où tous les processus ont une vitesse constante et où les pertes sont égales aux apports. C'est l'hypothèse de **système en régime permanent et à l'équilibre**. Elle n'est pas vérifiée dans la nature, où les apports ont varié au cours des dernières décennies et où les processus varient aussi (en fonction par exemple de l'âge des forêts) mais cette hypothèse n'empêche pas d'obtenir, en première approximation, certaines informations utiles sur l'acidification et l'eutrophisation des écosystèmes terrestres.

L'hypothèse du système à l'équilibre en régime permanent permet de prévoir que si l'apport est égal à la charge critique pendant une période de temps infinie, la concentration de polluant dans le milieu deviendra égale à la concentration critique. Mais il n'est pas possible de prévoir avec le seul concept de la charge critique *quand* la concentration de polluant dans le milieu deviendra égale à la concentration critique.

La charge critique et la concentration critique sont interdépendantes. Si l'on connaît l'une il est possible de calculer l'autre en fonction des caractéristiques du milieu et de celles du polluant. Ce calcul se fait à l'aide d'un modèle de flux en régime permanent dans un système à l'équilibre (Figure 6-1).

La charge et la concentration critiques sont des valeurs seuils qui sont évaluées pour chaque écosystème. Pour savoir si un écosystème risque d'être détérioré par des dépôts acides ou eutrophisants, il faut comparer les **charges réelles** aux charges critiques. Ces charges réelles sont les dépôts sur le milieu évalués à partir des émissions de polluants et de leur dispersion dans l'atmosphère. Ces calculs se font à l'aide de modèles

atmosphériques locaux ou régionaux (de type EMEP⁵ pour les modèles régionaux) ou à partir de modèles de dépôts nationaux plus fins et donc plus adaptés à la diversité des stations ou des écosystèmes (Croisé *et al.*, 2002).

La différence entre charges critiques et charges réelles détermine s'il y a **excès** pour un écosystème donné. Les excès peuvent être cartographiés pour chaque région et chaque type d'écosystème étudiés. Les cartes sont utilisées pour déterminer les zones à risques et pour optimiser les politiques de réduction d'émission de polluants.

6.1.3 Charges critiques empiriques

Les concepts de charges critiques et de concentrations critiques décrites ci-dessus sont basés sur une approche de calculs et de modèles. Il a été aussi défini des **charges critiques empiriques**, un concept basé sur une approche expérimentale appuyée par des mesures et des observations sur le terrain (Figure 6-2).

La charge critique empirique est l'apport de polluant le plus faible qui induit « des modifications détectables dans la structure et le fonctionnement des écosystèmes en l'état actuel des connaissances » (Grennfelt et Thörnelöf, 1992). Pour évaluer une charge critique empirique, il faut, sur un écosystème choisi (forêt, landes, eaux de surface...), observer ou mesurer la modification d'une cible biologique ou chimique. Ceci nécessite de choisir, comme pour les charges critiques calculées, un critère biologique ou un critère chimique qui puisse être associé sans ambivalence avec la modification de la cible biologique. Simultanément, il faut mesurer les dépôts de polluants. Il s'agit là de mesurer les apports totaux de composés soufrés et azotés sur le sol. En forêt, les mesures de dépôts atmosphériques faites au-dessus de la canopée (c'est-à-dire les dépôts totaux ou les dépôts humides) ne sont pas équivalentes aux mesures faites en dessous (c'est-à-dire dans les pluiolessivats). Il faut en outre combiner les dépôts secs et les dépôts humides. Les techniques d'échantillonnage sur site existent mais ne sont pas aisées à mettre en œuvre ni disponibles dans tous les groupes de recherche. À défaut, on utilise souvent des modèles de dépôts qui permettent de déduire les dépôts totaux sur les sites à partir d'un type de mesure (par exemple, la mesure des concentrations dans les pluiolessivats). Si aucune mesure n'est disponible, il est aussi possible d'utiliser les résultats des modèles atmosphériques régionaux. L'utilisation de modèles permet d'intégrer des variations de dépôts dans le temps mais peut introduire des incertitudes relatives aux variations géographiques des dépôts.

Pour déterminer une charge critique empirique, on peut comparer une série de sites équivalents soumis à des apports croissants dans le cadre d'expériences de fertilisation faites sur des périodes relativement courtes (moins de 10 ans). Alternativement, si un site est soumis à des apports changeants dans le temps, la charge critique empirique peut également être déterminée en comparant des mesures de dépôts faites à plusieurs années d'intervalle (souvent plus de 5 ou 10 ans) et en faisant le lien avec leurs effets sur le terrain.

⁵ Les modèles EMEP simulent le transport atmosphérique de polluants et leur dépôt et sont développés par le centre de Synthèse Météorologique de la convention UN-ECE sur la pollution atmosphérique transfrontière. Ces modèles couvrent toute l'Europe.

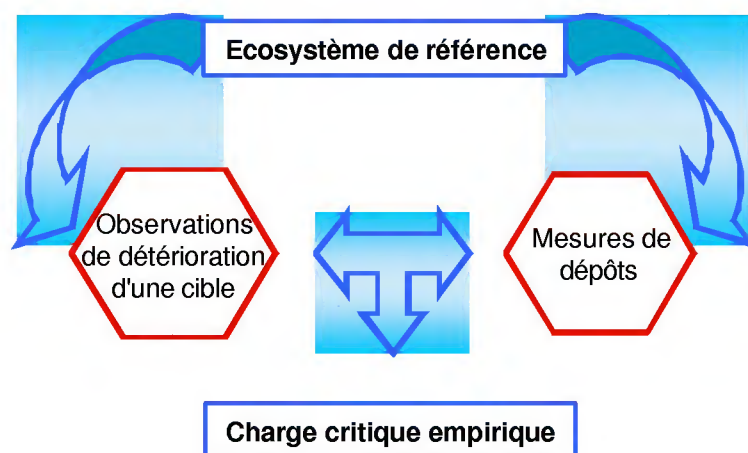


Figure 6-2 : Schéma représentant l'élaboration d'une charge critique empirique pour un écosystème donné à partir d'observations et de mesures sur le terrain.

Les charges critiques empiriques ont donc l'avantage d'être basées sur des réalités de terrain. Leur principal désavantage est inhérent à toute campagne de mesures en sciences de l'environnement : c'est la difficulté d'avoir assez de points de mesures pour obtenir des résultats qui puissent être représentatifs pour des régions étendues ou des types d'écosystèmes et qui soient utilisables à des fins de prédiction. De plus, toute observation est un instantané de la réalité à un instant « t » donné. Il est donc parfois nécessaire d'interpoler ou d'extrapoler dans le temps comme dans l'espace.

Une fois que les charges critiques empiriques sont établies pour un écosystème, on peut, comme avec les charges critiques calculées, les comparer avec les charges réelles mesurées ou estimées à partir des modèles atmosphériques pour tous les sites présentant le même type d'écosystème. On en déduit des cartes d'excès pour un pays ou une région.

6.2 Les fonctions de charges critiques

Les premières charges critiques d'acidification ont été calculées en ne prenant en compte que l'effet acidifiant du soufre. Elles ont servi de base au protocole d'Oslo en 1994. L'approfondissement des connaissances scientifiques a montré l'importance des produits azotés dans les processus d'acidification. Cela a conduit à l'élaboration des « fonctions de charge critique » pour le soufre et l'azote. Ces fonctions sont caractérisées par trois valeurs (Figure 6-3) :

- $CC_{\max}(S)$: la charge critique maximum de soufre : c'est le dépôt maximum de soufre qu'un écosystème peut tolérer. Il est égal à la quantité de bases disponibles moins la quantité d'acides reçus par le système : il est calculé comme étant égal à la somme des apports de cations basiques moins leur assimilation par les plantes, moins les apports d'ion chlorure (anions acidifiants) et moins l'alcalinité perdue par lessivage (qui représente une perte de molécules basiques). Cette charge critique est celle qui a été utilisée pour le protocole d'Oslo.
- $CC_{\min}(N)$: la charge critique minimum d'azote acidifiant : c'est le dépôt d'azote qui pourrait être compensé par les processus qui naturellement retirent de l'azote du milieu. $CC_{\min}(N)$ est donc égale à la quantité d'azote immobilisé sur les particules du sol, assimilé par les plantes et dénitrifié (perdu dans l'atmosphère sous forme de N_2O ou N_2).

- $CC_{\max}(N)$: la charge critique maximum d'azote acidifiant : c'est le dépôt maximum d'azote acidifiant qui peut être toléré par un écosystème en l'absence de dépôt de soufre. La valeur de $CC_{\max}(N)$ doit donc prendre en compte tous les processus qui peuvent contrebalancer le pouvoir acidifiant de l'azote : les bases disponibles dans le sol (avec lesquelles $CC_{\max}(S)$ a été déterminé) et les processus par lesquels le système consomme de l'azote (ceux qui déterminent $CC_{\min}(N)$). Comme pour $CC_{\max}(S)$, les apports d'autres anions acides (CI) et l'alcalinité perdue par lessivage sont soustraits. $CC_{\max}(N)$ est donc égal à la somme de $CC_{\max}(S)$ et de $CC_{\min}(N)$.

La Figure 6-3 schématise les relations entre ces valeurs. Les couples de valeurs de dépôts de soufre et d'azote qui définissent des points situés en dessous de la courbe (zone hachurée) correspondent à des dépôts non acidifiants. Tous les couples représentés par des points au-dessus de la courbe correspondent à des dépôts acidifiants. La courbe est la représentation graphique de la fonction de charge critique et représente une infinité de couples {dépôts d'azote ; de dépôts de soufre}.

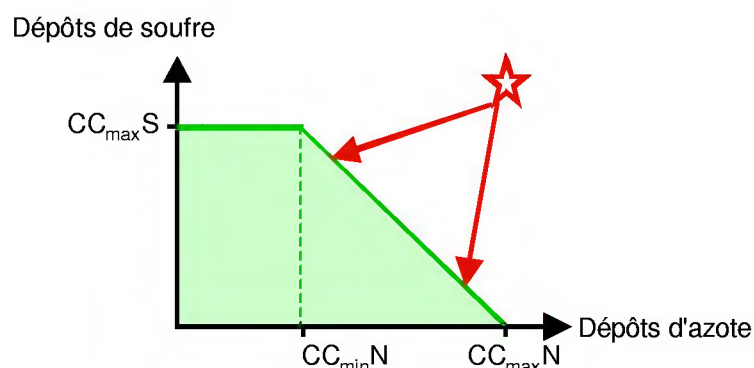


Figure 6-3 : Fonction de charge critique pour le soufre et l'azote acidifiant. L'étoile représente une situation où les charges critiques sont dépassées, les flèches indiquent deux choix possibles de réduction des émissions.

A une situation d'excès donnée (représentée par l'étoile sur la Figure 6-3), correspond donc une infinité de scénarios de réduction des émissions d'azote et de soufre (dont deux sont représentés par les flèches). Chaque solution peut être choisie selon qu'il est plus avantageux ou plus aisé de réduire les émissions de soufre ou d'azote.

Les processus qui causent une diminution de l'azote dans le système peuvent être fonction de la quantité d'azote que reçoit le système ou de paramètres climatiques (température, humidité, pH ...). Lorsque de telles relations sont prises en compte, l'allure de la fonction est modifiée. Si par exemple, il est possible de calculer la dénitrification en fonction des dépôts, $CC_{\max}(N)$ devient supérieur à $CC_{\max}(S) + CC_{\min}(N)$. Si les effets de la température, de l'humidité du sol ou du pH sont pris en compte, la droite décroissante de la Figure 6-3 devient une courbe (Posch *et al.*, 1995). En pratique, ces relations sont trop mal connues pour être couramment utilisées.

La charge critique eutrophisante peut également être représentée sur un tel schéma. Elle peut être supérieure (Figure 6-4 a) ou inférieure (Figure 6-4 b) à la charge critique azotée maximum. Lorsqu'elle y est inférieure, la charge critique eutrophisante réduit la zone dans laquelle il n'y a pas de risque de dégradation de l'écosystème. On verra plus tard qu'une telle situation est courante en France.

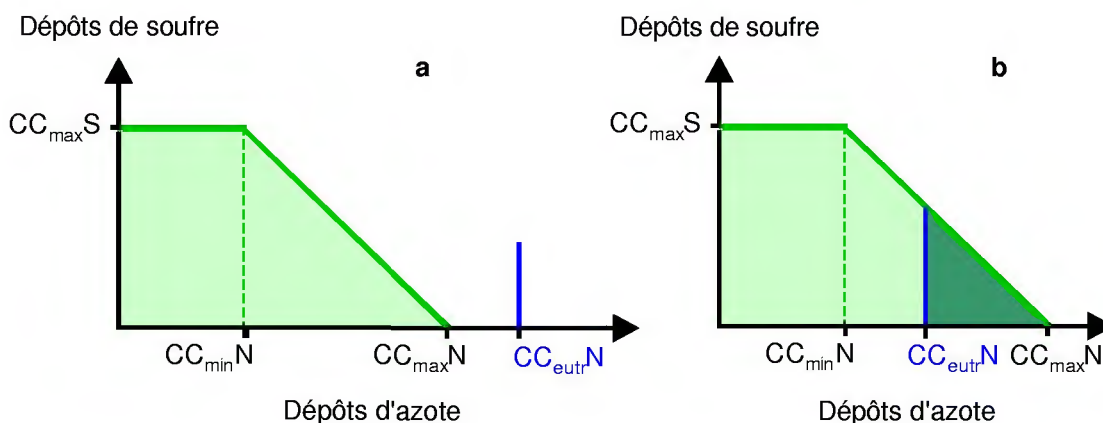


Figure 6-4 : Fonction de charge critique acidifiante en relation avec la charge critique eutrophisante. a : L'eutrophisation ne pose pas de contrainte supplémentaire. b : L'eutrophisation cause une contrainte supplémentaire et le domaine dans lequel il n'y a pas dépassement de la charge critique est réduit à la zone en vert clair.

6.3 Quatre cas de figure

Le modèle de flux à l'équilibre (Figure 6-1) doit pouvoir résoudre quatre cas de figure qui sont déterminés d'une part par la concentration de substances acidifiantes dans le milieu et d'autre part par les dépôts auxquels il est soumis. Ces quatre cas permettent de présumer de l'évolution future du milieu naturel : est-elle favorable ou faut-il envisager des réductions d'émissions ?

Cette approche est simplifiée dans la mesure où elle prend en compte l'effet d'un polluant unique. Dans le cas des substances acidifiantes, cela pourrait être l'effet du soufre seul, comme il a été fait dans le protocole d'Helsinki en 1985 ou l'effet de l'azote eutrophisant. On peut aussi envisager l'azote et le soufre comme un seul polluant si on les considère comme des agents acidifiants dont on peut sommer les concentrations. L'unité utilisée est alors l'équivalent d'acide (éq) et non plus les kilogrammes ou les moles.

Sur la Figure 6-5, l'étoile représente la concentration actuelle de polluants dans le milieu. La ligne rouge horizontale marquée CLt représente la concentration critique à ne pas dépasser. C'est un paramètre constant dans le temps pour un écosystème donné. Les courbes représentent l'évolution des concentrations dans le milieu selon le scénario envisagé :

- Ligne fine courbe verte (notée charge actuelle) : les dépôts actuels restent inchangés ;
- Ligne en pointillés bleus (notée CC) : les dépôts sont fixés au taux maximum admissible, c'est-à-dire égal à la charge critique.
- Ligne fine horizontale (notée statu quo) : Elle représente le statu quo, c'est-à-dire le cas où il est décidé que la quantité de polluant dans le système doit rester constante et surtout ne doit pas augmenter.

Le cas le plus favorable est celui où la concentration critique n'est pas dépassée et les dépôts actuels ne laissent pas prévoir une augmentation dans le futur. Il est représenté par le schéma A de la Figure 6-5. La concentration actuelle (l'étoile) est en dessous de la concentration critique (ligne horizontale épaisse et rouge). La charge actuelle est telle qu'à terme la concentration dans le milieu (ligne fine verte) augmentera mais pas suffisamment pour atteindre la concentration limite (ligne épaisse rouge). On est donc dans un cas de

figure favorable où il n'est pas nécessaire de limiter les émissions, sauf si par choix politique, on estime que le statu quo est souhaitable. Dans ce dernier cas, les concentrations devront rester constantes comme l'indique la ligne fine horizontale.

Il existe trois autres cas de figure. Le cas B représente une situation plutôt favorable dans laquelle la concentration critique est dépassée mais des mesures antérieures ont fait baisser les dépôts de façon à laisser prévoir une restauration chimique. Si toutefois un choix politique requiert que cette restauration ait lieu lors d'une année cible prédéfinie (Aci), il faudra diminuer les dépôts pour les ramener aux charges cibles (Cci). Cela conduira à une baisse plus rapide de la concentration d'acidifiants dans le milieu, représentée par la ligne Cci.

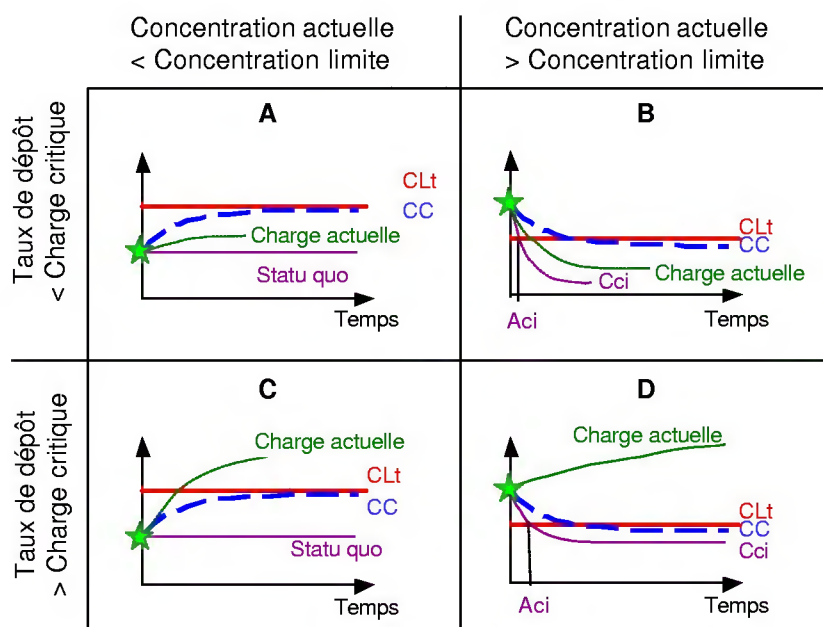


Figure 6-5: Représentation schématique des différents cas possibles selon les concentrations dans le milieu et les scénarios de dépôts envisagés.

CLt : concentration critique dans le milieu.

Évolution de la concentration dans le milieu quand :

- Ligne « CC » : les dépôts sont égaux à la charge critique.
- Ligne « Charge actuelle » : les dépôts continuent tels qu'ils sont actuellement.
- Ligne « Cci » : les dépôts sont fixés pour que la concentration atteigne la concentration limite à l'année cible Aci.
- Ligne « Statu quo » : les dépôts sont réduits ou maintenus de façon à ce que la concentration dans le milieu reste inchangée.

Dans le cas C, la concentration critique n'est actuellement pas dépassée mais le sera dans le futur car la charge actuelle est supérieure à la charge critique. Baisser les dépôts jusqu'au niveau de la charge critique permettrait d'éviter une dégradation sensible du milieu mais cela conduirait toutefois à une augmentation de la concentration des substances acidifiantes le long de la ligne CC. Une telle augmentation reviendrait à « remplir » le système : toute augmentation ultérieure conduirait alors à un dépassement de la concentration critique et à une dégradation du système. Pour éviter cela, il est possible de choisir d'imposer une contrainte plus forte que la charge critique de façon à ce que la

concentration dans le milieu n'augmente pas (ligne « statu quo »). La contrainte serait alors plus forte que le seul respect de la charge critique CC.

La situation la plus défavorable est le cas D : la concentration critique est dépassée et les dépôts continuent d'augmenter. Il est urgent de ramener les dépôts en dessous de la charge critique CC. Si de plus on souhaite une restauration chimique pour l'année Aci, les dépôts doivent être au maximum représentés par la ligne Cci. Le statu quo n'est pas souhaitable et n'est pas représenté sur le schéma.

6.4 Utilisation du concept de charge critique

L'établissement de ces politiques d'émission et en amont le calcul des charges critiques ont été rendus possibles grâce aux efforts de nombreux groupes de travail. Ceux-ci sont organisés sous l'égide de la Commission Économique pour l'Europe des Nations Unies (CEE-NU) au sein de la convention de Genève sur la pollution atmosphérique transfrontière (Acronyme anglais : LRTAP : « *Long range transboundary air pollution* », Figure 6-6). Les données de terrain, acquises dans chaque pays par des chercheurs, sont rassemblées par les « Programmes internationaux concertés » (PIC) eaux, forêts, végétation et matériaux et transmises au PIC modélisation et cartographie. Cette organisation est complétée par une « *Task Force* » santé humaine établie en collaboration avec l'Organisation Mondiale de la Santé.

Le PIC modélisation et cartographie est responsable de la mise au point des cartes de charges critiques pour la zone couverte par la Convention. Pour cela, il est soutenu par son centre de coordination, le CCE (« *Coordination center for effects* »). Leurs actions comprennent : la mise au point des méthodes de calcul des charges et des niveaux critiques ; l'harmonisation de ces calculs entre différents pays ; la centralisation, la coordination et la synthèse des données des différents PICs pour tous les pays. Lorsque les pays ne sont pas en mesure de faire les calculs nécessaires, le CCE produit des valeurs de charges critiques d'acidification des sols forestiers « par défaut » (c'est le « *European background database* » du CCE). Le CCE peut alors réaliser les cartes de charges critiques. En parallèle, des cartes de dépôts sont réalisées à partir des modèles de dispersion atmosphérique élaborés sous l'égide d'EMEP. La différence entre charges critiques et dépôts donne les excès de charges critiques, qui sont également cartographiés.

Les cartes d'excès permettent de visualiser rapidement l'ampleur des dégâts possibles et elles sont utilisées pour illustrer les évolutions possibles en fonction de scénarios d'émissions de polluants. Ces scénarios peuvent être définis par diverses instances. Dans le cadre de la Convention de Genève, ils sont fournis par la modélisation intégrée, qui à partir des connaissances sur le devenir des polluants, sur leurs émissions et sur leurs impacts sur la santé, détermine les stratégies de réduction d'émission des polluants en fonction d'objectifs environnementaux et économiques (voir section 6.6).

Le concept de charge critique est largement adopté en Europe et en Asie mais son utilisation aux États Unis et au Canada est très récente (Hodson et Langan, 1999; Nydick *et al.*, 2003; Tao *et al.*, 2002).

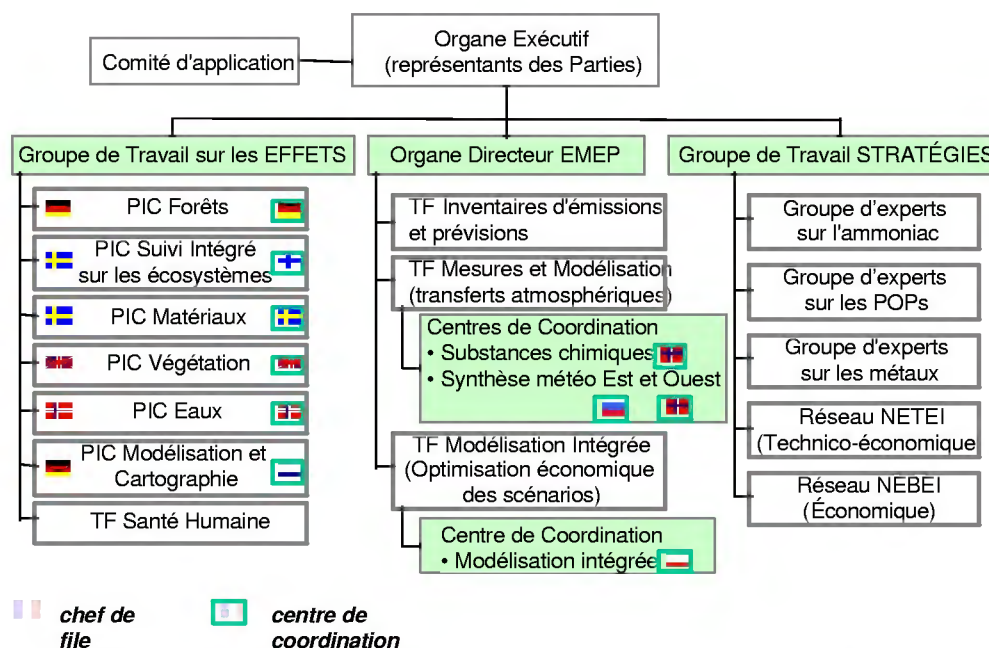


Figure 6-6 : Organigramme de l'organisation de la Convention CEE-NU sur la pollution atmosphérique transfrontière. Pour davantage d'informations sur cette convention voir : http://www.unece.org/env/lrtap/conv/lrtap_o.htm (PIC : programme international de coordination ; TF : Task Force).

6.5 Évolution des modèles de charges critiques et implication pour les cartes d'excès

Le calcul des charges critiques et de leurs excès nécessite des connaissances qui, grâce au travail de nombreux chercheurs, augmentent d'année en année. Il en résulte une évolution des modèles utilisés et de leurs résultats. Cette évolution est illustrée par la série de 5 cartes d'excès de charges critiques pour les écosystèmes forestiers présentée ci-dessous. Ces cartes ne représentent pas une évolution attendue ou observée des excès mais l'évolution des résultats des calculs qui sont réalisés par le CCE avec l'aide d'EMEP.

Toutes ces cartes sont obtenues en prenant en compte la météorologie et les dépôts de l'année 2000. Cela permet de pouvoir comparer les résultats des calculs en s'affranchissant des variations climatiques.

La Figure 6-7a est obtenue avec les modèles qui ont été utilisés pour élaborer le protocole de Göteborg.

La Figure 6-7b est obtenue en utilisant les modèles de calcul de charges critiques après la mise à jour qui a eu lieu en 2000. Cette mise à jour a été réalisée pour prendre en compte les avancées des connaissances de terrain acquises au cours des années précédentes. Il y a globalement peu de différences entre les cartes a et b.

La Figure 6-7c est obtenue avec les nouvelles charges critiques mais en remplaçant la grille de 150 km x 150 km par une grille plus fine de 50 km x 50 km. Là encore, les différences ne sont pas importantes.

La Figure 6-7d est obtenue en utilisant les résultats de dépôts calculés par le modèle eulérien unifié d'EMEP au lieu du modèle précédemment utilisé qui était un modèle lagrangien. Globalement, les différences entre cette carte et la précédente sont relativement faibles.

La dernière carte, Figure 6-7e, est obtenue en calculant les dépôts en prenant en compte les différences entre écosystèmes. Or, les dépôts de polluants sur une surface dépendent de la turbulence de l'air à proximité de cette surface. Plus la turbulence est importante, plus les polluants sont susceptibles de toucher la surface et de s'y déposer. D'autre part, lorsqu'une masse d'air passe au-dessus d'une surface, elle est d'autant plus turbulente que la surface est rugueuse. Une forêt est une surface beaucoup plus rugueuse qu'une prairie à cause de la hauteur des arbres et de la présence des branches. Elle induit donc une turbulence plus importante que les autres écosystèmes et reçoit en retour des dépôts plus importants. En quelque sorte, la forêt « filtre » la masse d'air qui la traverse alors que cette dernière passe sans modification majeure par-dessus une prairie.

C'est l'effet de ce « filtre » que l'on observe sur la carte e de la Figure 6-7 : les dépôts calculés spécifiquement pour les forêts sont plus importants que les dépôts moyens utilisés pour les cartes a à d. En conséquence, les excès de charges critiques présentés sur la Figure 6-7e sont plus nombreux et plus élevés sur une large zone en Europe que sur la Figure 6-7d.

La Figure 6-8 représente la même évolution du calcul des charges critiques mais cette fois pour l'eutrophisation des forêts. Dans ce cas, les excès de charges critiques augmentent à chaque fois que les méthodes de calculs s'affinent. Le résultat est toutefois similaire au cas des charges critiques pour l'acidification : les hypothèses faites lors de l'élaboration du protocole de Göteborg pour le calcul des charges critiques et de leurs excès ont conduit à une sous-estimation de ces excès.

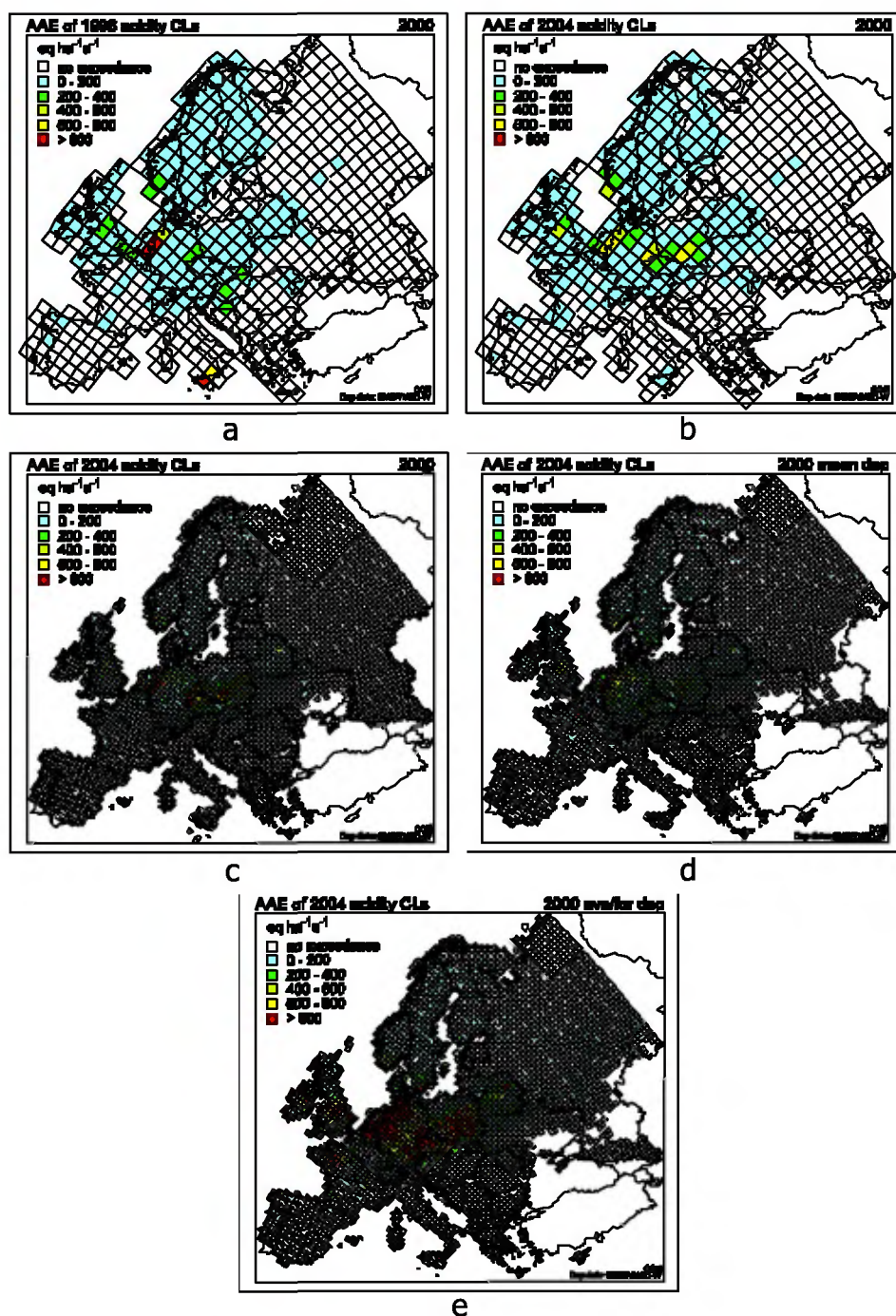


Figure 6-7 : Évolution des cartes d'excès de charges critiques des écosystèmes forestiers pour l'acidification en fonction des modèles utilisés. a : modèle utilisé pour l'élaboration du protocole de Göteborg. Pour les cartes suivantes les modifications des modèles correspondent à: b : Mise à jour des charges critiques en 2000 ; c : Application de la grille de 50 km x 50 km au lieu de la grille 150 km x 150 km ; d : Utilisation du modèle eulérien unifié au lieu du modèle lagrangien ; e : Calcul des dépôts tenant compte de la nature de la végétation. Toutes ces cartes sont calculées en utilisant la météorologie de l'année 2000 (source : Max Posch, CCE).

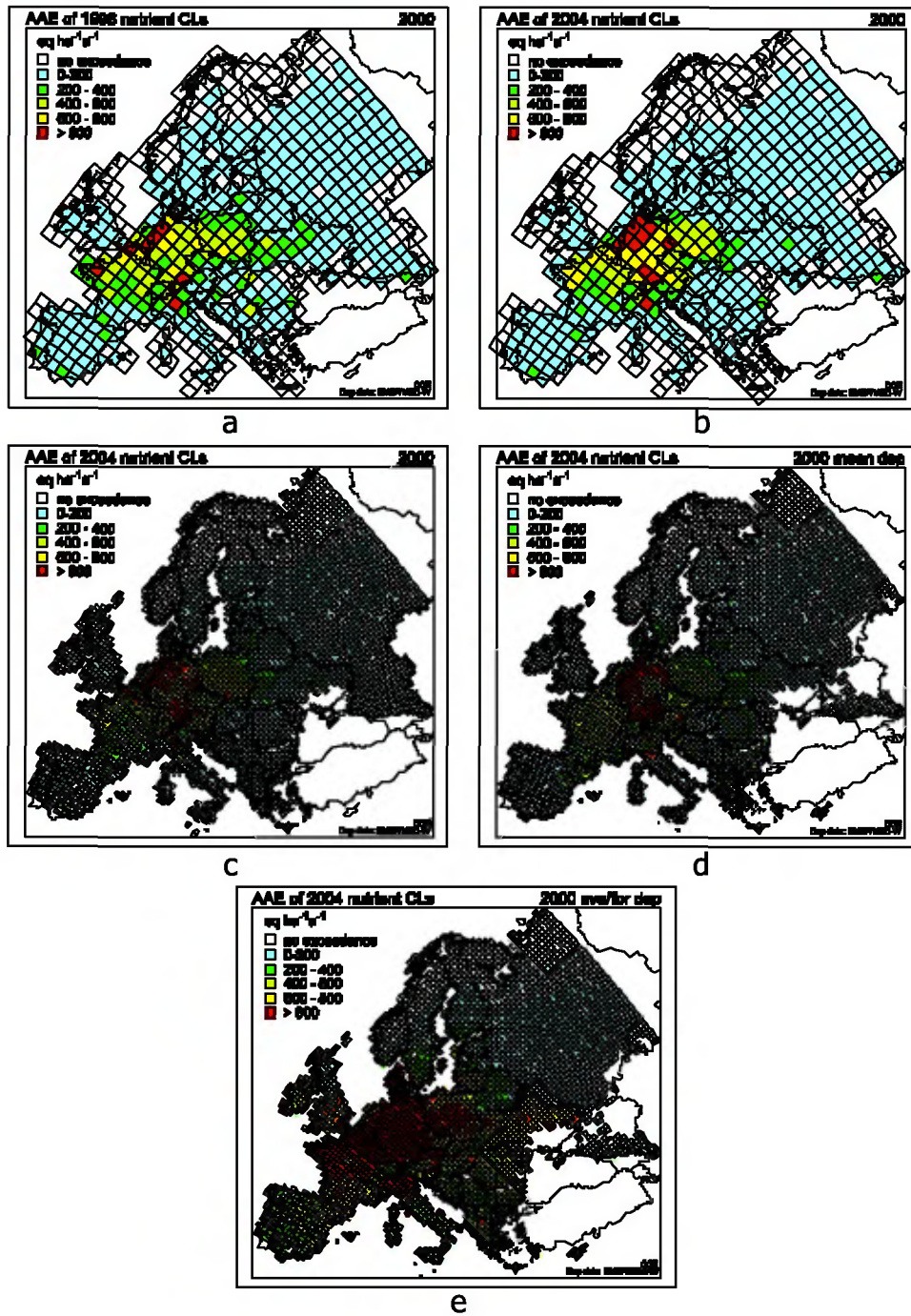


Figure 6-8 : Évolution des cartes d'excès de charges critiques pour l'eutrophisation des écosystèmes forestiers en fonction des modèles utilisés. Figures a à e : Voir légende de la Figure 6-7.

6.6 Les charges critiques dans la modélisation intégrée

Le concept des charges critiques est utilisé en modélisation intégrée pour définir des objectifs environnementaux. Réalisée par l'IIASA⁶ dans le cadre de la Convention de Genève et de CAFE, cette modélisation intégrée se fait à l'aide du modèle RAINS (« *Regional Air pollution Information and Simulation* »). Une brève description de l'utilisation des charges critiques dans RAINS est donnée ici. Le lecteur intéressé par davantage de détails sur RAINS peut consulter un précédent rapport (Soleille *et al.*, 2003).

Le but de la modélisation intégrée avec RAINS est d'aider à définir des politiques de réduction d'émissions de polluants atmosphériques (soufrés, azotés, particuliers et composés organiques volatils non méthaniques). Ce modèle peut fonctionner selon deux modes :

- En mode scénario, il part de scénarios d'activité (énergie, agriculture, transports...), passés ou prospectifs et en déduit les émissions et leurs effets. Il peut également évaluer les coûts et les effets de stratégies de réduction des émissions.
- En mode optimisation, il part de jeux de contraintes environnementales⁷ et en déduit des stratégies de contrôle des émissions, c'est à dire des niveaux d'émission par pays qui permettent de satisfaire aux jeux de contraintes environnementales. Il fournit, pour chaque stratégie 'optimale', son coût et ses effets sur l'environnement.

En mode optimisation, les charges critiques sont utilisées comme des objectifs environnementaux à long terme : elles permettent de définir les dépôts maximums à ne pas dépasser sur le long terme. En mode scénario et en mode optimisation, les cartes d'excès des charges critiques sont utilisées pour présenter les résultats.

Actuellement, il s'avère économiquement impossible de faire baisser les dépôts en dessous des charges critiques sur la totalité de la zone modélisée (de l'Atlantique à l'Oural). Une question est alors posée aux gestionnaires et aux décideurs : quel objectif en terme de réduction des effets de l'acidification et de l'eutrophisation peut être raisonnablement atteint dans les délais considérés ? Lorsqu'on utilise RAINS en mode optimisation, cet objectif est exprimé par le « *gap closure* » : c'est la suppression (« *closure* ») de l'écart (« *gap* ») entre une situation de référence et une valeur cible. Comme il n'est souvent pas possible de supprimer entièrement cet écart, on propose de le réduire d'un certain pourcentage N entre l'année de référence et une année cible (Figure 6-9).

Le choix de la valeur de N, de l'année de référence et de l'année cible relève d'un arbitrage politique entre la protection des écosystèmes et le coût de la réduction des émissions des polluants. L'année de référence est 1990 pour le protocole de Göteborg et la directive européenne NEC, 2000 pour CAFE. Les années cibles sont actuellement 2010 ou 2020. La situation de référence peut être un dépôt, une surface d'écosystèmes « protégés » ou un excès de dépôts cumulés.

⁶ IIASA : International Institute for Applied Systems Analysis : Organisation non gouvernementale de recherche située en Autriche.

⁷ Ces jeux de contraintes environnementales sont appelés par l'IIASA « *scenarios* ». Cette terminologie n'est pas employée ici pour éviter les confusions avec les scénarios d'activités.

Ainsi pour l'acidification et l'eutrophisation, trois types de « *gap closure* » ont été définis :

- le « *gap closure* » de dépôt : La situation de référence est représentée par les dépôts sur chaque cellule en 1990. La valeur cible est la charge critique. L'objectif est de réduire l'écart entre les dépôts et la charge critique d'au moins N % entre 1990 et 2010. Ce concept a été utilisé pour le second Protocole soufre de 1994.
- le « *gap closure* » de surface d'écosystèmes «non protégés». Un « *gap closure* » de surface d'écosystèmes «non protégés» de N % signifie que, pour chaque cellule et pour l'année cible, on cherche à réduire de N % par rapport à la situation de 1990 la surface des écosystèmes qui reçoivent des dépôts supérieurs à leur charge critique. Ce concept est utilisé pour la définition de la stratégie acidification de la Commission Européenne.
- le « *gap closure* » d'excès de dépôts cumulés. L'excès de dépôts cumulés est la somme des excès de dépôts au delà des charges critiques pondérés par la surface des écosystèmes où ces excès ont lieu. Un « *gap closure* » d'excès de dépôts cumulés de N % signifie que, pour chaque cellule et pour l'année cible, on cherche à réduire de N % par rapport à la situation de 1990 l'excès de dépôts cumulés. Ce concept est utilisé couramment depuis plusieurs années et notamment pour la préparation du Protocole de Göteborg et de la directive NEC.

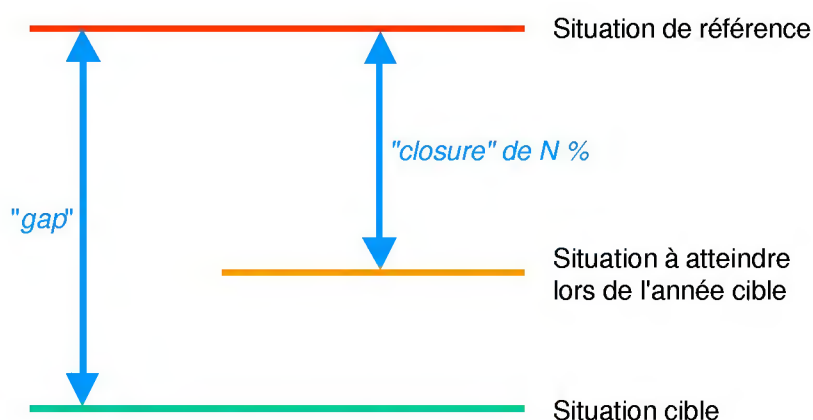


Figure 6-9 : Schéma illustrant le principe du « *gap closure* ».

Ces trois types de « *gap closure* » peuvent être utilisés séparément ou ensemble. Pour la directive NEC, les jeux de contraintes environnementales utilisés par l'IIASA utilisent communément les deux derniers types de « *gap closure* ».

Lors de l'optimisation, le principe des « *gap closure* » est appliqué sur chaque cellule : c'est sur chaque cellule que le pourcentage de réduction des dépôts, de la superficie «non protégée» ou d'excès de dépôt cumulé est appliqué.

Une application stricte de l'optimisation par cellule conduit à des solutions qui sont déterminées par les contraintes dans un nombre très réduit de cellules. Cela pourrait conduire à des exigences de réduction d'émission drastiques pour que de petites surfaces ne reçoivent pas de dépôts supérieurs à leur charge critique. Plusieurs moyens mathématiques ont été mis en œuvre pour atténuer ceci. Le principal est le principe de compensation : un objectif peut ne pas être atteint dans une cellule à condition que cela soit compensé, en faisant «mieux», dans une autre cellule du même pays.

La combinaison de la charge critique, du « *gap closure* » et de la compensation définit la contrainte environnementale. Dans la configuration actuelle du modèle RAINS, il n'est possible de calculer les objectifs environnementaux qu'à partir de certains paramètres évalués par les PICs du Groupe de Travail sur les Effets. Ce sont :

- Les charges critiques d'acidification pour le soufre et l'azote pour les écosystèmes forestiers et les eaux de surface ;
- Les charges critiques d'eutrophisation pour les écosystèmes forestiers ;
- Les concentrations maximales d'ozone tolérables pour la santé humaine.

En plus des considérations environnementales évoquées ci-dessus, les contraintes d'optimisation utilisées par l'IIASA prennent en compte des contraintes d'équité, des objectifs de minimisation des coûts et des problèmes de solvabilité mathématique pour calculer les stratégies de réduction d'émission (Soleille *et al.*, 2003).

Les résultats ainsi obtenus servent de bases aux négociations de protocoles internationaux (Oslo en 1994, Göteborg en 1999 pour les polluants acidifiants) qui ont conduit à des politiques efficaces de réduction d'émissions.

6.7 Importantes remarques sur l'utilisation des charges critiques

Les charges critiques sont le résultat de calculs et d'hypothèses qui ne sont pas toujours vérifiées sur le terrain. Il ne faut donc pas oublier qu'il existe une incertitude sur tous les résultats présentés. Lorsqu'une charge critique est dépassée sur un site, cela signifie qu'il y a ou aura probablement des dégâts sur l'écosystème, mais seulement probablement. Tous les résultats des modèles de charges critiques constituent les meilleures prédictions qui puissent être proposées à l'heure actuelle, « dans l'état actuel de nos connaissances », mais ils ne sont en aucun cas des certitudes.

La charge critique est un indicateur de la **probabilité** d'effet mais ni la charge critique ni l'ampleur de son dépassement ne permettent de déterminer l'**ampleur** de cet effet. Il n'y a pas de relation de proportionnalité directe entre l'ampleur de l'effet et l'ampleur du dépassement de la charge critique. Il semble important de souligner ici qu'actuellement le modèle RAINS, utilisé pour analyser et comparer des scénarios d'émission, réalise tous ses calculs avec les dépassements de charges critiques, et donc en supposant qu'il existe une relation de proportionnalité entre excès et effet. Il s'agit là d'un compromis car mener des calculs en chiffrant directement l'ampleur des effets n'est pas possible avec le concept de charges critiques.

La notion de « protection » d'un écosystème par une charge critique n'a pas de sens en elle-même. Une charge critique élevée implique que l'écosystème a des capacités biologiques et géochimiques pour résister à des apports de polluants. Elle n'implique pas qu'il est protégé. Même si le site a un fort potentiel pour lutter contre l'acidification, les dépôts anthropogéniques peuvent être assez importants pour l'endommager. Par contre, si on compare la charge critique du site avec les dépôts qu'il reçoit, on peut estimer s'il est « protégé » contre les effets nocifs significatifs des polluants : il le sera probablement si le dépôt est inférieur à la charge critique sur le long terme. La notion de « protection » est donc nécessairement relative au dépôt. Elle peut en conséquence évoluer au cours du temps en fonction des dépôts et de la gestion du site.

6.8 Évolution du concept de charge critique vers les modèles dynamiques

Les méthodes basées sur les calculs à l'équilibre ont permis d'établir les premiers protocoles et de proposer des réductions des émissions de soufre. Toutefois, il est important de comprendre que les écosystèmes ne réagissent pas immédiatement aux baisses des dépôts des polluants. De la même façon que le pouvoir tampon des sols leur permet de résister aux premiers apports de polluants sans que des effets néfastes soient observés, les écosystèmes endommagés ne sont pas restaurés dès que les apports diminuent ou disparaissent : il y a un temps de latence qui peut être plus ou moins long et que l'on estime en général de l'ordre de plusieurs décennies pour les écosystèmes terrestres.

Ces effets de retard entre l'augmentation ou la baisse des dépôts sont schématisés sur la Figure 6-10. Il y a deux étapes dans l'impact des polluants sur les écosystèmes. La première modification due à la pollution est la réponse chimique du milieu : c'est par exemple la baisse du pH des eaux ou l'augmentation d'azote dans la couche superficielle du sol. Dans la logique décrite plus haut du calcul des charges critiques, cet impact correspond à une modification du critère chimique. La modification du critère chimique n'est observée qu'une fois que le système a consommé les réserves (le pouvoir tampon) qui lui permettent d'empêcher ou de limiter les variations des paramètres tels que le pH ou les concentrations en azote. Il existe donc un certain délai entre le moment où les charges critiques sont dépassées (t_1 sur la Figure 6-10) et le moment où la concentration critique est dépassée (t_2).

Le moment où on peut percevoir que la structure biologique est endommagée est en général ultérieur à celui où la concentration critique est dépassée. Le laps de temps entre t_2 et t_3 dépend de la résistance et de la robustesse de l'écosystème. La biodiversité d'un système est en général considérée comme un des facteurs qui permettent à un système de résister à un épisode de stress, qu'il soit anthropique ou climatique.

Si les activités humaines sont modifiées, comme elles l'ont été à la suite de l'application des protocoles de la Convention de Genève, les émissions diminuent jusqu'à ce que les dépôts deviennent inférieurs à la charge critique. Ceci est illustré dans la deuxième moitié des graphes de la Figure 6-10. Une fois que cet objectif est atteint, une certaine période (t_5-t_4) s'écoule pendant laquelle les concentrations en polluants diminuent progressivement (parce qu'ils sont lessivés, dégradés, absorbés ou qu'ils s'évaporent). Les valeurs qui caractérisent le critère chimique retournent alors progressivement vers des valeurs considérées comme normales, c'est-à-dire en dessous de la concentration critique. On peut alors parler de **restauration chimique** du milieu.

Ce n'est qu'une fois que les conditions chimiques du milieu sont « normales » que les organismes biologiques (plantes, bactéries, animaux) peuvent se rétablir dans le milieu. Ce rétablissement peut être lent car il nécessite que le milieu soit à nouveau colonisé par les organismes vivants. Cette recolonisation sera lente, voire impossible, si les organismes ont été détruits dans toute une région, si leur système de reproduction est lent ou si leur système de locomotion ne leur permet pas de passer d'un écosystème à un autre. Il suffit d'imaginer par exemple le cas d'espèces qui ne pourraient se développer que dans des ruisseaux ou des lacs de hautes montagnes et qui ne supporteraient pas les conditions naturelles (température, turbidité, courant ...) des rivières de vallée : comment pourraient-elles recoloniser les lacs de bassins versants voisins détruits ? Il y a donc potentiellement un long délai entre la restauration chimique (à t_5 sur la Figure 6-10) et la **restauration biologique**, quand, à t_6 , les organismes sont revenus et réinstallés dans l'écosystème. Il faut noter que l'on peut donner plusieurs définitions de la restauration biologique d'un écosystème (voir la discussion de la Section 11). Dans le cadre des travaux de la Pollution

atmosphérique pour la Convention de Genève, un groupe de travail s'est penché sur cette question en septembre 2002 et a publié ses conclusions dans un numéro spécial du journal « *Hydrology and Earth System Sciences* » (Vol. 7, n° 4) en 2003.

Le succès de mesures politiques est en partie lié à la perception de leurs effets par les industriels et par le public. Or les efforts pour réduire les émissions de polluants ne seront pas suivis d'un effet immédiat sur les écosystèmes à cause des délais dont il vient d'être question. La longueur de ces délais ne peut pas être évaluée avec l'approche des charges critiques qui est basée sur l'hypothèse de système à l'équilibre et donc d'un système qui n'est pas modifié dans le temps. C'est pour introduire cette notion de temps et pour évaluer les délais entre réduction des émissions et restauration chimique ou biologique que les modèles dynamiques ont été développés. La notion « dynamique » est une notion de temps.

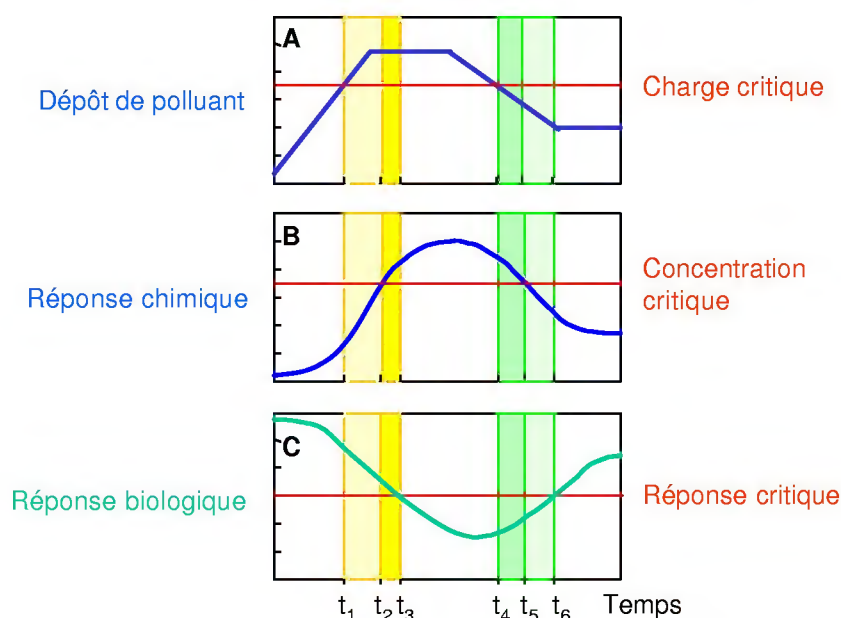


Figure 6-10 : Évolution schématique des dépôts d'un polluant et des réponses chimiques et biologiques observées sur un écosystème (d'après CCE, 2002; Posch et al., 2003). A : Augmentation, stagnation et diminution des dépôts de polluants. t_1 : temps auquel le dépôt devient supérieur à la charge critique. B : Réponse chimique au dépôt de polluant : évolution de la concentration de polluant dans le milieu. t_2 : temps auquel la concentration de polluant dans le milieu devient supérieure à la concentration critique : le critère chimique est violé. C : Réponse biologique. t_3 : temps auquel l'écosystème est endommagé : le critère biologique est violé. Lorsque les dépôts diminuent, au temps t_4 les dépôts deviennent inférieurs à la charge critique mais ce n'est qu'aux temps t_5 et t_6 que l'on peut parler de restaurations chimique et biologique respectivement.

6.9 Les objectifs des modèles dynamiques

Les modèles dynamiques sont conçus pour permettre d'évaluer *quand* l'écosystème sera endommagé ou *quand* sa restauration aura lieu. La modélisation inverse permet de calculer les dépôts maximums possibles en fonction de l'année cible choisie.

On peut envisager plusieurs façons de montrer les résultats des modèles dynamiques. Si on ne considère qu'un polluant (pour l'azote eutrophisant) et si on cherche à connaître quels peuvent être les dépôts annuels admissibles pour atteindre à une date donnée la restauration

du système, on utilisera la représentation de la Figure 6-11. Elle montre que plus on repousse la date à laquelle on souhaite la restauration du milieu, plus les dépôts annuels admissibles peuvent être importants.

Si on considère les effets combinés de deux polluants (cas de l'acidification par l'azote et le soufre), on rajoute une dimension au problème et il faudrait donc en rajouter une au graphe. Pour rester dans le plan, on reprend le type de représentation utilisé sur la Figure 6-3, mais on représente une fonction d'acidification pour chaque année cible. C'est la Figure 6-12. On peut aussi constater que plus l'année cible est éloignée plus les dépôts admissibles sont importants. On ne parle plus ici de charges critiques puisqu'on ne se place plus dans une optique d'écosystème à l'équilibre. Certains experts proposent de parler de « charges cibles pour l'année n ».

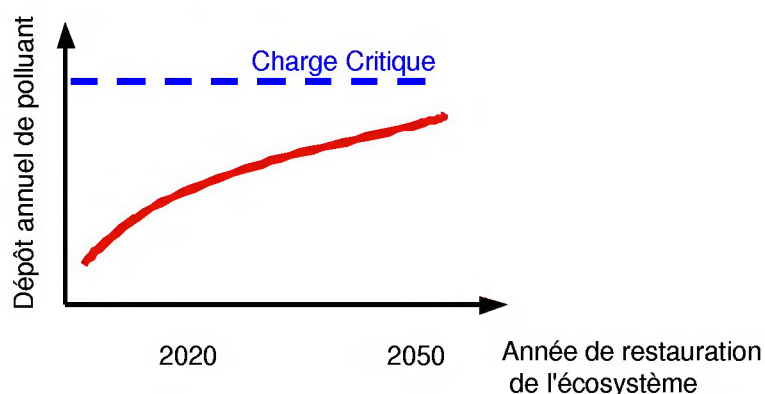


Figure 6-11 : Résultats type de la modélisation dynamique : dépôts annuels admissibles en fonction de l'année cible à partir de laquelle la restauration doit être observée.

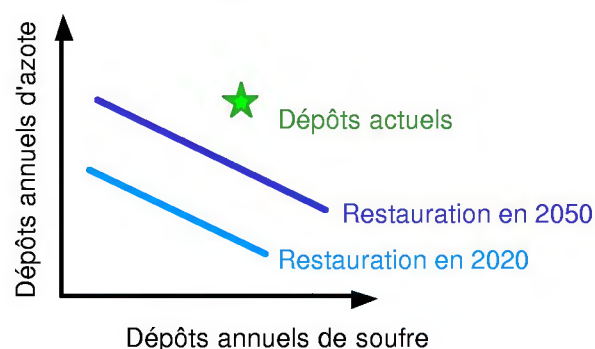


Figure 6-12 : Résultats type de la modélisation dynamique : cas de l'acidification : l'effet des deux polluants acidifiants doit être pris en compte simultanément ce qui oblige à représenter une fonction d'acidité pour chaque année cible.

Actuellement dans le cadre de la Convention LRTAP, l'utilisation de quatre modèles dynamiques est encouragée. Ces modèles simulent les effets d'apports atmosphériques acidifiants sur différents compartiments du milieu ou avec des degrés de précision différents.

- MAGIC simule l'évolution des caractéristiques chimiques d'un cours d'eau ou d'un lac au sein de leur bassin versant.
- SMART simule l'évolution des caractéristiques chimiques des eaux de surface et de la solution du sol.

- SAFE simule l'évolution des caractéristiques chimiques d'un sol et de sa solution.
- VSD est une version simplifiée de SAFE et reproduit en première approximation, l'évolution des caractéristiques chimiques d'un sol.

L'équipe du Laboratoire des Mécanismes et Transferts en Géologie (LMTG) de l'Université de Toulouse développe le modèle WiTCh qui est comparable au modèle SAFE, dans la mesure où il simule l'évolution de la chimie d'un sol et de sa solution. L'intérêt de ce modèle est qu'il prend en compte de façon plus détaillée que SAFE l'altération du sol ce qui permet d'obtenir de meilleurs résultats pour une plus grande variété de sols.

7 LES CRITÈRES BIOLOGIQUES ET CHIMIQUES

7.1 Généralités

Comme il a été vu lors de la définition des concepts de concentrations et de charges critiques (section 6.1), le choix des critères biologiques est le point de départ de tous les calculs qui permettent finalement de quantifier les charges critiques, c'est-à-dire de leur attribuer une valeur. Il a été montré que la valeur de la charge critique pouvait varier selon la cible biologique et les effets jugés « significatifs » choisis. Ainsi, pour les forêts du nord de la Finlande les critères basés sur le pH et la concentration en aluminium sont moins astreignants que ceux basés sur le rapport Ca /Al (Koptsik *et al.*, 1999). Le choix du critère est laissé aux experts qui établissent les charges critiques et qui sont les personnes qui connaissent le mieux les écosystèmes considérés, au moins à l'échelle du pays.

L'existence d'un choix pour le critère biologique sous-entend qu'il y a plusieurs cibles possibles, plusieurs effets à considérer ou plusieurs façons d'appréhender les effets. En éco(toxico)logie, on considère qu'un écosystème présente plusieurs niveaux de fonctionnalités qui, du plus petit au plus large sont : la cellule, l'individu, la population et l'écosystème. Le polluant agit sur la cellule et l'impact se répercute remontant d'échelon en échelon, sur l'ensemble du milieu. Par exemple, l'acidité des sols empêche la formation de la coquille des escargots. Ceux-ci sont la base de la nourriture des passereaux qui n'ont plus à leur disposition les sels minéraux nécessaires à la fabrication des coquilles d'œufs. Le taux de reproduction des oiseaux diminue et leur population décline. Le critère biologique idéal permettrait à partir de la mesure d'une perturbation de l'un de ces niveaux de prédire l'ensemble des effets sur la totalité du système.

Le critère biologique idéal simple n'existe pas. Le milieu naturel est trop complexe pour pouvoir être résumé en un seul processus ou dans la présence ou l'absence d'un organisme unique. En effet, plusieurs organismes peuvent avoir une fonction en commun, comme par exemple décomposer la matière organique. S'ils ont les mêmes prédateurs, la disparition de l'un d'eux peut ne pas perturber l'équilibre du système. Si leurs prédateurs diffèrent, la disparition d'une espèce à cause d'un changement d'acidité du milieu peut mettre en danger l'ensemble des organismes qui en dépendent. À travers les relations proies-prédateurs, plusieurs niveaux de la chaîne alimentaire peuvent être affectés. Certaines espèces qui à priori ne sont pas sensibles aux conditions acido-basiques sont alors susceptibles de disparaître. Ainsi, l'utilisation d'un indice mesurant une seule ou un nombre trop limité d'espèces risque de masquer les relations interspécifiques. Toutefois les indices qui ne font que compter le nombre d'espèces présentes dans le milieu risquent eux de masquer les informations importantes données par la présence des espèces les plus sensibles. Les critères biologiques se développent donc pour prendre en compte à la fois le nombre des espèces et leurs fonctionnalités.

Certains chercheurs suggèrent que ce n'est qu'en utilisant simultanément plusieurs indices que l'on peut obtenir une image correcte de l'état de santé d'un écosystème et de son degré éventuel de détérioration. Ainsi il serait sans doute nécessaire d'utiliser un panel d'indices de façon à ne pas perdre des informations cruciales. En particulier, il est important de pouvoir prendre en compte des effets à tous les niveaux trophiques des écosystèmes (de l'algue au poisson prédateur pour les écosystèmes aquatiques) et dans tous ses niveaux de fonctionnement (écosystème, population, individu, cellule).

L'utilisation d'indices prenant en compte à la fois l'abondance et la nature des organismes ou de panels d'indices permettrait d'affiner les valeurs des paramètres utilisées pour le calcul des charges critiques mais demande un effort de mesure accru.

L'utilisation d'indices trop simples permet avec un effort limité de mesures d'obtenir un résultat dont l'interprétation peut paraître simple mais qui risque d'avoir une plus grande incertitude, tant sur la relation avec les paramètres physico-chimiques du milieu que sur la pertinence même de la relation.

Le calcul des charges critiques nécessite qu'un critère chimique soit associé au critère biologique choisi. Ceci est fait à l'aide de relation dose-réponse. La dose est la quantité de composé chimique dans l'environnement (le critère chimique), la réponse est l'effet sur les organismes y vivant (le critère biologique). Une fois qu'une relation a été établie entre un critère biologique et un critère chimique dans un écosystème, il «suffit» de vérifier que cette relation existe dans d'autres écosystèmes semblables pour pouvoir la généraliser. Un des avantages du critère biologique sur le critère chimique est que la présence ou l'absence d'organismes reflète les conditions chimiques pendant toute la période de leur cycle de vie. Si les conditions deviennent inadéquates pendant une petite période (celle de la ponte ou celle des premiers jours de développement des larves), l'espèce déclinera ou disparaîtra. L'indice biologique calculé une à deux fois par an reflètera cet événement. Pour arriver à déceler ce type de problème à l'aide de mesures physico-chimiques du milieu, il est nécessaire de faire un suivi très régulier et fréquent, mensuel bi-mensuel, voire hebdomadaire.

Il est toutefois nécessaire de garder à l'esprit que toutes les relations écotoxicologiques mises au point jusqu'à maintenant ont des limites et que donc les relations doses réponses disponibles ont des limites d'application. C'est en partie à causes de ces limites qu'il n'y a pas consensus sur les critères utilisés.

Ainsi il est reconnu que les charges critiques d'acidification sont basées sur des critères chimiques dont la robustesse est plus faible pour les écosystèmes terrestres que pour les écosystèmes aquatiques (Løkke *et al.*, 2000). Il peut donc être utile de revoir les critères chimiques et biologiques qui ont été choisis par le passé. Parallèlement, la mise en œuvre de nouveaux critères, d'indices ou de méthodologies proposées récemment par les chercheurs en écologie pourrait peut être permettre d'affiner le calcul des charges critiques et d'en abaisser certaines incertitudes.

7.2 Critères d'acidification des milieux terrestres et aquatiques

7.2.1 Exemple : indices d'acidification des eaux

Plusieurs indices ont été proposés pour évaluer les effets de l'acidification des eaux de surface. L'acidification du milieu peut avoir un impact au niveau de la santé des écosystèmes, de chaque population ou de chaque individu et des indices ont été établis pour mesurer les impacts de la pollution à chacun de ces niveaux.

La façon la plus simple parce que la plus évidente d'évaluer la santé d'un milieu est de vérifier la présence ou l'absence de certaines espèces de poissons comme la truite. Cette information ne reflète toutefois pas l'état de tout le système et n'est pas généralisable à tous les cours d'eau. Elle peut être complétée par l'observation d'espèces d'invertébrés qui doit tenir compte des conditions extrêmes qui ont lieu en particulier à la fonte des neiges (Massabuau *et al.*, 1995; Thiebaut et Muller, 1998; Thiebaut *et al.*, 1998).

Des indicateurs plus complexes mais permettant de mieux appréhender l'impact de l'acidification sur l'écosystème ont été développés. Ce sont par exemple le «*biotic index of acidification*» (Guérol *et al.*, 1998) ou les indices proposés par Raddum (1998). Ce type d'indice associe la présence ou l'absence d'espèces dans un écosystème à son degré d'acidification. Ces indices sont calculés grâce à des observations de terrain à partir

desquelles des analyses taxonomiques d'organismes présents dans les cours d'eau sont mis en relation avec des paramètres physico-chimiques tels que le pH ou le pouvoir tampon représenté par l'ANC.

Certaines espèces sont connues pour être sensibles à l'acidification, d'autres pour être capables d'y résister ou même pour préférer des conditions acides à des conditions plus basiques. À la présence ou à l'absence de chaque, est associé un indice qui est établi en fonction de la sensibilité et de l'abondance de chaque espèce dans le milieu (Figure 7-1). Une relation dose-effet est ensuite établie pour faire correspondre à chaque indice une valeur seuil d'un paramètre physico-chimique, qui déterminera le critère chimique (Figure 7-2).

De tels indices donnent une évaluation de la santé du milieu qui tient compte à la fois de la présence et de l'abondance de plusieurs organismes dont les fonctions varient dans le milieu. Ils n'en comportent pas moins des inconvénients : comme tous les indices de biodiversité, ils reposent sur l'identification d'espèces, ce qui nécessite le savoir-faire de spécialistes. Pour certains de ces indices, il est important d'identifier les organismes au niveau de taxonomie le plus bas, celui de l'espèce⁸ (Guérol, 2000; Thiebaut *et al.*, 2002). Pour être représentative, la comparaison des résultats doit se faire sur des surfaces et entre écosystèmes de caractéristiques physiques et chimiques semblables. D'autre part, ces indices sont dépendants de la biodiversité « naturelle » de chaque écosystème : celle-ci augmente du nord au sud de l'Europe. Les listes d'organismes à prendre en compte sont donc variables d'un pays à l'autre. Les contraintes imposées par ces limites montrent seulement les difficultés que l'on peut rencontrer sur le terrain. Celles-ci sont sources d'incertitudes qui peuvent être diminuées par un effort de mesure et une harmonisation des données.

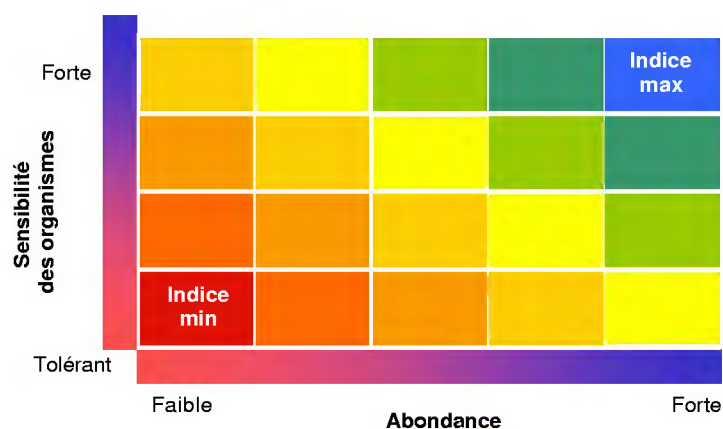


Figure 7-1 : Représentation schématique d'un tableau permettant l'attribution d'une valeur à un indice de biodiversité dépendant de l'acidification d'un milieu.

⁸ La classification des organismes vivants se fait en classes, qui depuis les racines jusqu'aux feuilles, sont : (Domaine), règne, phylum, classe, ordre, famille, *Genre*, *espèce*. Ainsi, l'homme d'aujourd'hui est un animal, chordata, mammifère, primate, hominidae, *Homo sapiens*.

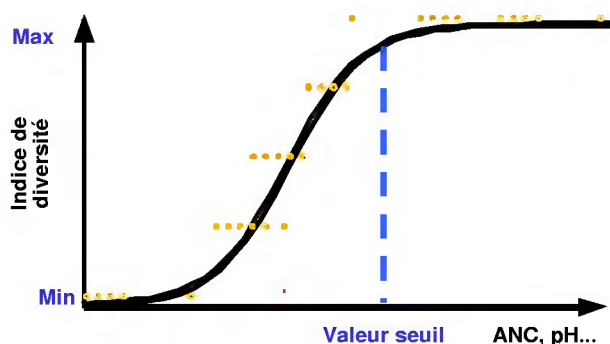


Figure 7-2 : Relation dose-effet type entre un indice de biodiversité et un paramètre physico-chimique du milieu.

7.2.2 Critères utilisés pour calculer les charges critiques d'acidification

Dans le rapport du CCE de 1995 (Posch *et al.*, 1995), trois critères chimiques sont proposés pour calculer l'alcalinité critique. Ces critères sont supposés représenter la valeur seuil au-delà de laquelle la santé des plantes est susceptible d'être endommagée. Les deux premiers sont utilisables pour des sols minéraux, le troisième pour des sols organiques (tourbières). Ces critères sont:

1. Le rapport des concentrations des cations basiques sur la concentration de l'aluminium dans la solution du sol $(Ca + Mg + K)/Al$. Une valeur critique de 1 est proposée pour les forêts de conifères. Il est suggéré de considérer que l'écosystème n'est pas endommagé par l'acidification des sols lorsque ce rapport est supérieur à 1. Sverdrup et Warfinge (1993) proposent d'autres valeurs pour une variété d'écosystèmes, autres que les forêts.
2. La baisse des concentrations des phases secondaires de l'aluminium et de leurs complexes. Ceux-ci maintiennent la cohésion physique du sol et évitent donc sa dégradation. Ce critère est estimé proportionnel au taux d'altération des cations basiques dans le sol.
3. Un rapport critique entre la concentration de cations basiques et celle du proton. Les valeurs par défaut proposées sont $(Ca + Mg + K)/H = (Ca + Mg + K)/Al$ pour les épicéas et la végétation du sous bois et $(Ca + Mg + K)/H = 1/3 (Ca + Mg + K)/Al$ pour les pins et les arbres à feuilles caduques. Ce critère est à utiliser pour des sols dont la teneur en matière organique est élevée.

L'absence de consensus sur ces critères et l'évolution des connaissances sont telles qu'une gamme de critères a été utilisée à travers l'Europe pour calculer les charges critiques. Une liste, non exhaustive, en est donnée dans le Tableau 7-1 et des exemples de valeurs choisies pour certains de ces critères se trouvent dans le Tableau 7-2.

Pour les eaux de surface, il est suggéré que les valeurs les plus élevées d' ANC_{crit} soient utilisées dans les régions où le pH et les concentrations en calcium sont ou ont été à l'origine élevés alors que les valeurs les plus faibles correspondent à des régions où les espèces aquatiques sont accoutumées à des eaux dont la conductivité est faible (c'est-à-dire qui ont de faibles concentrations en ions) (Skjelkvåle *et al.*, 2001b).

Les indices biologiques initialement recommandés au sein de la convention de Genève (PIC Eaux) ont nécessité l'établissement de listes nationales des espèces sensibles à l'acidification des eaux. Il aurait peut être été plus cohérent d'établir des listes correspondant à des « éco-régions » car la sensibilité des espèces n'est pas fonction de nos frontières politiques mais des écosystèmes dans lesquels elles se trouvent. Cela aurait évité de donner aux même espèces des indices différents de part et d'autre d'une frontière : selon la méthode proposée par Raddum *et al.* (1988), le pH à partir duquel les espèces les plus acido sensibles disparaissent est 5,5 alors que les études d'équipes françaises montrent clairement que dans les Vosges des taxons commencent à disparaître dès que le pH de l'eau devient inférieur à 6, voire 6,5 (Dambrine *et al.*, 1998b; Guérol, 1999; Massabuau *et al.*, 1995). Une notion qui a été suggérée comme très importante est celle de « rythme annuel » de la physico-chimie de l'eau. Il est en effet important de ne pas moyenner, et niveler, des valeurs extrêmes et d'être vigilant lors de la comparaison de résultats de campagnes de mesures quand celles-ci ont été très différentes, tant par leur nombre que par les saisons auxquelles elles ont eu lieu. Comme la période de basses eaux donne la meilleure vision des modifications causées par l'acidification dans un bassin versant et qu'elle est la plus facile d'accès, Massabuau *et al.* (1995) avaient suggéré de se baser sur cette période pour définir les critères d'acidification. Les norvégiens (Raddum, 2003, communication personnelle) sont en train de se rapprocher de ces idées.

Tableau 7-1 : Exemples de critères chimiques et biologiques utilisés pour le calcul des charges critiques d'acidité en Europe. $BC = Ca^{++} + Mg^{++} + K^+ + Na^+$.
 $Bc = Ca^{++} + Mg^{++} + K^+$.

Écosystème	Critère biologique/écologique	Critère chimique d'acidification	Référence
Forêts	Santé de jeunes pousses d'arbres	pH et concentration en aluminium dans l'eau du sol (permet de calculer l'ANC lessivé critique)	Party <i>et al.</i> , 2001b Aherne et Farrell, 2002
Forêts		Bc/Al (le critère le + utilisé)	Posch <i>et al.</i> , 1995 ; Aherne et Farrell, 2002
Sols minéraux			
Forêts		Ca/Al	Posch <i>et al.</i> , 1999
Sols minéraux			
Forêts		Bc/H	Aherne et Farrell, 2002 ; Posch <i>et al.</i> , 1995
Sols organiques			
	Stabilité de la structure du sol	Rapport stœchiométrique de l'aluminium sur les cations basiques dans la roche mère, une fonction du taux d'altération des cations basiques	Aherne et Farrell, 2002 ; Posch <i>et al.</i> , 1995
Tourbières		Diminution du pH	Aherne et Farrell, 2002
Eaux de surface	Viabilité des populations de poissons (essentiellement truites et saumons)	ANC, Al, pH	Massabuau <i>et al.</i> , 1995
	Indice d'acidification basé sur la présence d'invertébrés	pH	Raddum, 1998
	Indice d'acidification basé sur la présence d'invertébrés	ANC	Guérol <i>et al.</i> , 1998

Tableau 7-2 : Critères chimiques d'acidification choisis par différents pays et chercheurs. $BC = Ca^{++} + Mg^{++} + K^+ + Na^+$. $Bc = Ca^{++} + Mg^{++} + K^+$.

Critère	Valeur	Pays	Référence
MILIEUX TERRESTRES			
BC / Al	1 éq éq ⁻¹	Finlande	Posch <i>et al.</i> , 1999
Bc / Al	1 mol mol ⁻¹	Irlande Valeurs proposées par CCE	Aherne et Farrell, 2002 ; UBA, 1996
Ca / Al	1 éq éq ⁻¹	Grande Bretagne, Norvège	Posch <i>et al.</i> , 1999
Al / Ca	1,5 éq éq ⁻¹	Bulgarie	Posch <i>et al.</i> , 1999
Bc / H	= 0,3 x Bc/Al pour arbres à feuilles caduques et végétation sous couvert = Bc/Al pour conifères	Valeurs proposées par CCE	Aherne et Farrell, 2002 ; UBA, 1996
Proton et Al/BC	Al/BC = 1,2 éq éq ⁻¹ [H ⁺] = 25 µeq l ⁻¹ (équivalent à pH= 4,5 - 4,6)	France	Party <i>et al.</i> , 2001b
pH	4	Belgique	Posch <i>et al.</i> , 1999
Proton et Al	pH > 4 : [Al] = 0,2 méq l ⁻¹ et [H ⁺] = 0,1 méq l ⁻¹ (pH = 4) pH < 4 : [Al] = 0,4 méq l ⁻¹ et [H ⁺] = 0,2 méq l ⁻¹ (pH = 3,6)	Croatie	Posch <i>et al.</i> , 1999
Rapport stœchiométrique de l'aluminium sur les cations basiques dans la roche mère	= 2 et varie entre 1,5 et 3 dans les sols européens (unité mol _e .mol ⁻¹ càd éq.éq ⁻¹)	Valeurs proposées par CCE	Aherne et Farrell, 2002
Diminution du pH pour les sols organiques	= 0,2 unités de pH	Irlande	Aherne et Farrell, 2002
EAUX DE SURFACE			
ANC, Al, pH (mesuré pendant la période où les eaux sont les plus basses)	ANC = 30 µeq.l ⁻¹ pH = 6 Al = 80 µg.l ⁻¹	Vosges	Massabau <i>et al.</i> , 1995
	ANC = 0 µeq.l ⁻¹	UK	Løkke <i>et al.</i> , 2000
	ANC = 20 µeq.l ⁻¹	Irlande, UK, Norvège, CCE, Suisse, Belgique	Posch <i>et al.</i> , 2001a ; Rihm, 1994 ; Skjelkvåle <i>et al.</i> , 2001b ; UBA, 1996
ANC critique dans les eaux de surface	ANC = 30 µeq.l ⁻¹	Les Alpes (en altitude) et les Pyrénées	Skjelkvåle <i>et al.</i> , 2001b
	ANC = 50 µeq.l ⁻¹	Suède, Allemagne, les Vosges françaises	Skjelkvåle <i>et al.</i> , 2001b
	ANC = 150 µeq.l ⁻¹	France	Guérol, 1999

7.3 Critères d'eutrophisation des milieux terrestres et aquatiques

L'eutrophisation des milieux se mesure à partir de critères qui décrivent une modification de la flore. Dans les calculs des modèles à l'équilibre, cette transformation est associée à un excès d'apports relativement aux pertes en azote dans l'écosystème. Ceci est décrit par l'équation d'équilibre des charges présentée section 8.2.2. Ce calcul ne repose pas sur un critère unique comme c'est le cas dans le calcul des charges critiques d'acidification car la charge critique d'eutrophisation est déterminée par quatre processus (immobilisation dans le sol, lessivage, dénitrification et assimilation par les plantes). Les quantités d'azote correspondantes sont choisies par les experts et présentées dans le Tableau 7-3.

L'établissement de charges critiques empiriques semble être davantage utilisé dans le cadre de l'eutrophisation que dans celui de l'acidification. Elles sont établies suite à des séries d'observations faites sur le terrain ou d'après des résultats d'expériences de fertilisation, suivies d'interprétations par les experts. Des valeurs ont été proposées dans le manuel de cartographie de charges critiques de 1996 (UBA, 1996) et ont été revues par un groupe de travail en novembre 2002 (Achermann et Bobbink, 2003). Ces dernières sont présentées par type de végétations (selon la classification EUNIS) dans le Tableau 7-3. Selon les chercheurs de l'INRA, les sols saturent en azote lorsque les concentrations dans les pluviollessivats dépassent en moyenne $15 \text{ kg ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ sous couvert forestier (Ranger *et al.*, 2000). Cette charge critique est variable car elle dépend de la nature des sols et de la végétation qui les recouvre.

Comme pour l'évaluation de l'acidification, des indices ont été développés pour quantifier le degré d'eutrophisation d'un site. Il en existe plusieurs, aucun ne satisfaisant l'ensemble de la communauté scientifique.

Tableau 7-3 : Charges critiques pour l'azote eutrophisant et critères biologiques et chimiques qui leur sont associés. ## fiable ; # assez fiable ; et (#) jugement d'experts. D'après Achermann et Bobbink (2003) et UNECE (2003).

Écosystème (classification EUNIS)	Indication d'excès		Gamme de charges critiques
	Critère biologique	Critère chimique	
FORÊTS			
Forêts tempérées (G)	Modification de la flore mycorhizienne de la flore sous couvert Baisse de la résistance aux parasites	Déséquilibre nutritionnel (proportion de BC) Modification des taux de nitrification, de minéralisation, augmentation du lessivage de l'azote	10-20 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ #
Forêts boréales (G)	Déclin des lichens, augmentation des algues sur les arbres Modification de la flore mycorhizienne de la flore sous couvert Baisse de la résistance aux parasites	Déséquilibre nutritionnel (proportion de BC). Modification des taux de nitrification, de minéralisation, augmentation du lessivage de l'azote	10-20 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ #
LANDES, BROUSSAILLES ET TOUNDRAS			
Toundra (F1)	Modification de la biomasse Effets physiologiques Modification de la composition des espèces de mousses Diminution des lichens		5-10 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ #
Habitat de fourré arctique, alpin et subalpin (F2)	Déclin des lichens, des mousses et des buissons à feuilles persistantes		5-15 (#)
Landes humides septentrionales (F4.11)	Recul de la prédominance des bruyères Déclin des mousses et des lichens		10-20 (#)
Landes sèches (F4.2)	Transition des bruyères aux graminées Déclin des lichens	Accumulation d'azote	10-20 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ ##
LANDES ET PRAIRIES			
Pelouses calcaires semi-sèches sub-atlantiques (E1.26)	Augmentation des graminées hautes, changement de la diversité des espèces	Augmentation de la minéralisation, de l'accumulation d'azote et du lessivage	15-25 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ ##
Pelouses fermées acides ou neutres sèches non méditerranéennes (E1.7)	Augmentation des graminées, déclin des espèces typiques		10-20 #
Pelouses pionnières des dunes intérieures (E1.94)	Diminution des lichens Augmentation de la biomasse		10 -20 (#)
Pelouses siliceuses des dunes intérieures (E1.95)	Diminution des lichens Augmentation de la biomasse Augmentation de la vitesse de succession		10 -20 (#)

Écosystème (classification EUNIS)	Indication d'excès		Gamme de charges critiques
	Critère biologique	Critère chimique	
LANDES ET PRAIRIES			
Prairies de fauche de basse et moyenne altitudes (E2.2)	Augmentation des graminées Diminution de la diversité		20-30 (#)
Prairies de fauche de montagne (E2.3)	Augmentation des graminées nitrophiles, modification de la diversité		10-20 #
Prairies humides et oligotrophiques à <i>Molinia caerulea</i> (E3.51)	Augmentation des hautes graminées Diminution de la diversité Diminution des bryophytes		15-25 (#)
Prairies de lande (<i>Juncus</i>) et prés humides (<i>Nardus stricta</i>) (E3.52)	Augmentation des hautes graminées Diminution de la diversité Diminution des bryophytes		10-20 #
Pelouses alpines et subalpines (E4.3 et E4.4)	Augmentation des graminées nitrophiles Modification de la biodiversité		10-15 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ (#)
Sommets à prédominance de mousses et de lichens (E4.2)	Effets sur les bryophytes ou les lichens		5-10 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ #
ZONES HUMIDES			
Tourbières hautes et tourbières de couverture (D1)	Modification de la composition des espèces Saturation en azote de <i>Sphagnum</i>		5-10 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ ##
Bas-marais pauvres (D2.2)	Augmentation des laiches et des plantes vasculaires. Effet négatif sur les mousses des tourbières		10-20 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ #
Bas-marais riches (D4.1)	Augmentation des graminées hautes Diminution de la diversité Déclin des mousses caractéristiques		15-35 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ (#)
Bas-marais riches d'altitude (D4.2)	Augmentation des plantes vasculaires Diminution des bryophytes		15-25 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ (#)
EAUX DE SURFACE			
Eaux oligotrophiques permanentes : Lacs d'eau douce (C1.1)	Déclin des espèces de certaines plantes aquatiques (groupe des isoètes)		5-10 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ ##
Dépressions lacustres intradunales (C1.16)	Augmentation de la biomasse et des taux de succession		10-20 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ (#)
HABITAT CÔTIER			
Dunes côtières mobiles (B1.3)	Augmentation de la biomasse	Augmentation du lessivage d'azote	10-20 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ (#)
Pelouses sur dunes côtières stables (B1.4)	Augmentation des graminées hautes Diminution des plantes prostrées	Augmentation du lessivage d'azote	10-20 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ #
Landes sur dunes côtières (B1.5)	Augmentation de la production de biomasse Succession modifiée	Augmentation du lessivage d'azote	10-25 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ (#)
Dépressions intradunales humides à mouillées (B1.8)	Augmentation de la biomasse des graminées hautes		10-25 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ (#)
HABITAT MARIN			
Marais pionniers et de niveau faible à intermédiaire (A2.64 et A2.65)	Augmentation des espèces dans la partie tardive de la succession Augmentation de la productivité		30-40 kg N ha ⁻¹ an ⁻¹ (#)

8 LES MODÈLES MATHÉMATIQUES

8.1 Généralités

En pratique, les charges critiques sont souvent calculées grâce à des modèles dits à l'équilibre. Ces modèles permettent de calculer les dépôts acidifiants et eutrophisants au-delà desquels l'écosystème peut être endommagé. Ils sont basés sur le principe d'électroneutralité établissant que la somme des charges positives et négatives des ions acidifiants et des ions qui tamponnent la solution du sol contre l'acidification est nulle. Ce concept se traduit mathématiquement par des équations d'équilibre des charges et des masses des composés chimiques en jeu. Ces modèles sont souvent appelés SMB pour « *simple mass balance* » ou SSMB pour « *steady state mass balance* ». La première dénomination souligne que l'approche est simple par rapport à la nature réelle des processus biogéochimique qu'elle décrit. Le deuxième acronyme rappelle que les écosystèmes sont supposés être à l'équilibre et en régime permanent (« *steady state* »), ce qui sous-entend que les conditions ne changent pas avec le temps. Dans la dénomination SSMB, il est aussi implicite que l'équation de base du modèle est une équation chimique d'équilibre entre les ions apportés et les ions perdus par le système. C'est l'équilibre des masses. SMB et SSMB désignent en fait les mêmes types de modèles.

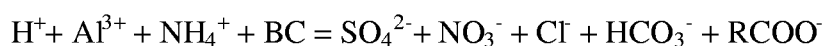
A partir d'un modèle à l'équilibre, on calcule des charges critiques des écosystèmes puis les excès si on connaît les dépôts sur cet écosystème. Le risque d'acidification ou d'eutrophisation du milieu est représenté par les excès calculés.

8.2 Équations de base des modèles à l'équilibre

8.2.1 Charges critiques d'acidification

Pour établir une équation d'équilibre de charges ou de masse, il est d'abord nécessaire de définir le compartiment dans lequel l'équation est valable. Dans le cas des calculs de charges critiques d'acidification et d'eutrophisation, le compartiment comprend le sol et la solution du sol d'un écosystème terrestre ou l'ensemble des eaux de surface d'un bassin versant pour un écosystème aquatique. Ce compartiment reçoit et perd des composés chimiques mais l'hypothèse d'équilibre dans le temps implique que pour chaque composé, la somme des apports est égale à la somme des pertes. Les équations d'équilibre expriment que la somme des flux des masses (nombre ou masse des molécules) et des charges électriques de chaque composé est nulle.

L'équation de base pour calculer les charges critiques d'acidification est l'équation qui décrit l'équilibre des charges dans l'eau qui quitte le sol (l'eau de lessivage). Cette eau qui lessive le sol emmène avec elle des ions positifs (essentiellement H^+ , Al^{3+} , NH_4^+ et les cations basiques BC) et des ions négatifs (essentiellement SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , HCO_3^- et les acides organiques $RCOO^-$). Pour être stable, la solution doit avoir une charge électrique nulle, ce qui est décrit par une équation dite d'équilibre de charges :



Chaque terme correspond au flux de l'ion correspondant et son unité est $eq\ ha^{-1}\ an^{-1}$. À partir de cette équation, il est possible de déduire la charge critique en regroupant certains termes et en utilisant d'autres équations d'équilibre de masse entre les apports et les pertes d'ions du système. Il en découle que la charge critique d'apport en soufre et en azote est décrite par :

$$CC(S+N) = CC(S) + CC(N)$$

$$= BC_{dep} + BC_{alt} - BC_{ass} - Cl_{dep} + N_{im} + N_{ass} + N_{de} - Alc_{les}$$

où CC représente la charge critique (« *critical load* », CL dans les textes en anglais), S le soufre, N l'azote, BC les cations basiques, Cl les ions chlorure et Alc l'alcalinité. Les indices indiquent :

- dep : les dépôts atmosphériques,
- alt : l'altération de la roche,
- ass : l'assimilation par les plantes,
- im : l'immobilisation dans le sol,
- de : la dénitrification,
- les : le lessivage.

Dans la partie droite de l'équation, les termes précédés par un + correspondent à des processus qui tamponnent l'écosystème contre l'acidification tels que les apports de cations par dépôts atmosphériques ou par altération des minéraux du sol. Les termes précédés d'un - décrivent des processus qui acidifient le sol : 1- les dépôts d'ions chlorure qui dans les dépôts atmosphériques sont protonés pour donner de l'acide chlorhydrique et 2- l'assimilation de cations basiques par les plantes qui consomme des cations qui autrement auraient pu servir à tamponner le sol contre l'acidité. 3- l'alcalinité lessivée qui correspond à une perte de pouvoir tampon du sol. Les charges critiques en azote et en soufre sont en fait les apports en azote et en soufre et correspondent donc aussi à des processus acidifiants.

Certains termes de ces équations peuvent être exprimés en fonction du critère chimique choisi comme indicateur de la santé de l'écosystème. C'est en particulier le cas de l'alcalinité lessivée (Alc) qui peut s'exprimer en fonction du rapport Bc/Al ou du pH et de la concentration en ion Al^{3+} :

$$Alc = HCO_3^- + RCOO^- - H^+ - Al^{3+}$$

Une telle expression de l'alcalinité néglige la concentration en ions CO_3^{2-} et la concentration des hydroxydes d'aluminium ($Al_n(OH)_m^{3n-m+}$). La première hypothèse est justifiée pour les sols dont le pH est inférieur à 8 (c'est-à-dire pour la plupart des sols qui risquent d'être acidifiés), la seconde est justifiée par le manque d'informations en général disponibles sur la spéciation de l'aluminium. Si le pH du sol ou de la solution est inférieur à 4,5, on peut également négliger la concentration en HCO_3^- .

Selon les critères choisis, on peut fixer une valeur seuil pour l'alcalinité, ou la calculer en détaillant son expression jusqu'à ce qu'elle ne contienne que des termes connus ou estimés, dont l'un est une valeur seuil à ne pas dépasser. C'est dans ce type de calcul que peut intervenir l'utilisation de la constante de Gibbsite qui exprime la concentration de l'ion aluminium en fonction de celle du proton :

$$Al^{3+} = K_{gibb} (H^+)^3$$

La constante K_{gibb} est une donnée qui doit être ajustée pour chaque type de sol. La valeur par défaut recommandée par le CCE est $300 \text{ m}^6 \text{ éq}^{-2}$.

Les autres termes de l'équation des charges critiques sont issus de mesures ou d'évaluations sur le terrain. Les taux de dépôts, d'assimilation, de lessivage, de dénitrification de l'azote suggérés par le CCE et choisis par les experts français sont donnés dans le Tableau 8-2. Les taux de dépôts des cations basiques sont établis dans chaque pays ou à l'échelle de l'Europe par EMEP. Ces dépôts varient en fonction de la proximité de la mer et des sources d'émissions anthropiques. Des cartes pour la France ont

récemment été établies à partir des données du réseau CATAENAT par Croise *et al.* (2002).

Ainsi les valeurs de charges critiques dépendent de plusieurs caractéristiques du site étudié, y compris de sa végétation. Selon l'approche suivie par les experts (critères biologiques ou chimiques choisis), les valeurs des charges critiques peuvent aussi varier. Les valeurs choisies par 4 pays pour différents écosystèmes sont données dans le dernier rapport du CCE et représentées sur la Figure 8-1. Les valeurs choisies par Party (1999) pour la France sont données dans le Tableau 8-1.

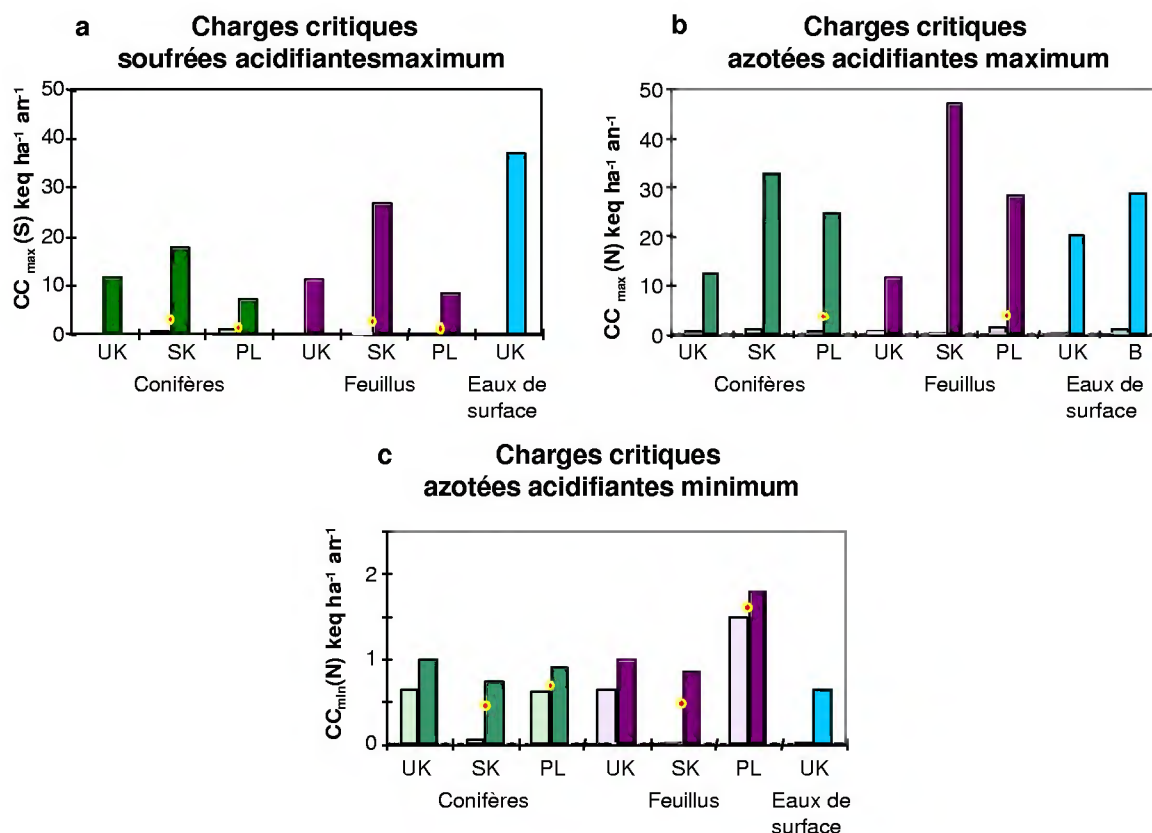


Figure 8-1 : Charges critiques acidifiantes choisies par le Royaume Uni (UK), la Slovaquie (SK), la Pologne (PL) et la Belgique (B) pour les feuillus, les conifères et les eaux de surface. Les données pour la Pologne correspondent à celles reportées pour le pin et le chêne (Posch *et al.*, 2001b). Les barres claires représentent les valeurs minimum reportées par chaque pays, les barres foncées les valeurs maximum et les points les moyennes.

La comparaison de ces graphes montre :

- Que chaque pays donne une large gamme de valeurs pour les charges critiques maximum. Cela peut refléter la variabilité des écosystèmes ou l'imprécision de l'approche.
- Que les charges critiques pour les eaux de surface sont semblables ou inférieures à celles des forêts. Ceci suggère que les écosystèmes aquatiques sont à risque avant ou dès que les dépôts sont acidifiants pour les écosystèmes forestiers. Cela se vérifie aussi sur les valeurs françaises (Tableau 8-1).

Tableau 8-1 : Charges critiques d'acidification en France en milieu forestier et pour les ruisseaux ardennais (Février et al., 1999; Party, 1999).

	Valeurs minimum kéq ha ⁻¹ an ⁻¹	Valeurs maximum kéq ha ⁻¹ an ⁻¹
Sables purs, sols podzolisés Pin maritime	0,1 - 0,2	< 0,2
Grès siliceux, sols podzolisés Sapin, épicéa, chêne	0,1 - 0,3	0,2 - 0,5
Granites acides, sols podzolisés Sapin, épicéa	0,2 - 0,4	0,5 - 0,8
Granites, gneiss, micaschistes schistes, sols bruns acides hêtre, sapin, épicéas, douglas	0,2 - 1,2	0,5 - 1,5
Limons siliceux acides, sols lessivés hydromorphes Chêne	0,3 - 0,8	1,2 - 2,0
Roches volcaniques basiques, sols bruns ± saturés Épicéas	2,0 - 6,0	> 2,0
Roches carbonatées, sols bruns calciques à calcaire Sapin	> 5,0 - 10	>> 2,2
Ruisseaux ardennais	0,2	2,0

8.2.2 Charges critiques d'eutrophisation

L'idée qui sous-tend le calcul de charge critique eutrophisante est qu'il ne doit pas y avoir d'accumulation d'azote dans le système, ni de déséquilibre entre les nutriments (cations basiques et azote), ni de lessivage d'azote. L'équation de masse doit donc expliciter les apports (dépôts atmosphériques et fixation de l'azote par les plantes) et toutes les sorties d'azote du système : l'immobilisation par la matière organique du sol, l'assimilation par les plantes, l'adsorption sur les particules et les pertes causées par la dénitrification, par l'érosion, par la volatilisation de l'ammoniac, par le lessivage et par les feux de forêts accidentels ou faisant partie des techniques de gestion de l'écosystème. Dans bon nombre d'écosystèmes les connaissances sont insuffisantes pour quantifier chacun de ces processus. Il est alors conseillé d'utiliser une équation simplifiée telle que (UBA, 1996) :

$$CC_{nut}(N) = N_{imm} + N_{ass} + N_{de} + N_{le}$$

Dans cette équation, les taux d'azote immobilisé, assimilé, dénitrifié et lessivé doivent être évalués selon des procédures proposées par le CEE (UBA, 1996). Des exemples de valeurs sont donnés dans le Tableau 8-2.

Les charges critiques eutrophisantes sont aussi évaluées de façon empirique, comme discuté dans la section 7.3. Les valeurs recommandées au sein de la Convention de Genève sont données dans le Tableau 7-3. Des exemples de charges critiques eutrophisantes calculées par différents pays sont donnés sur la Figure 8-2, a.

La Figure 8-2 montre que les charges critiques pour l'azote eutrophisant (graphe a) sont semblables aux charges critiques minimum pour l'azote acidifiant et largement inférieures aux charges critiques maximum pour l'azote acidifiant. Ceci implique que si l'on veut protéger les écosystèmes contre l'acidification, les fonctions de charges critiques doivent prendre en compte $CC_{eut}(N)$ et prennent la forme montrée sur la Figure 6-4, b. De plus,

puisque $CC_{\text{eut}}(\text{N})$ est très proche de $CC_{\text{min}}(\text{N})$, la zone du graphe où il n'y a pas de dommage est considérablement réduite.

Tableau 8-2 : Valeurs des taux d'azote immobilisé, prélevé par la végétation, dénitrifié dans les sols et lessivé dans les sols européens selon le RIVM et dans les sols français. Valeurs rapportées par Party et al. (2001a). (1) Les valeurs basses ont été retenues pour les sols français (Party et al., 2001b). (2) Calculé selon la méthode proposée par de Vries et al. (1990). (3) Calculés selon la méthode suggérée par Hettelingh et de Vries (1992), les valeurs faibles par rapports aux gammes proposées par le RIVM ont été choisies par la France.

	Valeurs européennes selon le RIVM (kéq ha ⁻¹ an ⁻¹)	Valeurs françaises (kéq ha ⁻¹ an ⁻¹)
Taux d'azote immobilisé :		
en plaine (< 1500 m)	0,14 - 0,21	0,15
en altitude (> 1500 m)	0,28 - 0,35	0,30 ⁽¹⁾
Taux d'azote prélevé par :		
les feuillus		0,038
les conifères		0,065 ⁽²⁾
Taux de dénitrification :		
dans les sols drainant		0
dans les sols hydromorphes		0,05 ⁽³⁾
Taux d'azote lessivé :		
en plaine, pour les feuillus	0,14 - 0,28	0
en plaine, pour les conifères	0,28 - 0,35	0,05
en montagne		0,1

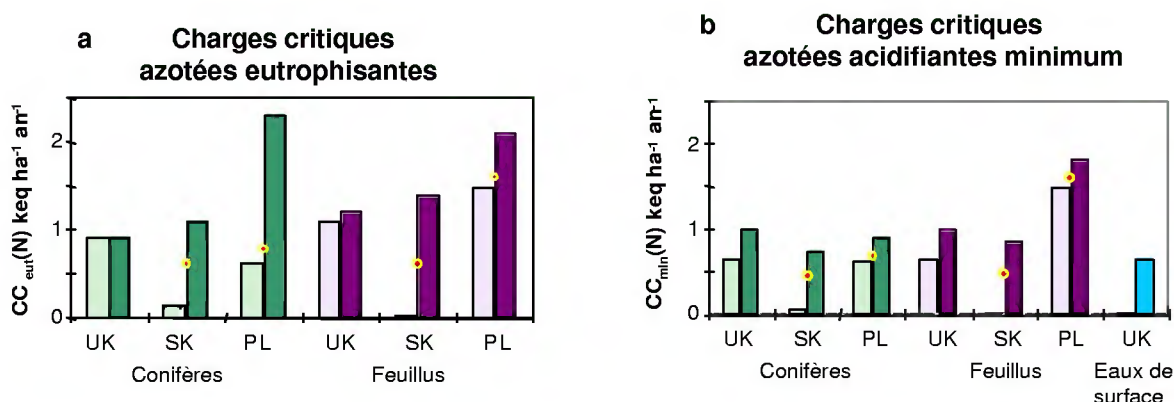


Figure 8-2 : Charges critiques eutrophisantes et acidifiantes choisies par le Royaume Uni (UK), la Slovaquie (SK), la Pologne (PL) et la Belgique (B) pour les feuillus, les conifères et les eaux de surface. Les données pour la Pologne correspondent à celles reportées pour le pin et le chêne (Posch et al., 2001b). Les barres claires représentent les valeurs minimum reportées par chaque pays, les barres foncées les valeurs maximum et les points les moyennes.

9 SOURCES D'INCERTITUDES

Les sources d'erreurs et d'incertitudes d'un modèle peuvent être classées, artificiellement, en quatre grandes catégories. Celles-ci sont examinées ici rapidement pour le cas des modèles de charges critiques. Ce chapitre ne prétend pas à l'exhaustivité.

9.1 Propagation de l'erreur le long de la chaîne de calculs

Lorsqu'on effectue une série de calculs, s'il y a une erreur ou une incertitude sur les données d'entrée, celle-ci sera propagée, peut être amplifiée, le long de la chaîne de calculs. Il existe des techniques mathématiques qui permettent de quantifier l'erreur à la fin des calculs. La complexité de leur mise en œuvre est fonction de celle du modèle mathématique. Les résultats sont bien entendu strictement dépendants des équations du modèle. Il n'est pas du ressort de ce rapport de calculer ni de discuter l'ampleur de cette incertitude « mécanique ».

Dans le cas particulier de la méthodologie des charges critiques, il se pose de plus le phénomène de la propagation des erreurs d'un modèle à l'autre. La Figure 6-1 montre les différents modèles utilisés dans l'évaluation des excès des charges critiques. Il y a d'une part le modèle atmosphérique à partir duquel sont évalués les dépôts « réels ». Il y a d'autre part le modèle biologique (issus des critères discutés dans la section 7) dont les résultats sont utilisés comme données d'entrées du modèle chimique. Chacun de ses modèles comporte ses propres incertitudes. Les résultats du modèle chimique et ceux du modèle atmosphérique sont les données d'entrée du « modèle intégré » qui les compare, les intègre sur une maille de 50 km x 50 km et les utilise pour établir des scénarios de réduction d'émission. Les incertitudes de chacun de ces modèles se propagent et se retrouvent dans les résultats du modèle intégré.

9.2 Hypothèses de conception

La fiabilité d'un modèle est aussi fonction des hypothèses sur lequel il est construit. Ce sont alors les concepts mêmes du modèle qui peuvent être en cause. Les hypothèses de conception du modèle, comme les techniques analytiques sur lesquelles les mesures de terrain sont basées, reflètent les connaissances scientifiques dont on dispose au moment de l'élaboration d'un modèle. Elles permettent toutefois d'expliquer certaines observations et de prévoir l'évolution de processus dans la mesure où on reste dans le domaine de validité des hypothèses utilisées.

Deux types d'hypothèses, parmi d'autres, qui limitent l'applicabilité du modèle de charges critiques sont décrites ici. Leur effet n'est pas quantifiable mais il est essentiel de connaître leur existence.

9.2.1 La notion d'équilibre

Il a été vu plus haut que la notion de charge critique était basée sur une représentation des écosystèmes à l'équilibre. Or les forêts européennes ne sont pas à l'équilibre, car leur maturité évolue avec le temps et influe naturellement sur les caractéristiques du sol, y compris sur son acidité. L'histoire, les techniques d'exploitation présentes et passées influent aussi sur la qualité actuelle du sol. À l'échelle de temps sur laquelle on souhaite faire des prévisions, c'est-à-dire la décennie et au-delà, la notion de système à l'équilibre n'est donc qu'une description simpliste des sols, des forêts et des eaux de surface.

Une des conséquences de cette simplification entre le modèle et la réalité est le manque de concordance entre les prévisions des charges critiques et les effets attendus sur le terrain : 82 % des forêts nordiques ont été soumises à des dépôts de substances acidifiantes supérieures aux charges critiques mais on n'a pas observé de défoliation de cette ampleur (Løkke *et al.*, 1996).

Ce que nous disent les modèles à l'équilibre, c'est que les pressions auxquelles les forêts et les eaux de surface sont soumises sont incompatibles avec leur bon fonctionnement sur le long terme. Il est probable que les dégâts qui ne sont pas encore observés arriveront si les conditions représentées par les équations mathématiques ne changent pas. Le modèle à l'équilibre ne rend pas compte du temps nécessaire à la restauration du système, il indique seulement si cette restauration est possible. En l'absence d'informations plus précises, il est évident que celle-ci reste très utile.

Le modèle à l'équilibre est une représentation adéquate tant que les processus qui contrôlent les paramètres qu'on cherche à connaître se déroulent à une échelle de temps très rapide par rapport à la date pour laquelle on cherche à obtenir des prévisions. Dans l'état actuel des connaissances et des exigences que l'on a des modèles, il devient de plus en plus évident qu'il y a un certain nombre de processus (altération de la roche, recolonisation des espaces endommagés...) qui se déroulent à une échelle de temps voisine de celle que l'on souhaite pour les prévisions (dizaines d'années). Dans ces conditions, des modèles dynamiques doivent être utilisés.

L'avantage de la modélisation dynamique est qu'en principe elle intègre l'évolution dans le temps de tous les processus. Elle nous permet donc de nous affranchir des problèmes reliés à la notion d'équilibre. En pratique, elle nécessite une meilleure compréhension de tous les processus discutés ci-dessus et en intègre de nouveaux.

9.2.2 Le choix des critères biologiques et chimiques

Les résultats d'un modèle dépendent aussi de l'objectif que l'on s'est donné : les charges et les concentrations critiques seront différentes selon que l'on cherche à atteindre la restauration d'un écosystème ou que l'on décide de ne pas l'endommager davantage. De même, les charges critiques pour la production de bois ne seront pas les mêmes que celles qui protégeront une forêt de l'eutrophisation (les dernières étant probablement beaucoup plus strictes).

Cela pose la question du choix du critère biologique. La profusion d'indices de biodiversité, d'acidité, de valeurs choisies pour les concentrations en aluminium, en azote ou en cations basiques indique bien qu'il n'y a pas consensus (voir Tableau 7-2 et Tableau 7-3). Si nous faisons le choix d'un « mauvais » critère parce que nos connaissances et notre compréhension des processus sont incomplètes, les résultats du modèle seront également « mauvais ».

Le choix des critères sera d'autant plus pertinent que notre compréhension des écosystèmes représentés sera approfondie et les résultats des modèles seront d'autant moins incertains.

9.3 Connaissances insuffisantes des processus pris en compte

Dans le cas des charges critiques, on cherche à représenter relativement simplement un système que l'on a du mal à appréhender dans son ensemble et dans toute sa complexité. Alors que la demande de précision grandit, il devient difficile de décider a priori quels sont les processus importants à prendre en compte et quels sont ceux qu'on peut négliger. Cette problématique rejoint celle discutée pour les critères biologiques et chimiques.

Une fois que les bonnes hypothèses de travail ont été établies, que les bonnes équations ont été écrites, le modèle est prêt à être utilisé. Il est alors nécessaire de décrire mathématiquement et de quantifier les processus que l'on a jugés importants. Nous sommes malheureusement confrontés ici encore à notre compréhension imparfaite du milieu naturel.

Si on estime qu'un processus donné doit être pris en compte, il faut encore pouvoir le mesurer en laboratoire ou sur le terrain. On peut alors se heurter aux limites de la chimie analytique, des connaissances en écotoxicologie ou en biologie. C'est le cas pour les exemples de processus discutés ci-dessous qui nourrissent des polémiques au sein de la communauté scientifique.

9.3.1 L'aluminium

Il y a plusieurs aspects dans les discussions sur l'aluminium. D'abord, sa toxicité pour les plantes a été établie en laboratoire sur de jeunes plants d'arbres et la transposition de ces résultats en milieu naturel est délicate car tous les organismes normalement présents dans les sols (en particulier les champignons mycorhiziens) ne sont pas présents dans ce type de cultures. C'est un problème classique de l'écotoxicologie.

Ensuite, s'il est admis qu'à certaines concentrations, l'aluminium devient toxique, il n'est pas encore établi quelle est la forme chimique de ce métal qui est toxique. En effet, comme de nombreux autres métaux, l'aluminium est naturellement présent sous forme ionisée libre (Al^{3+}), sous forme métallique non ionisée (Al), sous forme ionisée associée avec d'autres molécules inorganiques telles que OH⁻ et tous les anions basiques, ou encore sous forme complexée par la matière organique présente. Toutes ces formes sont présentes dès lors que les composés sont présents dans le milieu. On ne peut calculer les concentrations de chaque que si on admet qu'elles sont en équilibre thermodynamique et que l'on connaît les constantes d'équilibre pour chacune des réactions. Dans la mesure où ces équilibres sont fonction de la température, du pH, de la teneur en eau ..., on n'a en pratique ni l'équilibre thermodynamique ni une connaissance précise de la plupart des constantes.

On se contente donc d'approximations. La principale étant de dire que l'équilibre de l'aluminium observé dans les sols est identique à celui de la dissolution du gibbsite. Cette hypothèse a été choisie car on connaît les constantes d'équilibre qui la régissent mais le gibbsite est un minéral qui n'est pas présent dans les sols des régions tempérées. Pour contourner ce problème, les constantes d'équilibres sont calibrées pour chaque type de sol. Cela est cependant difficilement faisable si on cherche à réaliser des calculs à l'échelle du pays ou de l'Europe. En outre, il devient de plus en plus clair que les réactions d'équilibre qui dominent la partition de l'aluminium dans le sol sont celles qui ont lieu avec la matière organique. Malheureusement, la « matière organique » est un milieu qui est lui-même complexe, dont les propriétés varient dans l'espace et dans le temps. Les constantes d'équilibre que l'on peut établir ne peuvent être qu'imprécises.

Enfin, la validité du critère « $BC/Al = 1$ » reste aussi à déterminer. Les controverses sur ce sujet (voir section 4.2) peuvent être reliées au fait qu'on ne connaît pas la fraction toxique de l'aluminium (Bélanger *et al.*, 2002b; Cosby *et al.*, 1985; Dambrine *et al.*, 1995a; De Wit *et al.*, 2001 ; Løkke *et al.*, 1996).

9.3.2 Processus secondaires ou pas ?

La liste des processus qui ne sont pas pris en compte dans les modèles de charges critiques est longue. Certains n'ont qu'un rôle mineur. Mais dans la mesure où des résultats de plus en plus précis doivent être obtenus, il faudra inclure dans les modèles nombre de processus qui ont été négligés jusqu'à présent. Parmi ceux qui sont le plus souvent cités on trouve :

- Le rôle de la matière organique pour la complexation des métaux, mais aussi des cations et pour leur pouvoir acidifiant.
- Les effets des paramètres environnementaux tels que le pH, la température ou l'humidité sur les différentes réactions décrites par le modèle.
- La quantification des différentes étapes du cycle de l'azote.
- L'historique de l'utilisation des sols.
- Les compétitions entre les plantes et entre les différents stress possibles (composés azotés, acidité, stress hydrique).
- L'export des éléments nutritifs lors des récoltes.
- Les effets des différentes formes de l'azote (NH_3 vs. NO_3^-) sur les écosystèmes.
- La rétention des sulfates et des nitrates par les sols.

9.4 Qualité des données

Un certain nombre de paramètres qui doivent être évalués ou mesurés sur le terrain ont une influence évidente sur la qualité des résultats du modèle. Il est donc nécessaire d'améliorer les techniques analytiques qui leur correspondent. Dans ce cadre, les études d'intercalibration entre laboratoires sont d'un grand recours. Celles du PIC Eaux ont montré que pour des paramètres qui paraissent être « de base », tel le pH, différentes équipes obtenaient des résultats significativement différents. Lorsqu'il existe plusieurs techniques comme c'est le cas pour la mesure de la CEC, une harmonisation est hautement souhaitable. Cela peut éviter des biais entre les pays.

Un des paramètres auquel le calcul des charges critiques est très sensible est l'altération des roches (Hettelingh et Posch, 1997). Ce paramètre est habituellement calculé et non expérimentalement mesuré. Les méthodologies qui permettent ce calcul sont toutefois fortement entachées d'incertitude (Hodson et Langan, 1999). Sept méthodes sont préconisées par la convention UNECE. Plusieurs ont été établies en utilisant un seul jeu de données (suédoises). La profondeur du sol à laquelle l'altération est calculée varie entre 0,5 et 1 m selon les méthodes (sans justification parfois). Ce n'est pas parce qu'une méthode est plus complexe qu'elle donne un résultat plus précis. Celle qui est basée sur le modèle numérique PROFILE produit un taux d'altération à l'équilibre tandis que les autres calculent des taux d'altération présents ou moyennés dans le temps. Peu d'efforts semblent avoir été appliqués à l'amélioration de méthodes qui ont été développées dans les années 90-95 essentiellement pour des sols peu profonds de l'Europe du Nord. Hodson et Langan (1999) concluent que le calcul des taux d'altération est une variable environnementale qui « au mieux, est à la fois spéculative et hautement incertaine ».

Le LMTG de l'Université de Toulouse s'est efforcé de préciser les calculs de l'altération : cette équipe a étudié en détail un site vosgien où le sol atteint une profondeur de 9 m et où la roche mère sous-jacente est fracturée. Les couches profondes de ces sols sont des sources de cations basiques qui peuvent être prises en compte dans le calcul d'altération du modèle WiTCh. C'est un des principaux avantages de WiTCh par rapport aux autres modèles utilisés dans le cadre de la Convention UNECE.

Un effort de mise à disposition des données existe et est très profitable pour tous les exercices de modélisation. Il facilite les calibrations successives des modèles et leur précision est augmentée. Toutefois certaines régions en Europe restent sous échantillonnées et quelle que soit l'ambition des bases de données, les études sur le terrain et en laboratoire sont nécessaires à une meilleure compréhension des processus décrits plus haut.

PARTIE C : LES CHARGES CRITIQUES EN FRANCE

10 OBSERVATIONS EN FRANCE

10.1 Suivis et recherches

La connaissance de l'état des sols et des eaux sur le territoire français est obtenue grâce à des études de terrain ponctuelles et locales et à des réseaux d'observations qui se sont développés depuis une vingtaine d'années. Parmi ceux qui apportent le plus d'informations utiles à l'étude de l'acidification et de l'eutrophisation citons :

- le réseau RENECOFOR (Réseau National de suivi à long terme des ÉCOsystèmes FORestiers) qui s'inscrit dans le réseau européen de suivi des dommages forestiers. Le réseau RENECOFOR a été créé en 1992 par l'Office National des Forêts pour un suivi initial de 30 ans sur 102 placettes. Celles-ci ont été choisies pour représenter l'ensemble des écosystèmes forestiers français, à l'exclusion de milieux spécifiquement méditerranéens. Financé par l'Union Européenne, l'ONF, le ministère chargé de l'agriculture et par l'ADEME, ce réseau a pour buts d'obtenir des informations approfondies sur l'évolution de certains écosystèmes forestiers, de chercher à établir des corrélations entre la variation des facteurs environnementaux et la réaction des écosystèmes, de déterminer les niveaux de charges critiques en polluants susceptibles de déstabiliser un type donné d'écosystème forestier et de permettre de mieux interpréter les résultats des réseaux systématiques comme le réseau européen (1996).
 ⇒ le sous réseau CATAENAT (Charge Acide Totale sur les Écosystèmes Naturels Terrestres) au sein duquel les dépôts atmosphériques totaux sont mesurés depuis 1993 en plein champ et sous couvert forestier sur 27 des 102 placettes du réseau RENECOFOR. La solution du sol est analysée sur 16 de ces placettes et les dépôts humides sur 8. Les premières mesures de ce sous-réseau datent de 1993.
- la base de données de l'Inventaire Forestier National (IFN) qui est un établissement public à caractère administratif et qui a pour objectifs premiers l'estimation de l'occupation du sol et l'estimation de la ressource de bois sur pied. Depuis 1992, des relevés floristiques sont réalisés sur l'ensemble du territoire. Des cycles de mesures de périodicité de 10 à 12 ans sont prévus jusqu'en 2016. Dans ce cadre, le but est d'identifier et de caractériser l'évolution de la flore sur le territoire français.
- Le Réseau français de Mesure de la Qualité des Sols (RMQS) dont la mise en place est récente. Coordonné par l'Unité Infosol de l'INRA d'Orléans et financé par les Ministères chargés de l'Environnement et de l'Agriculture, l'ADEME, l'IFEN, ce réseau s'inscrit dans le cadre du réseau EINOT de l'Agence Européenne de l'Environnement. Il prévoit le suivi d'environ 2000 points répartis uniformément sur le territoire français, selon une maille carrée de 16 km de côté (calée sur le réseau européen). Des prélèvements auront lieu à échéances régulières (initialement prévues tous les 5 ans), une base de données sera couplée à un SIG et une pédothèque sera constituée.

- Le réseau de mesures atmosphériques MERA (MEsure des Retombées Atmosphériques) a été mis en place à partir de 1990 par le Ministère chargé de l'environnement et l'ADEME et est coordonné par l'École des Mines de Douai. La mise en place de ce réseau répond aux engagements pris par la France dans le cadre de la convention de Genève sur le transport des polluants à longue distance. Il a pour but l'évaluation quantitative des retombées atmosphériques mais aussi l'étude du transport des polluants d'une région à l'autre, en mettant en parallèle les résultats des mesures des différents pays. Les dix stations de ce réseau sont situées en milieu rural. La composition physico-chimique des pluies (acidité) et pollution photochimique (ozone) y sont mesurées.

Grâce aux premiers résultats de ces réseaux, on commence à identifier quelques tendances spatiales et temporelles dans l'évolution des sites forestiers. La compilation de résultats sur de longues périodes permettra aussi de fournir les données nécessaires aux modèles dynamiques qui se développent.

Un certain nombre de programmes de recherche de moindre ampleur permettent de compléter les informations acquises par les réseaux cités ci-dessus. À l'échelle de la France, les efforts de l'équipe du LMTG de l'Université de Toulouse et de JP Party ont été et restent essentiels pour la production de cartes de charges critiques qui sont transmises au PIC cartographie de la Convention UNECE sur la pollution transfrontière. Le site internet mis au point par le LMTG⁹ donne des informations détaillées sur les charges critiques et leur cartographie.

À une échelle spatiale plus réduite, des études d'équipes de l'INRA, de l'ONF et d'un petit nombre d'universités s'attachent à élucider des questions posées par les autorités locales ou à comprendre des processus spécifiques. En quelque sorte, elles donnent des informations sur le détail dans lequel les grands réseaux français ou européens ne peuvent pas aller et développent les bases scientifiques de ces derniers.

Lors de la rédaction de ce rapport, il est apparu que la vaste majorité des études réalisées sur l'acidification et l'eutrophisation en France et dont les résultats ont été publiés concernent les milieux forestiers. Peu ou pas d'études semblent avoir été publiées sur d'autres types de milieux tels que prairies, landes alpines ou zones humides. Les résultats présentés ici reflètent cet état de fait. Des études faites dans d'autres pays européens soulignent toutefois la fragilité des autres écosystèmes face à l'eutrophisation et à l'acidification. Les forêts méditerranéennes semblent elles aussi avoir peu fait l'objet d'études reliées aux dépôts atmosphériques. Ceci s'explique car elles poussent essentiellement sur des sols calcaires, à fort pouvoir tampon, sur lesquels il est peu probable d'observer une acidification (Badeau et Ulrich, 1998). Cela n'exclut toutefois pas une potentielle eutrophisation de ces milieux.

10.2 La forêt en France

Les forêts recouvraient 10 % de la superficie de la France au XIX^{ème} siècle contre 26 % aujourd'hui, ce qui représente 14,6 millions d'hectares (valeurs de 1991). L'augmentation de la productivité des forêts françaises s'est faite à un rythme de 10 % tous les 10 ans depuis 1981 suite à l'arrivée à maturation de forêts plantées entre 1950 et 1980 et au remplacement d'espèces peu productives par d'autres qui le sont davantage (Pignard, 2000).

⁹ <http://www.lmtg.obs-mip.fr/user/cc>

L'histoire des forêts françaises et celle de l'occupation des sols en France ont fait qu'à l'heure actuelle, la moitié des forêts en France poussent sur des sols acides ($\text{pH} < 5$) et un tiers sur des sols plus ou moins désaturés en cations (taux de saturation $< 50\%$) (Augusto *et al.*, 2000b). Les sols forestiers se distinguent aussi par un rapport C/N élevé (Badeau *et al.*, 1999). Ceci s'explique principalement par trois raisons : les sols les plus fertiles sont traditionnellement gardés pour l'agriculture ; l'exploitation forestière permet l'incorporation des litières acides dans les sols ; enfin sauf dans quelques cas particulier de lutte contre l'acidification, l'exploitation n'inclut pas de processus de fertilisation ou d'amendement qui maintiennent les fortes teneurs en azote et les taux de saturation élevés présents dans les sols agricoles (Badeau *et al.*, 1999).

Les résultats du réseau RENECOFOR (102 placettes) donnent une image des sols français plus acide et plus désaturée que les résultats du réseau européen qui comprend 540 placettes en France. Ceci est dû à la stratégie qui a sous-tendu le choix des placettes RENECOFOR : d'une part les formations végétales complexes ou à caractère économique peu intéressant ont été écartées. D'autre part, la nécessité de trouver des placettes dans des forêts publiques a peut être aussi apporté un biais. Il en résulte que les forêts poussant sur des sols calcaires sont sous représentées mais que les écosystèmes les plus fragiles (sur sols acides et désaturés) vis-à-vis de l'acidification pourront être bien étudiés (Badeau et Ulrich, 1998).

10.3 Acidification ou changements climatiques ?

Dans les années 70 - 80, d'importants phénomènes de jaunissement des feuilles des arbres ont été observés en France, comme ailleurs en Europe, et ont alerté les professionnels et le public sur la fragilité des écosystèmes forestiers. Initialement, les dépôts atmosphériques acidifiants (soufre et azote) ont été désignés comme coupables. Des études ont été engagées pour vérifier ou infirmer cette hypothèse. En France, le programme de recherche multidisciplinaire DEFORPA a commencé en 1984. Parmi de multiples travaux, une de ses tâches a été d'évaluer les causes du jaunissement des feuilles des arbres.

A la fin de ce programme d'étude en 1991, il était établi que les concentrations de soufre dans l'atmosphère étaient en général trop faibles pour engendrer directement le jaunissement des feuilles des arbres sur la vingtaine de sites étudiés et répartis sur toute la France (Dambrine *et al.*, 1995c).

En revanche, les déficiences de minéraux, conséquences du lessivage des sols suite aux dépôts de substances acidifiantes, ont été clairement identifiées comme la cause du jaunissement des feuilles dans certaines régions. Le magnésium et le calcium ont tendance à manquer sur des sols acides (Vosges, Ardennes) et le potassium sur des sols riches en cations bivalents (Jura, le nord des Alpes, certaines zones du Massif Central, les Pyrénées, Landmann *et al.*, 1995).

Le programme DEFORPA a montré que d'autres facteurs, comme des pratiques sylvicoles inadaptées, ont également conduit à des carences en cations basiques. Ce fut le cas dans les Vosges et les Ardennes, où des épicéas ont été plantés à la place de forêts de hêtres dont les sols avaient été appauvris pendant les siècles précédents par des récoltes intensives de bois et de litière et par le pâturage des sous bois (Landmann, 1995). Dans les Vosges, c'est une absence d'éclaircies des forêts pendant les périodes de stress hydrique qui aurait été à l'origine de jaunissement des feuilles du sapin blanc (Becker *et al.*, 1995).

Enfin, il est aujourd'hui démontré que les changements climatiques ont aussi une influence potentielle sur la santé des forêts. Les phénomènes inclus sous le terme de changement climatique sont multiples (augmentation du gaz carbonique, de la température, de la

fréquence des sécheresses et des inondations) et ont des conséquences variées et parfois opposées. Par exemple, selon Veselý *et al.* (2003), une baisse d'environ 10 % des concentrations d'aluminium dans les lacs tchèques s'explique par l'augmentation de la température moyenne annuelle car l'aluminium est d'autant moins soluble que la température augmente. De plus, une augmentation de la température augmente le taux de matière organique dans les eaux de surface. Il s'ensuit une plus forte complexation des métaux et donc de l'aluminium, ce qui en limite le pouvoir acidifiant. Toutefois, la matière organique tend à acidifier le milieu autour d'un pH de 5, c'est-à-dire à un niveau déjà toxique pour la flore et la faune.

L'alternance accrue d'épisodes de sécheresse et d'inondation pourrait générer de plus nombreux épisodes d'intense acidification après les sécheresses. Cela peut être causé par le lessivage des particules acidifiantes déposées à la surface des plantes et par la redissolution du soufre piégé dans les sédiments. En effet, tant que les sédiments sont couverts d'eau, ils restent anoxiques (sans oxygène) et réducteurs. Le soufre s'y trouve réduit et immobilisé sur les particules. Lorsque les sédiments sèchent, l'oxygène y circule davantage et le soufre est oxydé en sulfate, sa forme acidifiante. À la première inondation, il est dissout dans l'eau du sol et est lessivé vers les cours d'eau qu'il acidifie (Skjelkvåle, 2003).

Les périodes de sécheresse ont aussi un effet plus direct sur la santé des arbres. Ainsi, selon Dambrine *et al.* (1995b), la sensibilité des épicéas aux déficiences en magnésium est exacerbée par des sécheresses.

Il est à noter que les jaunissements des feuilles se sont produits alors que la productivité des forêts augmentait. Cette augmentation a été reliée à celle des dépôts d'azote, de la concentration en dioxyde de carbone et de la température (Bonneau et Landmann, 1993). Il y a donc là deux phénomènes qui peuvent sembler paradoxaux mais qui sont simultanés : certaines forêts poussent actuellement davantage bien qu'elles soient relativement en mauvaise santé.

10.4 Les conséquences d'un siècle de dépôts acides

10.4.1 Observations

Les facteurs identifiés au paragraphe précédent ne doivent toutefois pas être invoqués pour minimiser l'effet des dépôts acides sur les écosystèmes.

Entre 1970 et 1991, on a observé une baisse significative des taux de Ca et Mg échangeables et des rapports C/N, excepté pour l'horizon de surface, des sols de hêtraies des Vosges (Dambrine *et al.*, 1998b).

Les résultats du réseau RENECOFOR montrent que les dépôts de soufre ont diminué entre 1993 et 2002 (Ulrich *et al.*, en préparation). En dépit de cette baisse, le soufre est toujours estimé être un élément perturbant le fonctionnement chimique et biologique des sols (Cecchini, 2000a).

En 1998, un bilan des études des forêts du Nord-Est de la France montre que les réserves en cations basiques sont en baisse, avec des zones où en 30 ans les taux de saturation du sol ont baissé de plus de 60 %. Les teneurs en azote, d'origine atmosphérique, ont augmenté mais le pH des sols est resté stable (Dambrine *et al.*, 1998b; Dupouey *et al.*, 1998). C'est grâce à la baisse des dépôts soufrés que le pH ne diminue plus mais à cause des dépôts azotés qui restent élevés simultanément à une augmentation de CO₂ dans l'atmosphère, le développement de la flore est favorisé. Il en résulte que le taux de

croissance des arbres augmente en même temps que baissent les réserves en cations du sol, une situation qui n'est pas « durable » (INRA, 2002a, b).

La distribution de l'aluminium dans le sol change aussi avec le taux d'acidification. Si Probst *et al.* (1995) n'ont pas constaté de lessivage de ce métal acidifiant dans le bassin versant d'Aubure (Vosges), ils l'ont mesuré en fortes concentrations dans les horizons profonds.

L'effet des parasites est d'autant plus vigoureux que les arbres sont déjà affaiblis par d'autres causes de stress. Ainsi certains champignons délétères qui ont été observés dans des plantations d'épicéas dans les Vosges semblent apparaître lorsque le sol est acide. Ils pourraient affecter les fonctions racinaires des arbres (Devêvre *et al.*, 1995).

Selon Bonneau *et al.* (2000), l'acidification que nous observons de nos jours est la conséquence du cumul des apports depuis plusieurs décennies. Ceux-ci ont causé l'acidification des horizons minéraux dont la forte teneur en aluminium échangeable ne permet plus de récupérer les cations basiques (calcium et magnésium) venant de la minéralisation des couches organiques en surface. Ce phénomène inquiète les gestionnaires forestiers qui ont bien compris que le sol est une ressource non renouvelable (Ranger *et al.*, 2000). Il n'y a pas eu de cataclysme écologique à la suite des forts dépôts atmosphériques de soufre des années 70 et 80, mais nos forêts ne sont pas à l'abri de carence en éléments minéraux dans les années à venir (Dupouey *et al.*, 1998 ; Duquesnay *et al.*, 2000 ; Landmann, 2002).

Dans les années 90, l'acidification des sols et des cours d'eau a été clairement établie dans les Vosges, les Ardennes, le Massif Central et l'Aquitaine (Landmann, 1996 ; 1997). Une étude lancée en 1995 dans les Vosges montre que sur 400 ruisseaux échantillonnés dans des zones identifiées comme étant à risque dans les Vosges, près de 90 % présentaient des signes de dégradation liés à l'acidification du milieu. Cela conduit à une perte de ressources en eau potable et a des coûts économiques et environnementaux importants. Ainsi, il y a quelques années, une commune a dû renoncer à un captage d'eau potable à cause de la forte acidité de la nappe phréatique. La construction de ce captage lui avait toutefois déjà coûté quelques millions d'euros... De plus, lorsque les réseaux de distribution des eaux potables sont encore en plomb, l'acidification des eaux de distribution peut conduire à des risques sanitaires liés au saturnisme, comme on en a encore observé dans les années 1990 dans certaines communes des départements de Meurthe et Moselle et des Vosges. Il a été montré que la diminution du pH de l'eau d'une unité (observée entre les années 1960 et 1990) pouvait entraîner une multiplication des teneurs en plomb par un facteur de 8 ou 10 pour l'eau consommée dans la journée (Dambrine *et al.*, 1999). Enfin, l'eau potable est d'ores et déjà obtenue d'un nombre de plus en plus restreint de ruisseaux. En aval des captages, les flux diminuent jusqu'à poser un problème pour la survie des écosystèmes aquatiques.

Le problème est international : diverses études montrent que les problèmes d'acidification persistent ou apparaissent dans le reste de l'Europe ou du monde : en Norvège, les apports acidifiants naturels et anthropiques dépassent le pouvoir tampon du sol d'après l'étude de (Kvaalen *et al.*, 2002). L'étude de Moldan *et al.* (2004) montre que malgré des baisses attendues des dépôts azotés et soufrés supérieures à 50 et 65 % entre 1990 et 2010, l'acidification des sols suédois ne cessera pas d'ici 2010 : l'ANC remonte mais les cations basiques continuent à être lessivés. Les calculs de charges critiques sur la Suisse suggèrent que les charges critiques sont dépassées sur tous les bassins versants étudiés et sur 63 % des forêts (Rihm, 1994). Des études récentes sur 55 lacs alpins italiens suggèrent que 90 % d'entre eux ont une alcalinité inférieure à 20 méq l⁻¹ ce qui les rend très sensibles aux

apports atmosphériques acidifiants (Brini et Bonanni, 1999). À l'échelle mondiale, diverses études suggèrent que l'Amérique du sud, l'Afrique et l'Asie sont aussi des zones où l'acidification et l'eutrophisation représentent des risques importants (Bouwman *et al.*, 2002 ; Kuylenstierna *et al.*, 2001; Rodhe *et al.*, 2002).

Au Québec, Bélanger *et al.* (2002b) craignent que l'accumulation de dépôts acides ait déjà atteint la limite au-delà de laquelle il faudra plusieurs siècles pour que les écosystèmes puissent être restaurés. Selon Stoddard *et al.* (1999), il est possible que certains sols aient perdu leur réserve de cations basiques par le lessivage résultant d'années de dépôts acides. Les eaux de surface dont les bassins versants ne contiennent plus de cations basiques ne peuvent, même si les dépôts acides sont stoppés, se restaurer, leur alcalinité restant trop faible.

10.4.2 Charges critiques acidifiantes

Les résultats du sous-réseau de surveillance CATAENAT au sein du réseau RENECOFOR combinés aux mesures de pluviométrie de Météo France permettent de construire des cartes de la répartition géographique des dépôts de soufre, d'azote et de cations basiques en France sur une grille de 15 km par 15 km. Les résultats statistiques de cette étude sont donnés dans le Tableau 10-1 de façon à pouvoir les comparer aux résultats des travaux de Party sur les charges critiques acidifiantes.

*Tableau 10-1 : Statistiques des dépôts acidifiants et eutrophisants en France selon les résultats du sous-réseau CATAENAT pondérés par la pluviosité (Croise *et al.*, 2002). Les mêmes dépôts sont donnés avec les deux unités le plus généralement utilisées pour faciliter les comparaisons.*

Substances	Moyenne sur la France	Gamme de dépôts	Moyenne sur la France	Gamme de dépôts
	kg ha ⁻¹ an ⁻¹		kéq ha ⁻¹ an ⁻¹	
Sulfate	5,8	3,3 - 12,0	0,36	0,21 - 0,75
Azote total minéral	7,8	3,4 - 12,4	0,56	0,24 - 0,89
Nitrate	3,1	1,6 - 5,3	0,22	0,11 - 0,38
Ammonium	4,6	1,8 - 7,1	0,33	0,13 - 0,51

En France sur 60 % du territoire, les charges critiques pour les forêts sont supérieures à 2 kéq ha⁻¹ an⁻¹ et elles sont inférieures à 0,5 kéq ha⁻¹ an⁻¹ sur moins de 10 % du territoire.

Les cinq groupes de sols français dont les charges critiques d'acidité ont les plus faibles valeurs (< 0,5 kéq ha⁻¹ an⁻¹) sont (Party *et al.*, 2001b) :

1. Les sols bruns acides et podzolisés sur grès et granites acides, notamment dans les Vosges ;
2. Les sols bruns acides (plus rarement podzolisés) des granites les plus acides du Massif Central ;
3. Les sols bruns acides (parfois podzolisés) des granites et surtout des schistes de l'Ouest de la France (Vendée, Bretagne, Normandie) ;
4. Les sols bruns acides des schistes acides des Ardennes ;

5. Les sols bruns acides, lessivés et podzolisés des sables des Landes et des formations résiduelles à silex des vallées de la Loire et de la Seine, le groupe le plus sensible puisque sa charge critique est inférieure à $0,2 \text{ kéq ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$.

Les ensembles régionaux où les dépôts atmosphériques acidifiants (soufre + azote) dépassent ou sont proches des charges critiques sont (Party *et al.*, 2001b) :

- Les Ardennes ;
- Les Vosges, l'Alsace et la Moselle ;
- Le sud-ouest de l'Ile de France (Yvelines, Fontainebleau) et plus ponctuellement la Champagne ;
- La vallée de la Loire et plus ponctuellement la vallée de la Seine ;
- Le rebord est du Massif Central et plus ponctuellement son rebord ouest (Limousin, Haute Vienne) ;
- Les Landes de Gascogne ;
- La Bretagne et la Normandie ;
- Et dans une moindre mesure, très ponctuellement, les Pyrénées.

Il n'y a pas eu de vérification sur le terrain pour évaluer la correspondance entre ces prédictions et les cas avérés d'acidification (Party *et al.*, 2001b). Mais une étude de Robert (2001) confirme que les sols des Landes et des massifs cristallins ont des charges critiques faibles.

10.5 Écosystèmes terrestres français gravement eutrophisés ?

L'eutrophisation se manifeste sous diverses formes à travers le territoire français ainsi que le montrent plusieurs études.

Les données de l'IFN indiquent que dans les Ardennes, les espèces nitrophiles et héliophiles progressent, que de plus en plus d'espèces typiques des milieux ouverts apparaissent aux dépens de celles des forêts anciennes et que les espèces à caractères atlantiques se retrouvent là où il y a quelques années se trouvaient des espèces continentales. Ces résultats peuvent s'expliquer par les changements climatiques observés, par une évolution des techniques sylvicoles employées sur le site étudié ou par des dépôts d'azote accrus par la pollution atmosphérique (Cluzeau *et al.*, 2001). Il est probable que c'est la combinaison de ces trois familles de processus qui a modelé la forêt des Ardennes étudiée.

Suite à une étude sur le chêne pubescent en milieu méditerranéen, Rathgeber *et al.* (1999) ont conclu que les dépôts atmosphériques d'azote étaient en partie responsables de l'augmentation de la productivité des chênes dans le sud est de la France.

Sur les sols acides d'une forêt lorraine, l'eutrophisation est apparue simultanément aux processus d'acidification (Thimonier *et al.*, 1994). Sur ce site, les charges critiques acidifiantes étaient de l'ordre de 2 à 4 $\text{kéq ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ tandis que les charges critiques eutrophisantes étaient de l'ordre de 1,1 à 1,4 $\text{kéq ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, c'est-à-dire 2 à 4 fois moins que la charge critique d'acidité (qui comprend en plus de celui de l'azote l'effet des composés soufrés). Ces valeurs sont dans les gammes proposées par le CCE et sont reproduites dans le Tableau 7-3.

Un travail de cartographie important a été réalisé en France pour l'azote eutrophisant par l'équipe du LMTG de l'Université de Toulouse. Ce travail a été fait en prenant pour parti pris de valider les hypothèses nécessaires aux calculs des charges critiques pour les conditions rencontrées en France. Il a nécessité l'élaboration progressive de cartes de végétation, de la géologie, de l'altération des minéraux du sol à des échelles compatibles avec l'approche européenne orchestrée par EMEP (voir par exemple (Février *et al.*, 1999 ; Party *et al.*, 1997 ; Party *et al.*, 2001a ; 2001b ; Probst *et al.*, 2002). Ces auteurs ont ensuite évalué les charges critiques empiriques pour chaque type de végétation. Parallèlement, ils ont calculé les charges critiques par la méthode SSMB. Ce travail permet de comparer les résultats obtenus par la méthode empirique des charges critiques et par la méthode SSMB. Les pourcentages de territoire couvert par chaque gamme de charges critiques pour chacune des méthodes sont donnés dans le Tableau 10-2. La méthode SSMB donne une image plus inquiétante de l'état du territoire français puisqu'elle suggère que partout dans le pays les charges critiques sont en dessous de 1 kéq N ha⁻¹ an⁻¹. Toutefois, il faut tenir compte de l'incertitude dans les calculs et signaler que les hypothèses choisies lors des calculs ont été conservatives.

Ces gammes de charges critiques sont faibles, ce qui suggère que les écosystèmes français ont une faible tolérance par rapport aux apports d'azote eutrophisant. Sur chaque maille couvrant la France, les dépôts hors couverts (calculés par EMEP pour 1995) sont supérieurs aux charges critiques calculées par la méthode SSMB (Party *et al.*, 2001a).

Les mesures du réseau RENECOFOR (Croisé *et al.* (2002) suggèrent que les dépôts d'azote hors couvert sur la majorité de la France sont compris entre 0,3 et 0,8 kéq N ha⁻¹ an⁻¹, avec des valeurs maximum de l'ordre de 1,2 kéq N ha⁻¹ an⁻¹. Les mesures du réseau RENECOFOR se situent donc généralement dans la partie inférieure de la gamme des charges critiques pour la France calculées par Party *et al.* (2001b). Les évaluations des dépassements des charges critiques d'azote eutrophisant sont moins fortes que celles obtenues avec les dépôts calculés par EMEP mais il y a toujours dépassement. L'eutrophisation semble donc être un problème généralisé en France.

Remarquons toutefois que ces calculs sont réalisés avec les dépôts d'azote hors couvert forestier, alors que ce qui affecte vraiment la végétation sont les dépôts sous couvert. Il n'y pas en France de mesures des retombées sous couvert, mais elles sont estimées de 20 à 50 % supérieures à celles mesurées hors couvert (Croisé *et al.*, 2002). Cela suggérerait que l'image de l'eutrophisation en France décrite ci-dessus serait sous estimée.

Tableau 10-2 : Pourcentages du territoire français couvert par différentes gammes de charges critiques pour l'azote eutrophisant obtenues par la méthode empirique et par la méthode SSMB. Les écosystèmes pris en compte comprennent des zones naturelles et semi-naturelles (forêts, prairies, landes, zones humides) (Party *et al.*, 2001a).

Méthode empirique		Méthode SSMB	
Gamme de charges critiques	% du territoire français couvert	Gamme de charges critiques	% du territoire français couvert
0,2 - 0,5 kéq N ha ⁻¹ an ⁻¹	20 %	0,2 - 0,5 kéq N ha ⁻¹ an ⁻¹	20 %
0,5 - 1,2 kéq N ha ⁻¹ an ⁻¹	60 %	0,5 - 1,0 kéq N ha ⁻¹ an ⁻¹	80 %
1,2 - 2,0 kéq N ha ⁻¹ an ⁻¹	20 %		

Les résultats des modèles suggèrent que pratiquement tous les écosystèmes européens sont sensibles à l'eutrophisation avec des charges critiques pour le dépôt d'azote inférieures à $0,4 \text{ kéq ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ (Hettelingh *et al.*, 2001). Si toutes les mesures du protocole de Göteborg sont appliquées, d'après les calculs de charges critiques présentés par Posch *et al.* (2001c), il restera de larges zones sensibles à l'eutrophisation en Europe et en particulier en France (Figure 10-1).

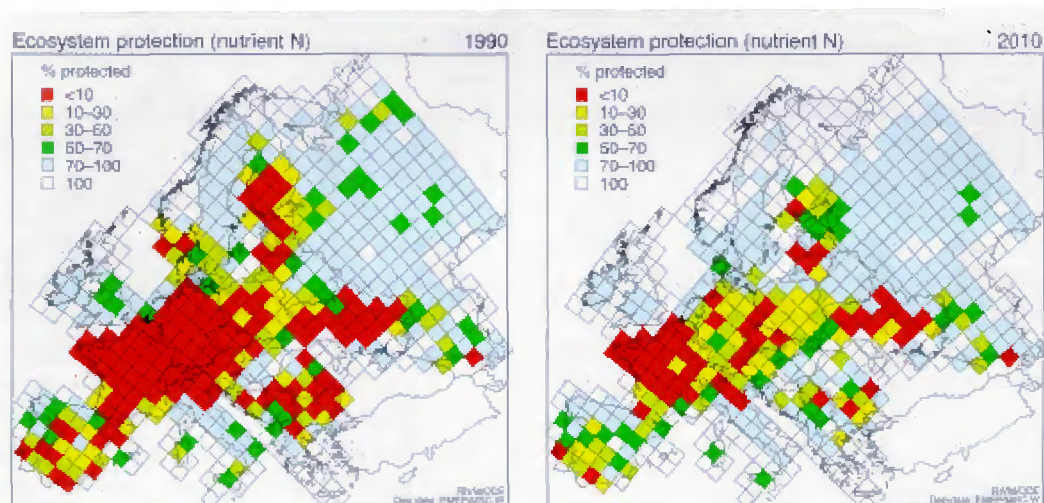


Figure 10-1 : Pourcentages d'écosystèmes où les charges critiques d'azote eutrophisant sont inférieures aux dépôts (donc d'écosystèmes « protégés ») en 1990 et en 2010 d'après les calculs du CCE sur l'Europe (Posch *et al.*, 2001b). Selon ces prévisions, la France est une des zones qui resterait la plus touchée par l'eutrophisation en Europe d'ici 2010.

11 ANNÉES À VENIR : PEUT-ON PARLER DE RESTAURATION ?

11.1 Quelques considérations générales

L'expression « restauration d'un écosystème » se comprend intuitivement comme le processus inverse de celui qui conduit à la détérioration du milieu. Une telle définition du terme n'est pas satisfaisante pour plusieurs raisons (Wright et Lie, 2002) :

- D'abord, il implique que l'on se fixe les conditions « initiales » existant avant l'acidification du milieu comme but à atteindre. Cela nécessite la connaissance de ces conditions ce qui n'est pas nécessairement aisé car les mesures et les études ont souvent débuté bien après que l'impact de l'acidification ait été ressenti. En l'absence de données historiques, on peut utiliser des conditions de référence basées sur la connaissance de la distribution des espèces dans une région non touchée par l'acidification ou des analyses paléologiques des sédiments.
- D'autre part, les systèmes biologiques changent avec le temps : les forêts et les étangs vieillissent, les conditions climatiques varient, sous l'influence des activités humaines ou pas. Le retour vers des conditions « initiales » n'est peut être pas possible, voire pas souhaitable. Il est donc sans doute nécessaire de considérer que la restauration n'est pas un retour vers l'état d'avant l'acidification ou l'eutrophisation mais un état dans lequel toutes les fonctionnalités du système ont été rétablies. Or, la description de toutes les fonctionnalités d'un écosystème se heurte à une insuffisance de connaissances.

Quand le but de la restauration peut être défini, il faut encore pour la décrire et la prévoir, en connaître les mécanismes. La recolonisation du milieu par des espèces qui ont été éliminées suite à l'acidification ou l'eutrophisation peut être lente et irrégulière. Elle dépend des caractéristiques des milieux (taille des lacs, hydrologie des rivières, nature du sol...) et des caractéristiques des espèces (de leur système de locomotion, de leur cycle de reproduction, de leur taille, de leurs proies...). Les périodes de froid, d'inondation, de sécheresse peuvent aussi ralentir la progression de la restauration ou créer des poches de recolonisation.

Il est toutefois possible, avec des mesures de gestion appropriées, d'accélérer les processus de restauration. Plusieurs expériences de chaulage ont eu des effets positifs sur l'acidification des sols en France. Si pour limiter l'eutrophisation, il est suffisant de réduire la quantité d'azote dans le système, on peut arracher ou brûler la végétation. Un pâturage contrôlé peut également aider à diminuer les quantités d'azote dans les écosystèmes. Le repeuplement des lacs et des rivières en poissons a aussi été largement utilisé avec plus ou moins de succès. Pour être efficace, ce type de mesures doit être adapté à chaque site.

La connaissance que l'on a actuellement de ces mécanismes, qu'ils soient naturels ou aidés par l'intervention des gestionnaires du milieu, est très empirique et basée sur des observations sur le terrain qui restent rares. Il n'y a pas encore de fondations théoriques solides et généralisables pour décrire ces processus. Il est donc difficile de prédire avec précision quand les écosystèmes seront restaurés. Certains experts restent donc sur leurs gardes et prédisent des restaurations sur des échelles de temps de l'ordre de plusieurs décennies (Figure 11-1).

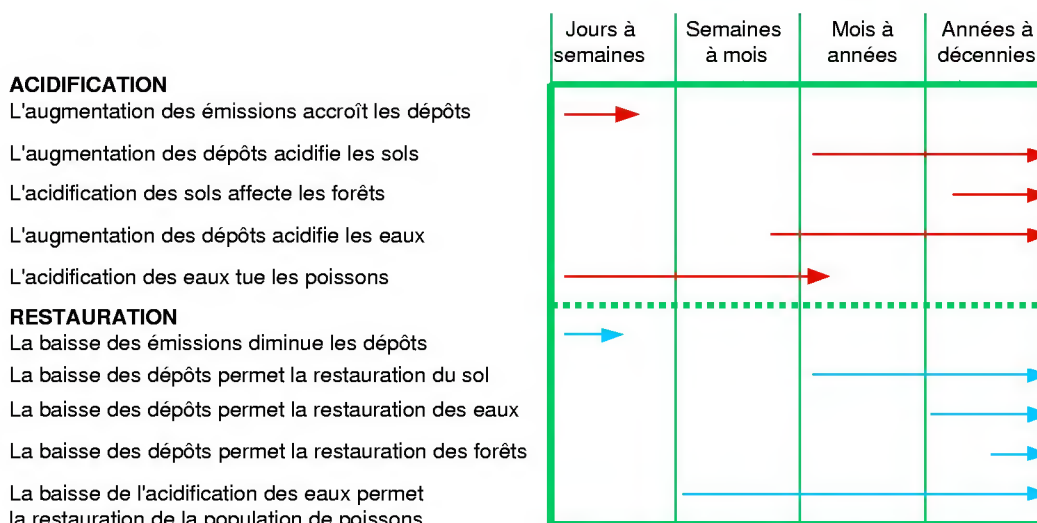


Figure 11-1 : Les échelles de temps de l'acidification et de la restauration (Galloway, 1995).

11.2 Le cas particulier de la France

Les craintes exprimées dans les années 70-80 ont généré des séries d'études qui ont permis de mieux comprendre les processus d'acidification. Il y a aussi eu une prise de conscience de l'importance de la gestion des sites forestiers. On sait aujourd'hui que le sol est un milieu fragile dont la nature est à prendre en compte lorsqu'on cherche à développer une exploitation forestière. Ces changements d'attitude combinés à l'application des recommandations du protocole de Göteborg permettent de prévoir une amélioration : si les modèles de prédiction sont corrects, la France en 2010 devrait être peu touchée par l'acidification. Cette amélioration est essentiellement la conséquence attendue et constatée des réductions d'émission de composés soufrés.

Toutefois, si la baisse des émissions de soufre a entraîné des augmentations de l'ANC et de pH, celles-ci ne sont pas aussi prononcées ni aussi systématiques que les baisses de concentrations de sulfate dans l'atmosphère auraient pu laisser espérer ou prévoir. Ceci peut être dû à trois raisons qui n'ont pas été prises en compte dans les prévisions : premièrement, l'effet tampon des sols, qui retiennent une partie des ions, anions acides ou cations basiques, ralentit les processus de restauration. Deuxièmement, la baisse des émissions de composés soufrés s'est accompagnée d'une baisse des émissions de cations basiques, qui jusqu'alors contrebalançaient en partie les effets des polluants acidifiants. Enfin il y a eu aussi une augmentation de la matière organique dissoute, ce qui est un facteur d'acidité.

In fine, dans l'est de la France, certains cours d'eau qui ont des sensibilités voisines de celles des forêts ne montrent pas de signes de restauration clairs. Leur pH et leur ANC sont de nouveau à la hausse mais leur conductivité et leurs concentrations en cations basiques sont toujours à la baisse. Ces milieux ne sont donc pas en voie de restauration.

D'autre part, les émissions de composés azotés oxydés n'ont pas autant baissé que celles des composés soufrés. Les émissions d'ammoniac sont restées stables ou sont toujours en hausse (Figure 11-2). Les effets de l'azote sont donc de plus en plus significatifs dans les phénomènes d'acidification. De plus, les prévisions prévoient qu'en 2010, plus de 90 % des écosystèmes seraient touchés par des problèmes d'eutrophisation (Bouchereau et Oudart, 2000). Ceci est la conséquence de la permanence de ces dépôts mais aussi du

recyclage rapide de l'azote au cours des saisons qui le maintient dans les écosystèmes. Ceci implique que les effets de l'eutrophisation risquent d'être très longs à inverser.

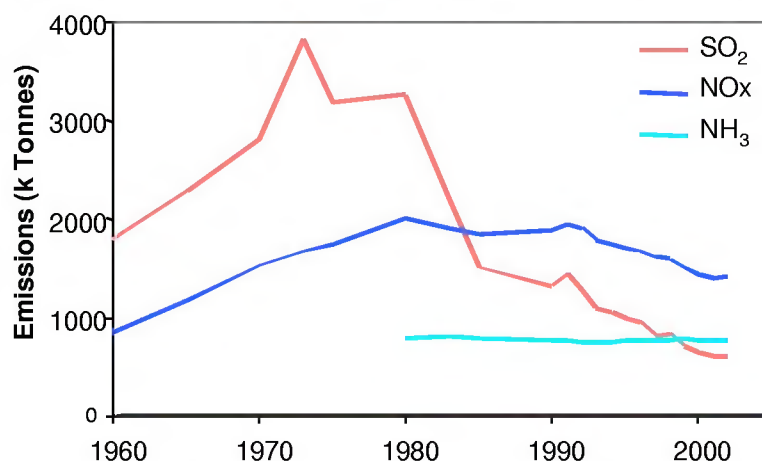


Figure 11-2 : Historique des émissions en France de dioxyde de soufre, de NO_x et d'ammoniac. Source CITEPA, 2003.

Il y a enfin des effets secondaires de l'acidification et de l'eutrophisation qu'il est à l'heure actuelle impossible d'évaluer : dans quelle mesure le développement de parasites est-il favorisé par l'augmentation des concentrations d'azote dans les plantes ? Quel sera l'effet des changements climatiques sur leur développement ? Quel sera l'effet des changements climatiques et des apports d'azote sur la biodiversité ? Faut-il tenir compte de cela quand on parle de restauration des écosystèmes ?

Ces questions peuvent trouver une partie de leurs réponses dans les résultats des modèles. Toutefois ceux-ci ne peuvent répondre qu'en fonction des connaissances imparfaites que nous avons des milieux. Celles-ci ne seront améliorées que si on continue à faire des mesures de terrain. En particulier, les questions relatives aux variations sur le long terme ne pourront trouver de réponses sans l'aide d'observations faites sur le long terme. Il est donc essentiel de préserver et de poursuivre les observations faites au moyen des réseaux de surveillance.

Ces réseaux ont plusieurs utilisations possibles : ils permettent une surveillance directe du milieu de façon à tirer les sonnettes d'alarme avant que les dégâts soient trop importants. Ils permettent d'améliorer les connaissances des processus approximatifs par les modèles et ceux qui ne sont pas (encore) pris en compte par manque de données. Ils permettent aussi de remplir des bases de données qui sont utilisées pour définir les conditions initiales des modèles, pour réajuster ou caler leurs résultats lorsque ceux-ci varient d'années en années et enfin ils permettent de valider ces résultats. Pour tout modèle, il est donc indispensable d'avoir trois jeux de données indépendantes (un pour l'initialisation, un pour la calibration, le dernier pour la validation). Dans le cas des modèles de charges critiques, seuls des programmes de surveillance maintenus sur le long terme peuvent fournir de tels jeux de données.

Il est certain que les programmes de surveillance ont un coût. En France, le coût total du système de surveillance sanitaire des forêts est de l'ordre de 7 millions d'euros par an. La dépollution et la restauration des écosystèmes gravement endommagés ont également un coût. Dépolluer des milieux acidifiés revient à les chauler, une pratique dont les résultats sont parfois controversés. Les sols requièrent 3 à 5 tonnes de chaux par hectare tous les 10 à 20 ans. Les cours d'eau doivent être chaulés tous les ans. À titre de comparaison, notons que de telles mesures coûtent à la Suède entre 15 et 20 millions d'euros pour éviter

l'acidification de 3 000 lacs sur les 17 000 qui le seraient sans chaulage. Les coûts de la restauration des écosystèmes sont plus difficiles à évaluer.

Ces coûts sont à comparer avec les revenus que nous apportent les écosystèmes naturels et semi-naturels. Les revenus de l'exploitation forestière en France peuvent être évalués à partir de la récolte (environ 50 millions de $\text{m}^3 \text{ an}^{-1}$ déclarés ; il y aurait à peu près la même quantité non déclarée) et du prix de vente du bois brut (environ 38 € m^3). Il en découle un revenu brut de l'ordre de 2000 à 4000 millions d'euros, qui ne prennent pas en compte la valeur du bois transformé (scierie, menuiserie,...). Les revenus dus au tourisme, les bénéfices en terme de qualité de vie, ou seulement de qualité de l'air et de l'eau que nous tirons des forêts ne sont pas comptabilisés ici mais, s'ils pouvaient être chiffrés, s'ajouteraient à ceux de l'industrie forestière.

Le coût du programme de surveillance complet français est donc au maximum de l'ordre de 0,2 à 0,4 % des revenus que nous procure la forêt française. La surveillance ne permet pas d'éviter l'apparition de dégâts sur le milieu naturel, mais elle permet d'en éviter les pires formes et d'avoir à payer ensuite pour les «réparer». Un tel investissement n'est pas un investissement à perte, d'autant plus qu'il contribue aussi à une amélioration de la connaissance du milieu et à une exploitation plus efficace.

CONCLUSIONS

L'eutrophisation et l'acidification se traduisent toutes les deux par une perte de biodiversité. De plus, un sol acidifié perd sa fertilité et sa résistance à l'érosion tandis que dans un écosystème eutrophisé les plantes sont fragilisées vis-à-vis des parasites et des intempéries et la qualité du bois peut être modifiée. D'autre part, la plus grande disponibilité de l'azote qui caractérise l'eutrophisation conduit à une croissance plus rapide des plantes. Cette augmentation de croissance a pour corollaire une plus forte demande en cations basiques, ce qui peut induire une plus grande sensibilité du milieu à l'acidification.

De façon spécifique, les résultats d'études sur le terrain ont montré que les sols et les cours d'eau de l'Est de la France sont acidifiés : leur pH est bas, leurs réserves en cations basiques dangereusement faibles. Il y a peu d'études de terrain sur d'autres régions françaises mais l'utilisation des modèles de charges critiques pallie en partie ce manque. Il apparaît que des problèmes relatifs à l'acidification des sols sont à attendre dans plusieurs régions : les Ardennes, les Vosges, l'Alsace, la Moselle, l'est du Massif central, les Landes, le sud-ouest de l'Ile de France, la Bretagne, la Normandie et ponctuellement la Champagne, le rebord ouest du Massif Central, les Pyrénées. Quant à l'eutrophisation, son apparition est probable sur plus de 90 % du territoire.

Cet état des lieux n'est pas engageant. Il est le résultat de plusieurs décennies de dépôts de composés soufrés et azotés, les principaux agents de l'acidification et de l'eutrophisation. Les protocoles internationaux signés et appliqués depuis la fin des années 70 ont cependant conduit à des baisses sensibles d'émissions de soufre et, dans une moindre mesure, d'azote. Cela a conduit à une remontée du pH de certaines eaux de surface et on parle de plus en plus de restauration des écosystèmes. Cette restauration est prédite par certains modèles et des signes positifs sont observés dans certains pays européens. Si on ne peut pas évaluer précisément le temps qu'il faudra pour qu'elle soit complète, la restauration de certaines fonctionnalités détruites en quelques mois ou quelques années ne se fera probablement qu'après plusieurs années, voire plusieurs décennies.

D'autres enseignements peuvent être tirés des modèles de charges critiques. La comparaison des charges critiques d'azote acidifiant et d'azote eutrophisant permet de comparer les flux jugés maximum par les experts avant que les écosystèmes ne soient acidifiés ou eutrophisés par les quantités d'azote qu'ils reçoivent. Il s'avère que l'eutrophisation est attendue pour des dépôts d'azote en général inférieurs à ceux qui sont susceptibles de déclencher l'acidification. Cela signifie aussi que pour la plupart des écosystèmes français, **les limites d'émissions de composés azotés devraient être calculées en fonction des risques d'eutrophisation** plutôt que des risques d'acidification.

Dans le même temps, la part de l'azote dans les processus d'acidification est en augmentation par rapport à celle du soufre. Ceci s'explique par la forte baisse des émissions de soufre, et donc des dépôts, depuis les années 1970 alors que simultanément les émissions de composés azotés ont relativement peu baissé. **C'est donc de plus en plus les apports excessifs en azote qui conduisent à des dysfonctionnements des écosystèmes.**

Tous ces résultats ont été obtenus en partie grâce aux efforts de modélisation, en partie grâce aux recherches et aux observations faites sur les milieux naturels et semi-naturels. Les deux ne peuvent progresser que de pair. Les mesures de terrain sont essentielles pour confirmer ou infirmer les résultats des modèles. Confirmés et validés, les modèles permettent de prévoir les évolutions à venir et d'agir en fonction. Infirmer, les principes sur lesquels ces modèles sont bâtis doivent être revus et améliorés. Actuellement, la valeur des prédictions quantitatives des modèles est limitée par les généralisations et les approximations nécessaires pour appliquer un même modèle à un territoire aussi varié que l'Europe. Ces généralisations et approximations ne peuvent être faites qu'en choisissant de négliger certains paramètres ou certains processus. Ces choix, plus ou moins orientés par les conditions particulières à certains pays, sont nécessaires même s'ils sont critiquables. Proposer des alternatives requiert d'améliorer certaines connaissances fondamentales des écosystèmes.

Trois points semblent particulièrement propices à des améliorations :

- Les modèles biologiques qui permettent de définir les seuils au-delà desquels les concentrations de polluants ont des impacts significatifs indésirables sur les écosystèmes ;
- Certains processus géochimiques tels que la spéciation de l'aluminium et l'altération des minéraux ;
- Les modèles dynamiques qui devraient permettre de s'affranchir de l'hypothèse de système à l'équilibre. Celle-ci facilite les calculs mais n'est pas vérifiée sur le terrain. Encore en phase de développement et de validation, ce type de modèles prend en compte l'évolution au cours du temps des processus décrits. Ils devraient ainsi permettre de prévoir les délais de restauration des écosystèmes endommagés. L'utilisation des modèles dynamiques nécessite toutefois que de larges quantités de données soient rassemblées pour chaque pays européen. Toutes ne sont pas encore disponibles.

L'importance des résultats des modèles dynamiques est à la hauteur de l'utilisation qui en sera faite : il est vraisemblable qu'ils seront utilisés dans un futur proche (dès 2005) pour servir de base à la révision de protocoles internationaux sur les émissions de polluants. Il convient donc d'être vigilant sur la qualité de leurs données d'entrée, sur la fiabilité de leurs résultats ainsi que sur les techniques qui seront utilisées pour les transférer vers la modélisation intégrée.

Finalement, l'efficacité des politiques de réduction de la pollution atmosphérique en Europe dépendra de la qualité des observations de terrain, de la qualité des résultats des modèles décrits dans ce rapport et de la qualité de l'interface entre ces modèles et les modèles économiques.

RÉFÉRENCES

- Aber, J., McDowell, W., Nadelhoffer, K., Magill, A., Berntson, G., Kamakea, M., McNulty, S., Currie, W., Rustad, L., et Fernandez, I. (1998). Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems: Hypothesis revisited. *BioScience* **48**, 921-934.
- Achermann, B., et Bobbink, R., eds. (2003). "Empirical critical loads for nitrogen, expert workshop, Berne, 11-13 November 2002", 327 pp. Swiss Agency for the Environment, Forests and Landscape (SAEFL), Berne, Switzerland.
- ADEME (1997). Les charges critiques en France. Impacts et conséquences à long terme des polluants atmosphériques sur les écosystèmes terrestres et aquatiques, **Rep. No. ISBN 2-86817-194-6**. ADEME, Paris, France. 59 p.
- Aherne, J., et Farrell, E. P. (2002). Steady state critical loads of acidity for sulphur and nitrogen: a multi-receptor, multi-criterion approach. *The Science of The Total Environment* **288**, (3), 183-197.
- Andersson, P., Berggren, D., et Johnsson, L. (2001). 30 years of N fertilisation in a forest ecosystem - the fate of added N and effects on N fluxes. *Water Air and Soil Pollution* **130**, (II), 637-642.
- Augusto, L., Ranger, J., Ponette, Q., et Rapp, M. (2000a). Relationship between forest tree species, stand production and stand nutrient amount. *Annals of Forest Science* **57**, 313-324.
- Augusto, L., Turpault, M. P., et Ranger, J. (2000b). Impact of forest tree species on feldspar weathering rates. *Geoderma* **96**, (3), 215-237.
- Augusto, L., et Ranger, J. (2001). Impact of tree species on soil solutions in acidic conditions. *Annals of Forest Science* **58**, (1), 47-58.
- Badeau, V., et Ulrich, E. (1998). Pourquoi les sols du réseau intensif RENECOFOR sont-ils nettement plus acides que ceux du réseau de surveillance systématique (16 x 16 km). *Les cahiers du DSF 1-1998, [la santé des forêts (France) en 1997] Min. Agri. Pêche (DERF), Paris, France 1-1998*, 81-83.
- Badeau, V., Dambrine, E., et Walter, C. (1999). Propriétés des sols forestiers français: Résultats du premier inventaire systématique. *Étude et gestion des sols* **6**, (3), 165-179.
- Baize, D. (2000). Guide des analyses en pédologie, 1 pp. Series: Techniques et pratiques, 2/Ed. INRA Editions, Paris, France. ISBN 2-7380-0892-5.
- Barak, P. (2002) Plant nutrient management. Site internet: <http://www.soils.wisc.edu/~barak/soilscience326/>
- Baretta-Bekker, J. G., Duursma, E. K., et Kuipers, B. R., eds. (1998). "Encyclopedia of marine sciences". Springer-Verlag. ISBN 3540626751.
- Becker, M., Bert, G. D., Landmann, G., Lévy, G., Rameau, J. C., et Ulrich, E. (1995). Growth and decline symptoms of silver fir and Norway spruce in Northeastern France: Relation to climate, nutrition and silviculture. In "Forest decline and atmospheric deposition in the French mountains" (G. Landmann et M. Bonneau, eds.), pp. 120-142. Springer-Verlag, Berlin, Germany.
- Bélanger, N., Côté, B., Courchesne, F., Fyles, J. W., Warfvinge, P., et Hendershot, W. H. (2002a). Simulation of soil chemistry and nutrient availability in a forested ecosystem of southern Quebec -- I. Reconstruction of the time-series files of nutrient cycling using the MAKEDEP model. *Environmental Modelling & Software* **17**, (5), 427-445.
- Bélanger, N., Courchesne, F., Côté, B., Fyles, J. W., Warfvinge, P., et Hendershot, W. H. (2002b). Simulation of soil chemistry and nutrient availability in a forested ecosystem of southern Quebec. Part II. Application of the SAFE model. *Environmental Modelling & Software* **17**, (5), 447-465.
- Binkley, D., et Hogberg, P. (1997). Does atmospheric deposition of nitrogen threaten Swedish forests? *Forest Ecology and Management* **92**, (1-3), 119-152.
- Binkley, D., Son, Y., et Valentine, D. (2000). Do forests receive occult inputs of nitrogen? *Ecosystems* **3**, 321-331.
- Bonneau, M. (1988). Le diagnostic foliaire. *Revue Forestière Française* **40** (special issue "Diagnostics en forêt"), 19-28.
- Bonneau, M., et Landmann, G., eds. (1993). "Pollution atmosphérique et dépérissement des forêts dans les montagnes françaises: Programme DEFORPA. Rapport 1992", 365 pp. Institut national de la recherche agronomique, Nancy, France.
- Bonneau, M., Belkacem, S., Nys, C., Ranger, J., Gelhaye, D., Lefèvre, Y., et Hubert, D. (2000). Évolution d'un sol forestier acide des Vosges sur une période de 10 ans. Observatoire de la qualité des sols du Donon. *Étude et gestion des sols* **7**, (2), 99 - 118.
- Bordenave, P. (2002). Avec les nitrates, il ne pas se fier aux apparences ! *InfoMedia* **53**.

- Bouchereau, J.-M., et Oudart, B. (2000). Lutte contre la pollution atmosphérique transfrontière en Europe: Les nouveaux objectifs de la France. *Les données de l'environnement* **53**, 1-4.
- Boudot, J. P., Becquer, T., Merlet, D., Rouiller, J., Ranger, J., Dambrine, E., et Mohamed, D. A. (1995). Potential role of aluminium toxicity in nutrient deficiencies as related to forest decline: an assessment of soil solution data from the Vosges mountains. In "Forest decline and atmospheric deposition effects in the french mountains." (G. Landmann et M. Bonneau, eds.), pp. 270 - 285. Springer - Verlag, Berlin, Germany.
- Boudot, J. P., Maitat, O., Merlet, D., et Rouiller, J. (2000). Soil solutions and surface water analysis in two contrasted watersheds impacted by acid deposition, Vosges mountains, NE France: interpretation in terms of Al impact and nutrient imbalance. *Chemosphere* **41**, (9), 1419-1429.
- Bouthier, A., et Castillon, P. (2001). La toxicité aluminique : risque majeur lié à l'acidité dans les sols agricoles. In "Colloque acidification des sols" (M. Gaiffe, ed.). INRA, Versailles, France. Site internet: <http://www.inra.fr/Internet/Hebergement/afes/egs/colloque-acidification.pdf>
- Bouwman, A. F., Van Vuuren, D. P., Derwent, R. G., et Posch, M. (2002). A global analysis of acidification and eutrophication of terrestrial ecosystems. *Water Air and Soil Pollution* **141**, (1-4), 349-382.
- Brignon, J. M., et Soleille, S. (2002). Étude de mesures économiques et sectorielles pour réduire les émissions de NOx, SO₂, COV et NH₃, *Rapport pour le Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable*, Rep. No. DRC - 02 - 25587. INERIS, Verneuil en Halatte, France. 151 p.
- Brini, S., et Bonanni, P. (1999). Italy: National Focal Center report. In "Calculation and mapping of critical thresholds in Europe. Status report 1999" (M. Posch, P. A. M. De Smet, J. P. Hettelingh et R. J. Downing, eds.), pp. 106-109. Coordination Center for Effects Report, Working group on effects of the Convention on long range transboundary air pollution, RIVM, Bilthoven, the Netherlands.
- Camacho, A., Wurtsbaugh, W. A., Miracle, M. R., Armengol, X., et Vicente, E. (2003). Nitrogen limitation of phytoplankton in a Spanish karst lake with a deep chlorophyll maximum: a nutrient enrichment bioassay approach. *Journal of Plankton Research* **25**, (4), 397-404.
- Cannell, M. G. R., Thornley, J. H. M., Mobbs, D. C., et Friends, A. D. (1998). UK conifer forest may be growing faster in response to increased N deposition, atmospheric CO₂ and temperature. *Forestry* **71**, 277-296.
- Cape, J. N. (1993). Direct damage to vegetation caused by acid rain and polluted cloud: definition of critical levels for forest trees. *Environmental Pollution* **82**, 167-180.
- Carroll, J. A., Caporn, S. J. M., Morecroft, M. D., Lee, J. A., Johnson, D., Taylor, A., Leake, J. R., Campbell, C. D., Cawley, L., Leu, Y., et Read, D. J. (1997). Natural vegetation responses to atmospheric deposition - critical levels and loads of nitrogen for vegetation growing on contrasting native soils. University of Sheffield, Sheffield, UK. 101 p.
- Carroll, J. A., Johnson, D., Morecroft, M. D., Taylor, A., Caporn, S. J. M., et Lee, J. A. (2000). The effect of long-term nitrogen additions on the bryophyte cover of upland acidic grasslands. *Journal of Bryology* **22**, 83-89.
- CCE (2002). VSD Very simple model: Dynamic model for the calculation of critical load for soil acidity, *Methodological guide*. Coordination Centre for Effect, UNECE Long range Transboundary Air Pollution, Bilthoven, the Netherlands.
- Cecchini, S. (2000a) La placette d'observation Renecofor en forêt de Guebwiller (SP 68). ONF. Site internet: http://www.onf.fr/pro/Renecofor/Sites/pdf/SP_68.pdf
- Cecchini, S. (2000b) La placette d'observation Renecofor en forêt de l'Aigoual (HET 30). ONF. Site internet: http://www.onf.fr/pro/Renecofor/Sites/pdf/SP_68.pdf
- Cecchini, S. (2000c) La placette d'observation Renecofor en forêt des Voiron (EPC 74). ONF. Site internet: http://www.onf.fr/pro/Renecofor/Sites/pdf/EPC_74.pdf
- Cecchini, S. (2000d) La placette d'observation Renecofor en forêt de Berce (PM 72). ONF. Site internet: http://www.onf.fr/pro/Renecofor/Sites/pdf/PM_72.pdf
- Cecchini, S. (2000e) La placette d'observation Renecofor en forêt de Saint-Hugon (SP 38). ONF. Site internet: http://www.onf.fr/pro/Renecofor/Sites/pdf/SP_38.pdf
- Cecchini, S. (2000f) La placette d'observation Renecofor en forêt de Ban (SP 25). ONF. Site internet: http://www.onf.fr/pro/Renecofor/Sites/pdf/SP_25.pdf
- CITEPA (2003). Emissions dans l'air en France métropole. Substances impliquées dans les phénomènes d'eutrophisation et de photochimie. Centre interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique, Paris, France. 17 p.

- Cluzeau, C., Dupouey, J.-L., Drapier, J., et Virion, R. (2001). Étude des modifications à long terme de la végétation forestière à partir des données de l'IFN. *Revue Forestière Française* **53**, (3-4), 413-419.
- Compton, J. E., et Boone, R. D. (2002). Soil nitrogen transformations and the role of light fraction organic matter in forest soils. *Soil Biology and Biochemistry* **34**, (7), 933-943.
- Cooper, T. (2002) Lecture notes: Laboratory Units for Soil 2125 & 1125. University of Minnesota, College of agricultural, food and environmental science, department of soil, water and climate. Site internet: <http://www.soils.umn.edu/academics/classes/soil2125/doc/labunits.htm>
- Cosby, B. J., Hornberger, G. M., Galloway, J. N., et Wright, R. F. (1985). Modeling the effects of acid deposition: assessment of a lumped parameter model of soil and streamwater chemistry. *Water Resources Research* **21**, (1), 51-63.
- Côté, B., et Ouimet, R. (1996). Forest decline in southern Québec: impact of natural stresses and forest management. *Environmental Review* **4**, 133-148.
- Cowling, E., Galloway, J. N., Furiness, C., Barber, M., Bresser, T., Cassman, K., Erisman, J. W., Haeuber, R., Howarth, R., Melillo, J., Moomaw, W., Mosier, A., Sanders, K., Seitzinger, S., Smeulders, S., Socolow, R., Walters, D., West, F., et Zhu, Z. (2001). Optimizing nitrogen management in food and energy production and environmental protection: Summary statement. In "2nd international nitrogen conference", Potomac, Maryland, USA.
- Croise, L., Ulrich, E., Duplat, P., et Jaquet, O. (2002). RENECOFOR: Deux approches indépendantes pour l'estimation et la cartographie des dépôts atmosphériques totaux hors couvert forestier sur le territoire français, Office National des Forêts, Département Recherche et Développement, Fontainebleau, France. ISBN 2-84207-258-8.
- Croisé, L., Ulrich, E., Duplat, P., et Jaquet, O. (2002). RENECOFOR: Deux approches indépendantes pour l'estimation et la cartographie des dépôts atmosphériques totaux hors couvert forestier sur le territoire français, Office National des Forêts, Département Recherche et Développement, Fontainebleau, France. ISBN 2-84207-258-8.
- Cronan, C. S., et Grigal, D. F. (1995). Use of calcium/aluminium ratios as indicators of stress in forest ecosystems. *Journal of Environmental Quality* **24**, 209-226.
- Dambrine, E., Ranger, J., et Granier, A. (1993). Alimentation minérale d'un peuplement d'épicéa sur sol pauvre: variation en fonction de l'âge, incidence d'une sécheresse et relation avec le dépérissement. In "Pollution atmosphérique et dépérissement des forêts dans les montagnes françaises: Programme DEFORPA. Rapport 1992" (M. Bonneau et G. Landmann, eds.), pp. 299-304. Institut national de la recherche agronomique, Nancy, France.
- Dambrine, E., Bonneau, M., Ranger, J., Mohamed, A. D., Nys, C., et Gras, F. (1995a). Cycling and budgets of acidity and nutrients in Norway spruce stands in northeastern France and the Erzgebirge (Czech republic). In "Forest decline and atmospheric deposition effects in the french mountains" (G. Landmann et M. Bonneau, eds.), pp. 233 - 258. Springer, Berlin, Germany.
- Dambrine, E., Granier, A., et Lévy, G. (1995b). Water regime and magnesium deficiency: manipulative experiments in young norway spruce stands. In "Forest decline and atmospheric deposition effects in the french mountains." (G. Landmann et M. Bonneau, eds.), pp. 286 - 299. Springer - Verlag, Berlin, Germany.
- Dambrine, E., Ulrich, E., Cénac, N., Durand, P., Gauquelin, T., Mirabel, P., Nys, C., Probst, A., Ranger, J., et Zéphoris, M. (1995c). Atmospheric deposition in France and possible relation with forest decline. In "Forest decline and atmospheric deposition effects in the french mountains." (G. Landmann et M. Bonneau, eds.), pp. 177 - 200. Springer, France.
- Dambrine, E., Pollier, B., Bonneau, M., et Ignatova, N. (1998a). Use of artificial trees to assess dry deposition in spruce stands. *Atmospheric Environment* **32**, (10), 1817-1824.
- Dambrine, E., Thomas, A.-L., Party, J.-P., Probst, A., Boudot, J.-P., Duc, M., Dupouey, J.-L., Gégout, J.-C., Guérol, F., King, D., Landmann, G., Maitat, O., Nicolai, M., Pollier, P., et Thimonier, A. (1998b). Acidité des écosystèmes forestiers dans les Vosges gréseuses: distribution, évolution, rôle des dépôts atmosphériques et conséquences biologiques. *Comptes rendus de l'Académie Agricole Française* **84**, (5).
- Dambrine, E., Party, J.-P., Pollier, B., Nicolai, M., Probst, A., Rozin, C., et Duc, M. (1999). Acidification des eaux de source et saturnisme dans le massif vosgien. *Revue Forestière Française* **51**, (2), 173-183.
- Dangles, O., et Guérol, F. (2001). Linking shredders and leaf litter processing: Insights from an acidic stream study. *International Review of Hydrobiology* **86**, (4-5), 395-406.

- de Vries, W., Hol, A., Tsalma, S., et Voogdi, J. C. (1990). Amount and turnover rates of elements in forest ecosystems: a literature study, *Commentaire*. Winand Staring Senter, Waneningen, The Netherlands.
- De Wit, H. A., Mulder, J., Nygaard, P. H., Aamlid, D., Huse, M., Kortnes, E., Wollebaek, G., et Brean, R. (2001). Aluminium: the need for a re-evaluation of its toxicity and solubility in mature forest stands. *Water Air and Soil Pollution* **1**, 109-3-118.
- Devêvre, O., Garbaye, J., Le Tacon, F., Perrin, R., et Estivalet, D. (1995). Role of rhizosphere microfungi in the decline of Norway spruce in acidic soils. In "Forest decline and atmospheric deposition effects in the french mountains." (G. Landmann et M. Bonneau, eds.), pp. 331 - 352. Springer - Verlag, Berlin, Germany.
- Dhôte, J. F., Dupouey, J. L., et Bergès, L. (2000). Modifications à long terme, déjà constatées, de la productivité des forêts française. *Revue forestière française* **52**, (n° spécial), 37-48.
- Dupouey, J.-L., Thimonier, A., et Becker, M. (1993). Evolution de la flore et des sols forestiers du Nord-Est de la France. Rôle des dépôts atmosphériques. In "Pollution atmosphérique et dépérissement des forêts dans les montagnes françaises: Programme DEFORPA. Rapport 1992" (M. Bonneau et G. Landmann, eds.), pp. 313-316. Institut national de la recherche agronomique, Nancy, France.
- Dupouey, J.-L., Thimonier, A., Lefèvre, Y., Le Tacon, F., Bonneau, M., Dambrine, E., Poszwa, A., et Landmann, G. (1998). Désaturation et enrichissement en azote des sols forestiers du Nord-Est de la France au cours des dernières décennies. *Revue Forestière Française* **50**, 391-402.
- Duquesnay, A., Dupouey, J.-L., Clement, A., Ulrich, E., et Le Tacon, F. (2000). Spatial and temporal variability of foliar mineral concentration in beech (*Fagus sylvatica*) stands in northeastern France. *Tree Physiology* **20**, (1), 13-22.
- Epstein, E. (1965). Mineral metabolism. In "Plant Biochemistry" (J. Bonner et J. E. Varner, eds.), pp. 438-466. Academic Press, London, UK.
- Evans, C. D., Cullen, J. M., Alewell, C., Kopacek, J., Marchetto, A., Moldan, F., Pretchel, A., Rogora, M., Veselý, J., et Wright, R. F. (2001a). Recovery from acidification in European surface waters. *Hydrology and Earth System Sciences* **5**, 283-297.
- Evans, C. D., Monteith, D. T., et Harriman, R. (2001b). Long-term variability in the deposition of marine ions at west coast sites in the UK Acid Waters Monitoring Network: impacts on surface water chemistry and significance for trend determination. *The Science of The Total Environment* **265**, (1-3), 115-129.
- Fabian, P., et Menzel, A. (1999). Changes in phenology of trees in Europe. In "Causes and consequences of accelerating tree growth in Europe. Proceeding of the international seminar held in Nancy, France, 14-16 May 1998" (T. Karjalainen, H. Spiecker et O. Laroussinie, eds.), Vol. 27, pp. 43-51. European Forest Institute.
- Falkengren-Grerup, U., Linnemark, N., et Tyler, G. (1987). Changes in acidity and cations pools of south Swedish soils between 1949 and 1985. *Chemosphere* **16**, 2239-2248.
- Février, C., Party, J.-P., et Probst, A. (1999). Surface water acidification and critical loads for the French Ardennes Massif. *Comptes rendus de l'académie des sciences. Série II. Fascicule a-Sciences de la terre et des planètes / Earth and Planetary Sciences* **328**, (1), 29-35.
- Fillion, N., Probst, A., et Probst, J.-L. (1999). Determination of organic and mineral acidity contributions to the total throughfall acidity: application to French forests. *Comptes rendus de l'académie des sciences. Série II. Fascicule a-Sciences de la terre et des planètes / Earth and Planetary Sciences* **328**, (5), 333-339.
- Fischer, A. (1999). Floristical changes in central european forest ecosystems during the past decades as an expression of changing site conditions. In "Causes and consequences of accelerating tree growth in Europe. Proceeding No 27." (T. Karjalainen, H. Spieker et O. Laroussinie, eds.). European Forest Institute, Joensuu, Finland. Site internet: <http://www.efi.fi/publications/Proceedings/>
- Fowler, D., Morse, A. P., Gallagher, M. W., et Choularton, T. W. (1990). Measurements of cloud water deposition on vegetation using a lysimeter and a flux gradient technique. *Tellus* **42B**, 285-293.
- Fuhrer, J. (1986). Chemistry of fogwater and estimated rates of Central Switzerland. *Agriculture, Ecosystems & Environment* **17**, 153-164.
- Galloway, J. N. (1995). Acid deposition: perspectives in time and space. *Water Air and Soil Pollution* **85**, 15-24.
- Galloway, J. N., Dianwu, Z., Thomson, V. E., et Chang, L. H. (1996). Nitrogen mobilization in the United States of America and the people's republic of China. *Atmospheric Environment* **30**, (10-11), 1551-1561.

- Göransson, A., et Eldhuset, T. D. (2001). Is the (Ca+K+Mg)/Al ratio in the soil solution a predictive tool for estimating forest damage ? *Water Air and Soil Pollution* **1**, 57-74.
- Grennfelt, P., et Thörnelöf, E., eds. (1992). "Critical load for nitrogen: report from a workshop held at Lökeberg, Sweden, 6 - 10 April 1992". Nordic council of Ministers, Copenhagen, Denmark.
- Guérol, F., Masson, N. F., et Dangles, O. J. (1998). Acidification in the Vosges mountains (North-eastern France): Assessment of biological status by the use of a multimetric approach. In "Workshop on biological assessment and monitoring; evaluation and models. ICP Waters Report 50/99" (G. G. Raddum, B. O. Rosseland et J. Bowman, eds.), pp. 44-56. Norwegian Institute for Water Research, NIVA, Oslo, Norway.
- Guérol, F. (1999). Evaluation de l'état de santé des écosystèmes acidifiés: approche multiparamétrique. Thèse d'habilitation à diriger des recherches, Université de Metz, Metz, France.
- Guérol, F. (2000). Influence of taxonomic determination level on several community indices. *Water Research* **34**, (2), 487-492.
- Guibaud, G., et Ayele, J. (1997). Libération d'ions aluminium par les sols limousins. Influence de la nature, de l'âge de la plantation et de quelques facteurs physico-chimiques. Conséquences sur la pollution des eaux naturelles. *Journal Européen d'Hydrologie* **28**, (2), 235-258.
- Hadley, A., et Toumi, R. (2002). A simple model which predicts some non-linear features between atmospheric sulphur and sulphur emissions. *Environmental Pollution* **119**, (3), 365-374.
- Hall, J., Ulyett, J., Hornung, M., Kennedy, F., Reynolds, B., Curtis, C., Langan, S., et Fowler, D. (2001). Status of UK critical loads and exceedances: Part 1 - Critical loads and critical loads maps update to January 1998 report: February 2001. Centre for Ecology and Hydrology, Huntingdon. Site internet: http://critloads.ceh.ac.uk/uk_critloads_update/update.htm
- Hasenauer, H., Nemani, R. R., Schadauer, K., et Running, S. W. (1999). Climate variations and tree growth between 1961 and 1995 in Austria. In "Causes and consequences of accelerating tree growth in Europe. Proceeding No 27." (T. Karjalainen, H. Spieker et O. Laroussinie, eds.). European Forest Institute, Joensuu, Finland. Site internet: <http://www.efi.fi/publications/Proceedings/>
- Havlicek, E., et Gobat, J.-M. (1996). Les apports éoliens dans les sols du Jura. États des connaissances et nouvelles données en pâturage boisés. *Etude et gestion des sols* **3**, (3), 167-178.
- Hedin, L. O., Granat, L., Likens, G. E., Buishand, T. A., Galloway, J. N., Butler, T. J., et Rodhe, H. (1994). Steep declines in atmospheric base cations in regions of Europe and North America. *Nature* **367**, 351-354.
- Hedin, L. O., et Likens, G. E. (1996). Atmospheric dust and acid rain. *Scientific American* **275**, (6), 88-92.
- Hendershot, W. H., et Bélanger, N. (1999). The role of soil acidification in forest decline. In "The effects of acidic deposition on Pennsylvania's forests. Proceedings of the 1998 PA acidic conference, Volume 1." (W. E. Sharpe et R. Drohan, eds.), pp. 21-27. Environmental resources research institute, University Park, PA.
- Henderson, G. H. M. (1990). The nature of high altitude precipitation and its effects on Scots pine (*Pinus sylvestris* L) and Sitka spruce (*Picea sitchensis* (Bong) (Carr.)). PhD, University of Edinburgh, Edinburgh, Great Britain.
- Hernández, L., Probst, A., Probst, J.-L., et Ulrich, E. (2002). Heavy metals in some French forest soils: Distribution, origin and controlling factors. Poster.
- Hetteling, J. P., et de Vries, W. (1992). Mapping vademecum, *Report No 259101002 for the Directorate-general for environment of the Ministry of public health, physical planning and environment, air department*. National institute of public health and environmental protection, Bilthoven, The Netherlands. 39 p.
- Hetteling, J. P., et Posch, M. (1997). An analysis of critical load and input data variability. In "Calculation and mapping of critical thresholds (Status report 1997)" (M. Posch, J. P. Hetteling, P. A. M. De Smet et R. J. Downing, eds.), pp. 29-39. RIVM, Bilthoven, the Netherlands.
- Hetteling, J. P., Posch, M., et De Smet, P. A. M. (2001). Multi-effect critical loads used in multi-pollutant reduction agreements in Europe. *Water Air and Soil Pollution* **130**, (1-4), 1133-1138.
- Hodson, M. E., et Langan, S. J. (1999). Considerations of uncertainty in setting critical loads of acidity of soils: the role of weathering rate determination. *Environmental Pollution* **106**, (1), 73-81.
- Högberg, P., et Jensen, P. (1994). Aluminium and uptake of base cations by tree roots: a critique of the model proposed by Sverdrup *et al.* *Water Air and Soil Pollution* **75**, 121-125.

- Hüttl, R. F. (1986). Forest fertilization: Results from Germany, France and The Nordic Countries. *The Fertilizer Society* **250**, 1-40.
- Ilvesniemi, H., et Starr, M. (1994). The use of the Ca/Al ratio in the calculation of critical loads for forest soils, *Research papers* 513. Finish forest research institute. 165-173 p.
- Ingestadt, T. (1959). Studies on nutrition of forest trees seedlings. II Mineral nutrition of spruce. *Physiology plantarum* **12**, 568-593.
- INRA (2001) Glossaire. Copyright. Site internet: <http://www.nancy.inra.fr/acidification/Definitions/definitions.html#A>
- INRA (2002a) L'évolution des sols forestiers au cours des dernières décennies. INRA Centre de Nancy, Champenoux. Site internet: <http://www.inra.fr/Internet/Directions/DIC/ACTUALITES/NATURE/pdf/foretproduc.pdf>
- INRA (2002b) La mise en évidence d'un accroissement de la productivité des forêts. INRA, Unité de Sciences forestières et Unité d'écophysiologie forestière, Centre de Nancy. Site internet: <http://www.inra.fr/Internet/Directions/DIC/ACTUALITES/NATURE/pdf/foretproduc.pdf>
- IUCN, UNEP, et WWF (1991). Caring for the earth: a strategy for sustainable living. The World Conservation Union, United Nations Environment Programme, World Wide Fund For Nature, Gland, Switzerland. Site internet: <http://coombs.anu.edu.au/~veru/caring/caring.html>
- Kämäri, J., Posch, M., Kähkönen, A.-M., et Johansson, M. (1995). Modeling potential long-term responses of a small catchment in Lapland to changes in sulfur deposition. *The Science of The Total Environment* **160-161**, 687-701.
- Kamenik, C., Schmidt, R., Kum, G., et Psenner, R. (2001). The influence of catchment characteristics on the water chemistry of mountain lakes. *Arctic Antarctic and Alpine Research* **33**, (4), 404-409.
- Kasica, A. F., et Good, G. L. (1997) Something to grow on. Cornell Cooperative Extension, Departement of Floriculture and Ornamental Horticulture, Cornell University, Ithaca, USA. Site internet: <http://www.cals.cornell.edu/dept/flori/growon/nitrogen.html>
- Kelleher, I. (2002) Air pollution resources course, Tables. Brookschooll, North Andover, Massachussetts, USA. Site internet: <http://12.16.74.10/~ikellehe/APES/airtrends.htm>
- Kopacek, J., Kana, J., Santruckova, H., Picek, T., et Stuchlik, E. (2004). Chemical and biochemical characteristics of alpine soils in the Tatra Mountains and their correlation with lake water quality. *Water Air and Soil Pollution* **153**, (1-4), 307-327.
- Koptsik, G., Teveldal, S., Aamlid, D., et Venn, K. (1999). Calculations of weathering rate and soil solution chemistry for forest soils in the Norwegian-Russian border area with the PROFILE model. *Applied Geochemistry* **14**, (2), 173-185.
- Kotas, J., et Stasicka, Z. (2000). Chromium occurrence in the environment and methods of its speciation. *Environmental Pollution* **107**, (3), 263-283.
- Kreiser, A., Rose, N., Probst, A., et Massabuau, J. C. (1995). Relationship between lakewater acidification in the Vosges Mountains (France) and SO_x - NO_x emissions in Western Europe. In "Forest decline and air pollution effects in the French mountains" (G. Landmann and M. Bonneau, eds.), pp. 363-370. Springer Verlag, New York, USA.
- Kroll, G., et Winkler, P. (1990). Ion deposition due to fog water interception at high elevations. In "Physico-chemical behaviour of atmospheric pollutants" (G. Restelli and G. Angeletti, eds.), pp. 516-521. Kluwer, Dordrecht, The Netherlands.
- Kuylenstierna, J. C. I., Rodhe, H., Cindery, S., et Hicks, K. (2001). Acidification in developing countries: Ecosystem sensitivity and the critical load approach on a global scale. *Ambio* **30**, (1), 20-28.
- Kvaalen, H., Solberg, S., Clarke, N., Torp, T., et Aamlid, D. (2002). Time series study of concentrations of SO₄²⁻ and H⁺ in precipitation and soil waters in Norway. *Environmental Pollution* **117**, (2), 215-224.
- Lafrancois, B. M., Nydick, K. R., et Caruso, B. (2003). Influence of nitrogen on phytoplankton biomass and community composition in fifteen Snowy Range lakes (Wyoming, USA). *Arctic Antarctic and Alpine Research* **35**, (4), 499-508.
- Landmann, G. (1995). Forest decline and air pollution effects in the french mountains: a synthesis. In "Forest decline and atmospheric deposition effects in the french mountains" (G. Landmann and M. Bonneau, eds.), pp. 407 - 452. Springer - Verlag, Berlin, Germany.

- Landmann, G., Bonneau, M., Bouhot-Delduc, L., Fromard, F., Chéret, V., Dagnac, J., et Souchier, B. (1995). Crown damage in Norway spruce and Silver fir: relation to nutritional status and soil chemical characteristics in the French mountains. *In* "Forest decline and atmospheric deposition in the French mountains" (G. Landmann and M. Bonneau, eds.), pp. 41-81. Springer-Verlag, Berlin, Germany.
- Landmann, G., et Bouhot-Delduc, L. (1995). Ground monitoring of crown condition of forest trees in the French mountains. *In* "Forest decline and atmospheric deposition in the French mountains" (G. Landmann and M. Bonneau, eds.), pp. 3-40. Springer-Verlag, Berlin, Germany.
- Landmann, G. (1996). La santé des forêts françaises en 1996 : synopsis. *Les cahiers du DSF*.
- Landmann, G. (1997). La santé des forêts françaises : actualités de l'année 1997 et nouveaux acquis. *Les cahiers du DSF*.
- Landmann, G. (1999). La santé des forêts françaises : Actualités de l'année 1999 et nouveaux acquis. *Les cahiers du DSF* **1-2000**, 6-11.
- Landmann, G. (2000). Personal communication. Rapport version 25 05 2000.
- Landmann, G. (2002). Les pluies acides: un holocauste écologique? *La recherche* **351**, 56.
- Lee, J. A., et Caporn, S. J. M. (1999). Natural vegetation responses to atmospheric nitrogen deposition. Department of the environment, transport and the regions, UK.
- Lepori, F., Barbieri, A., et Ormerod, S. J. (2003). Effects of episodic acidification on macroinvertebrate assemblages in Swiss Alpine streams. *Freshwater Biology* **48**, (10), 1873-1885.
- Løkke, H., Bak, J., Falkengren-Grerup, U., Finlay, R. D., Ilvesniemi, H., Nygaard, P. H., et Starr, M. (1996). Critical loads of acid deposition for forest soils: Is the current approach adequate? *Ambio* **25**, 510-516.
- Løkke, H., Bak, J., Bobbink, R., Bull, K., Curtis, C., Falkengren-Grerup, U., Forsius, M., Gunderson, P., Hornung, M., Skjelkvåle, B. L., Starr, M., et Tybirk, K. (2000). Critical loads Copenhagen 1999, *Conference report prepared by members of the Conference's Secretariat, the Scientific Committee and Chairmen and Rapporteurs of its workshop in Consultation with the UNECE Secretariat. Arbejdsrapport fra DMU No 121*. National Environmental Research Institute, Silkeborg, Denmark. 48 p. Site internet: www.dmu.dk
- Lovett, G. M., et Lindberg, S. E. (1993). Atmospheric deposition and canopy interactions of nitrogen in forest. *Canadian Journal of Forest Research* **26**, 2134-2144.
- Maitat, O., Boudot, J. P., Merlet, D., et Rouiller, J. (2000). Aluminium chemistry in two contrasted acid forest soils and headwater streams impacted by acid deposition, Vosges mountains, NE France. *Water Air and Soil Pollution* **117**, (1-4), 217-243.
- Manahan, S. E. (1994). Environmental chemistry, 6th/Ed. Lewis Publishers, Boca Raton, USA. ISBN 1-56670-088-4.
- Marçais, B., Bouhot-Delduc, L., et Le Tacon, F. (2000). Effets possibles des changements globaux sur les micro-organismes symbiotiques et pathogènes et les insectes ravageurs des forêts. *Revue forestière française* **52**, (n° spécial), 99-118.
- Massabuau, J. C. (1985). Pluies acides et physiologie des animaux aquatiques. *Bulletin de la société d'écophysiologie* **10**, (2), 59-74.
- Massabuau, J. C., Fritz, B., et Burtin, B. (1987). Mise en évidence de ruisseaux acides (pH<5) dans les Vosges. *Comptes rendus de l'académie des sciences. Série III - Sciences De La Vie-Life Sciences* **305**, 121-124.
- Massabuau, J. C., Probst, A., et Guérol, F. (1995). Critical loads of acidity to streamwaters in the Vosges mountains : biological criteria. *In* "Forest decline and atmospheric deposition effects in the french mountains." (G. Landmann and M. Bonneau, eds.), pp. 387 - 393. Springer - Verlag, Berlin, Germany.
- McBride, M., Sauvé, S., et Hendershot, W. H. (1997). Solubility control of Cu, Zn, Cd and Pb in contaminated soils. *European Journal of Soil Science* **48**, 337-346.
- Mellilo, J. M., Aber, J. D., Steudler, P. A., et Schimel, J. P. (1983). Denitrification potentials in a successional sequence of Northern Hardwood forest stands. *Ecological bulletin* **35**, 217-228.
- Moldan, F., Kronnäs, V., Wilander, A., Karlun, E., et Cosby, B. J. (2004). Modelling acidification and recovery of Swedish lakes. *Water, Air, and Soil Pollution: Focus* **4**, 139-160.
- Morecroft, M. D., Sellers, E. K., et Lee, J. A. (1994). An experimental investigations into the effects of atmospheric nitrogen deposition on two semi-natural grasslands. *Journal of Ecology* **82**, 475-483.

- NEGTA (2001). Transboundary air pollution: Acidification, eutrophication and ground level ozone in the UK. **Rep. No. DEFRA contract EPG 1/3/153**. Centre for Ecology and Hydrology, Edinburgh, UK, Edinburgh. 314 p. Site internet: <http://www.nbu.ac.uk/negtap/finalreport.htm>
- Nilsson, J., et Grennfelt, P. (1988). Critical loads for sulfur and nitrogen, *Report from a workshop held at Skokloster, Sweden, 19-24 March 1988. Miljörapport 15*. Nordic council of Ministers. 418 p.
- Nydic, K. R., Lafrancois, B. M., Baron, J. S., et Johnson, B. M. (2003). Lake-specific responses to elevated atmospheric nitrogen deposition in the Colorado Rocky Mountains, USA. *Hydrobiologia* **510**, (1-3), 103-114.
- Nys, C., Adrian, M., Gelhaye, L., et Gelhaye, D. (1987). Essai de fertilisation sur Epicéa commun à la Croix Scaille (Ardennes), *Station Sols Forestiers (Document interne)*. INRA, Nancy, France. 12 p.
- ONF (1996). "Notice de présentation du Réseau National de suivi à long terme des Ecosystèmes Forestiers", 38 pp. Office National des Forêts, Département des Recherches Techniques. ISBN 2 - 84207 - 021 - 6.
- ONF (1999). Le Flash RENECOFOR, No 2. Office National des Forêts. 4 p. Site internet: <http://www.onf.fr/doc/pdf/renecofor/Flash2.pdf>
- Ormerod, S. J., Donald, A. P., et Brown, S. J. (1989). The influence of plantation forestry on the pH and aluminium concentration of upland Welsh streams: a re-examination. *Environmental Pollution* **52**, 47-62.
- Paavolainen, L., Fox, M., et Smolander, A. (2000). Nitrification and denitrification in forest soil subjected to sprinkling infiltration. *Soil Biology and Biochemistry* **32**, (5), 669-678.
- Party, J.-P., Probst, A., Février, C., et Dambrine, E. (1997). Evidence on springwater acidification in relation to bedrock buffering capacity using geographic information system (Vosges mountains, North-eastern France). In "Biogéomorphologie '97". Cambridge Publications, Villanova University, Pennsylvania, USA.
- Party, J.-P. (1999). Acidification des sols et des eaux de surface des écosystèmes forestiers français: facteurs, mécanismes et tendances. Taux d'altération sur petits bassins versants silicatés. Application au calcul des charges critiques d'acidité. Thèse de troisième cycle, Université Louis Pasteur de Strasbourg, Strasbourg, France.
- Party, J.-P., Probst, A., Thomas, A. L., et Dambrine, E. (2001a). Calcul et cartographie des charges critiques azotées en France : application de la méthode empirique. *Pollution atmosphérique* **172**, 531-544.
- Party, J.-P., Probst, A., Thomas, A. L., et Dambrine, E. (2001b). Charges critiques d'acidité en polluants atmosphériques en France : conséquences vis à vis des sols et des peuplements forestiers. *Pollution atmosphérique* **172**, 519-527.
- Pernes - Debuyser, A., et Tessier, D. (2001). Influence de matières fertilisantes sur les propriétés physique des sols : cas des 42 parcelles de l'INRA à Versailles. In "Colloque acidification des sols" (Association française pour l'étude des sols, ed.). INRA, Versailles, France. Site internet: <http://www.inra.fr/Internet/Hebergement/afes/egs/colloque-acidification.pdf>
- Picard, J. F. (2001). Acidification des sols et conséquences du chaulage sur la biodiversité végétale forestière. In "Colloque acidification des sols" (Association française pour l'étude des sols, ed.). INRA, Versailles, France. Site internet: <http://www.inra.fr/Internet/Hebergement/afes/egs/colloque-acidification.pdf>
- Pignard, G. (2000). Evolution récentes des forêts françaises : surface, volume sur pied, productivité. *Revue forestière française* **52**, (n° spécial), 27-36.
- Ponette, Q., Ulrich, E., Brethes, A., Bonneau, M., et Lanier, M. (1997). RENECOFOR - Chimie des sols dans les 102 peuplements du réseau, Office National des Forêts, Département des recherches techniques. ISBN 2-84207-100-X.
- Posch, M., De Smet, P. A. M., Hettelingh, J. P., et Downing, R. J. (1995). Calculation and mapping of critical thresholds in Europe. Status report 1995, **Rep. No. RIVM 259101004**. Coordination Center for Effects Report, Convention on Long range transboundary air pollution, RIVM, Bilthoven, the Netherlands. 198 p.
- Posch, M., De Smet, P. A. M., Hettelingh, J. P., et Downing, R. J. (1999). Calculation and mapping of critical thresholds in Europe. Status report 1999, **Rep. No. RIVM 259101009**. Coordination Center for Effects Report, Working group on effects of the Convention on long range transboundary air pollution, RIVM, Bilthoven, the Netherlands. 165 p.

- Posch, M., De Smet, P. A. M., Hettelingh, J. P., et Downing, R. J., eds. (2001a). "Calculation and mapping of critical thresholds in Europe. Status report 2001", 188 pp. RIVM, Bilthoven, the Netherlands. ISBN 90-6960-092-7.
- Posch, M., De Smet, P. A. M., Hettelingh, J. P., et Downing, R. J. (2001b). Modelling and mapping of critical thresholds in Europe status report 2001., **Rep. No. RIVM 259101010**. National institute of public health and the environment., Netherlands. 188 p.
- Posch, M., Hettelingh, J. P., et De Smet, P. A. M. (2001c). Characterization of critical load exceedances in Europe. *Water Air and Soil Pollution* **130**, (1-4), 1139-1144.
- Posch, M., Hettelingh, J. P., et Slootweg, J. (2003). Manual for dynamic modelling of soil response to atmospheric deposition, **Rep. No. 259101012/2003**. National institute for public health and the environment (RIVM), Bilthoven, the Netherlands. 71 p.
- Pretchel, A., Alewell, C., Armbruster, M., Bittersohl, J., Cullen, J. M., Evans, C. D., Helliwell, R. C., Kopacek, J., Marchetto, A., Matzner, E., Meessenburg, H., Moldan, F., Moritz, K., Veselý, J., et Wright, R. F. (2001). Response of sulphur dynamics in European catchments to decreasing sulphate deposition. *Hydrology and Earth System Sciences* **5**, (3), 311-325.
- Probst, A., Lelong, F., Viville, D., Durand, P., Ambroise, B., et Fritz, B. (1995). Comparative hydrochemical behaviour and element budgets of the Aubure (Vosges Massif and Mont - Lozère southern Massif Central) Norway spruce forested catchments. In "Forest decline and atmospheric deposition effects in the french mountains." (G. Landmann and M. Bonneau, eds.), pp. 203 - 225. Springer, Berlin, Germany.
- Probst, A., Party, J.-P., et Ertz, O. (2002). La base de données "Charges critiques": gestion et acquisition des données. *Pollution atmosphérique* **173**, 83-97.
- Psenner, R. (1999). Living in a dusty world: Airborne dust as a key factor for alpine lakes. *Water Air and Soil Pollution* **112**, (3-4), 217-227.
- Raddum, G. G., Fjellheim, A., et Hesthagen, T. (1988). Monitoring of acidification through the use of aquatic organisms. *Vehr. Internat. Verein Limnol.* **23**, 2291-2297.
- Raddum, G. G. (1998). Large scale monitoring of invertebrates: Aims, possibilities and acidification indexes. In "Workshop on biological assessment and monitoring; evaluation and models. ICP Waters Report 50/99" (G. G. Raddum, B. O. Rosseland and J. Bowman, eds.), pp. 7-16. Norwegian Institute for Water Research, NIVA, Oslo, Norway.
- Ragsdale, H. L., Lindberg, S. E., Lovett, G. M., et Schaefer, D. A. (1992). Atmospheric deposition and throughfall fluxes of base cations. In "Atmospheric deposition and nutrient cycling" (D. W. Johnson and S. E. Lindberg, eds.), pp. 235-263. Springer-Verlag, New York.
- Ramade, F. (2000). Dictionnaire encyclopédique des pollutions. Les polluants : de l'environnement à l'homme, Ediscience international.
- Ranger, J., et Nys, C. (1994). The effect of Spruce (*Picea abies* Karst.) on soil development: an analytic and experimental approach. *European Journal of Soil Science* **45**, 193-204.
- Ranger, J., Badeau, V., Dambrine, E., Dupouey, J.-L., Nys, C., et Party, J.-P. (2000). Evolution constatée des sols forestiers au cours des dernières décennies. *Revue Forestière Française* **52**, (Numéro spécial: Conséquence des changements climatiques pour la forêt et la sylviculture), 49-70.
- Rathgeber, C., Guiot, J., Roche, P., et Tessier, L. (1999). *Quercus humilis* increase of productivity in the Mediterranean area. *Annals of Forest Science* **56**, (3), 211-219.
- Rihm, B. (1994). Critical loads of acidity for forest soils and alpine lakes, *Environmental Series*, **Rep. No. 234**. Federal office of environment, forest and landscape, Berne, Germany. 68 p.
- Rimmelin, P., Dumon, J. C., Burdloff, D., et Maneux, E. (1999). Atmospheric deposits of dissolved inorganic nitrogen in the southwest of France. *Science of the Total Environment* **226**, (2-3), 213-225.
- Robert, M. (2001) Le sol et l'environnement. X-Environnement. Site internet: http://www.x-environnement.org/Jaune_Rouge/JR01/robert.html
- Robinson, C. T., Uehlinger, U., et Hieber, M. (2001). Spatio-temporal variation in macroinvertebrate assemblages of glacial streams in the Swiss Alps. *Freshwater Biology* **46**, (12), 1663-1672.
- Rodhe, H., Dentener, F., et Schulz, M. (2002). The global distribution of acidifying wet deposition. *Environmental Science & Technology* **36**, (20), 4382-4388.
- Rogora, M., Marchetto, A., et Mosello, R. (2001). Trends in the chemistry of atmospheric deposition and surface waters in the Lake Maggiore catchment. *Hydrology and Earth System Sciences* **5**, (3), 379-390.

- Römkens, P. F. A. M., et Salomons, W. (1998). Cd, Cu and Zn solubility in arable and forest soils: Consequences of land use changes for metal mobility and risk assessment. *Soil Science* **163**, (11), 859-871.
- Rosseland, B. O., Massabuau, J. C., Grimalt, J., Hofer, R., Lackner, R., Rognerud, S., et Lien, L. (2000). The ecophysiology and ecotoxicology of fishes as a tool for monitoring and management strategy of high mountain lakes and rivers in acidified areas. *Zoology-Analysis of Complex Systems* **102**, (2-3), 90-100.
- Saros, J. E., Interlandi, S. J., Wolfe, A. P., et Engstrom, D. R. (2003). Recent changes in the diatom community structure of lakes in the Beartooth Mountain Range, USA. *Arctic Antarctic and Alpine Research* **35**, (1), 18-23.
- Saxena, V. K., Stogner, R. E., Hendler, A. H., De Felice, T. P., Yeh, R. J. Y., et Lin, N. H. (1989). Monitoring the chemical climate of the Mt Mitchell State Park for evaluation of its impact on forest decline. *Tellus* **41B**, 90-109.
- Seniczak, S., Kaczmarek, S., Klimek, A., et Seniczak, A. (2002). The effect of some air pollutants on the vertical distribution of mites (Acari) in soils of young Scots pine forests in Poland. *European Journal of Soil Biology* **38**, (3-4), 311-314.
- Skjelkvåle, B. L., Mannio, J., Wilander, A., et Andersen, T. (2001a). Recovery from acidification of lakes in Finland, Norway and Sweden 1990-1999. *Hydrology and Earth System Sciences* **5**, (3), 327-337.
- Skjelkvåle, B. L., Olendrzynski, K., Stoddard, J., Tarrason, L., Traaen, T. S., Tørseth, K., Windjusveen, S., et Wright, R. F. (2001b). Assessment of trends and leaching of nitrogen at ICP Waters sites (Europe and North America), **Rep. No. 54/2001**. Norwegian Institute for water Research, NIVA, Oslo, Norway. 45 p.
- Skjelkvåle, B. L., ed. (2003). "The 15 year report: Assessment and monitoring of surface waters in Europe and North America; Acidification and recovery, dynamic modelling and heavy metals", **Vol. ICP Waters report 73/2003**, 113 pp. Norwegian Institute for Water Research, NIWA, Oslo, Norway.
- Soleille, S., Brignon, J. M., Farret, R., Landrieu, G., Le Gall, A. C., et Rouil, L. (2003). l'IIASA et la modélisation intégrée de la pollution atmosphérique transfrontière. Bilan et évaluation, *Rapport final*, **Rep. No. DRC/MECO-2003-45981/note-IIASA**. INERIS, Verneuil en Halatte, France. 66 p. Site internet: <http://www.ineris.fr/recherches/recherches.htm> (rapports de la direction des risques chroniques)
- Sposito, G., ed. (1996). "The environmental chemistry of aluminium". CRC Press/Lewis Publishers, Boca Raton, Florida, USA.
- Stoddard, J. L., Jeffries, D. S., Lükewille, A., Clair, T. A., Dillon, P. J., Driscoll, C. T., Forsius, M., Johannessen, M., Kahl, J. S., Kellogg, J. H., Kemp, A., Mannio, J., Monteith, D. T., Murdoch, P. S., Patrick, S., Rebsdorf, A., Skjelkvåle, B. L., Stainton, M. P., Traaen, T., van Dam, H., Webster, K. E., Wietling, J., et Wilander, A. (1999). Regional trends in aquatic recovery from acidification in North America and Europe. *Nature* **401**, 575-578.
- Strong, D. T., et Fillery, I. R. P. (2002). Denitrification response to nitrate concentrations in sandy soils. *Soil Biology and Biochemistry* **34**, (7), 945-954.
- Stumm, W., et Morgan, J. J. (1981). Aquatic chemistry. An introduction emphasizing chemical equilibria in natural waters, 2nd/Ed. John Wiley and Sons, New York, USA. ISBN 0-471-04831-3.
- Sverdrup, H., et Warfinge, P. (1993). The effect of soil acidification on the growth of trees, grass and herbs as expressed by the (Ca+Mg+K)/Al ratio., *Report in Ecology and environmental engineering 2*. Department of Chemical Engineering II, Lund University, Lund, Sweden.
- Sverdrup, H., et Warfinge, P. (1995). Estimating field weathering rates using laboratory kinetics. In "Weathering kinetics of silicate minerals. Reviews in Mineralogy." (A. White and S. Brantley, eds.), Vol. 8, pp. 485-541. Mineralogical Society of America.
- Tao, F., Hayashi, Y., et Lin, E. (2002). Soil vulnerability and sensitivity of acid deposition in China. *Water Air and Soil Pollution* **140**, 247-260.
- Thiebaut, G., et Muller, S. (1998). Aquatic macrophyte communities as water quality indicators: example of the river Moder (North-East France). *Annales De Limnologie-International Journal of Limnology* **34**, (2), 141-153.
- Thiebaut, G., Vanderpoorten, A., Guérol, F., Boudot, J. P., et Muller, S. (1998). Bryological patterns and streamwater acidification in the Vosges Mountains (NE France): An analysis tool for the survey of acidification processes. *Chemosphere* **36**, (6), 1275-1289.

- Thiebaut, G., Guérol, F., et Muller, S. (2002). Are trophic and diversity indices based on macrophyte communities pertinent tools to monitor water quality? *Water Research* **36**, (14), 3602-3610.
- Thimonier, A., Dupouey, J.-L., Bost, F., et Becker, M. (1994). Simultaneous eutrophication and acidification of a forest ecosystem in north-east France. *New phytologist* **126**, 533-539.
- Trichet, P., Jolivet, C., Arrouays, D., Loustau, D., Bert, D., et Ranger, J. (1999). Le maintien de la fertilité des sols forestiers landais dans le cadre de la sylviculture intensive du pin maritime. *Etude et gestion des sols* **6**, (4), 197-214.
- UBA (1996). Manual on methodologies and criteria for mapping critical levels / loads and geographical areas where they are exceeded, *UN/ECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution*, **Rep. No. Text 71/96**. Federal Environment Agency, Berlin, Germany.
- Ulrich, E., Williot, B., et Landmann, G. (1993). Les dépôts atmosphériques en France de 1850 à 1990, ONF, ADEME, INRA. ISBN 2 904 384 48-0.
- Ulrich, E., et Bonneau, M. (1994). La santé des forêts (France) en 1993. Ministère de l'agriculture et de la pêche (DERF, département de la Santé des Forêts), Paris, France. 120 p.
- Ulrich, E., Lanier, M., et Combes, D. (1998). RENECOFOR - Dépôts atmosphériques, concentrations dans les brouillards et dans les solutions du sol (sous réseau CATANEAT) - Rapport scientifique sur les années 1993 à 1996, *ISBN 2-84207-134-4*. Office national des forêts, Direction technique, Fontainebleau, France. 135 p.
- Ulrich, E., Lanier, M., et Roman-Amat, B. (1999). Estimation of Nitrogen Deposition on 27 RENECOFOR Plots (France) from 1993 to 1996. In "Causes and consequences of accelerating tree growth in Europe. Proceeding No 27." (T. Karjalainen, H. Spieker and O. Laroussinie, eds.). European Forest Institute, Joensuu, Finland. Site internet: <http://www.efi.fi/publications/Proceedings/>
- UNECE (2003). Atelier d'experts sur les charges critiques empiriques pour les dépôts d'azote sur les écosystèmes (semi-) naturels, *Résumé analytique*, **Rep. No. EB.AIR/WG.1/2003/14**. Executive body for the convention on long-range transboundary air pollution, Working group on effects, Geneva, Switzerland. 13 p. Site internet: <http://www.unece.org/env/documents/2003/eb/wg1/eb.air.wg1.2003.14.f.pdf>
- UNIFA (2002) Les industries de la fertilisation: Etudions ensemble. UNIFA. Site internet: <http://www.unifa.fr/home5/oligo.htm>
- van der Burg, J. (1988). Voorlopige criteria voor de beoordeling van de minerale voedinstoestand van naaldeboomsoorten op basis van de naaldsamenstelling in het najaar., **Rep. No. 522**. Rijksinstituut voor onderzoek in de bos-en landschapsbouw "de Dorschkamp", Waneningen, the Netherlands. 1-20 p.
- Veselý, J., Majer, V., Kopacek, J., et Norton, S. A. (2003). Increasing temperature decreases aluminum concentrations in Central European lakes recovering from acidification. *Limnology and Oceanography* **48**, (6), 2346-2354.
- Waide, J. B., Caskey, W. H., Todd, R. L., et Boring, L. R. (1987). Changes in soil nitrogen pools and transformations following forest clear cutting. In "Forest hydrology and ecology at Coweeta" (W. T. Swank and D. A. J. Crossley, eds.), pp. 221-232. Springer Verlag, Berlin, Germany.
- Walse, C., Blanck, K., Bredemeier, M., Lamersdorf, N., Warfvinge, P., et Xu, Y.-J. (1998). Application of the SAFE model to the Solling clean rain roof experiment. *Forest Ecology and Management* **101**, (1-3), 307-317.
- Wolf, I., et Brumme, R. (2002). Contribution of nitrification and denitrification sources for seasonal N₂O emissions in an acid German forest soil. *Soil Biology and Biochemistry* **34**, (5), 741-744.
- Wright, R. F., Norton, S. A., Brakke, D. F., et Frogner, T. (1988). Experimental verification of episodic acidification of freshwaters by sea salts. *Nature* **334**, 422-424.
- Wright, R. F., et Lie, M. C. (2002). Workshop on models for biological recovery from acidification in a changing climate. 9-11 September 2002 in Grimstad, Norway. Workshop report, **Rep. No. LNR 4589-2002**. Norwegian Institute for Water Research, NIVA, Oslo, Norway. 42 p.
- Zechmeister-Boltenstern, S., Hahn, M., Meger, S., et Jandl, R. (2002). Nitrous oxide emissions and nitrate leaching in relation to microbial biomass dynamics in a beech forest soil. *Soil Biology and Biochemistry* **34**, (6), 823-832.

LISTE DE DIFFUSION

Nom	Adresse/Servece	Nb
	Dossier maître	1
Sandrine Rocard	Ministère de l'écologie et du développement durable, DPPR, 20 avenue de Ségur - 75302 Paris 07 SP	1
Marc Rico	Ministère de l'écologie et du développement durable, DPPR, 20 avenue de Ségur - 75302 Paris 07 SP	1
Monique Allaux	Ministère de l'écologie et du développement durable, DPPR, 20 avenue de Ségur - 75302 Paris 07 SP	20
Jean-Luc Flot	Chef du Département de la Santé des Fôrets Ministère de l'Agriculture, de l'Alimentation, de la Pêche et des Affaires Rurales Direction de l'espace rural et de la forêt 19 Avenue du Maine – 75732 Paris Cédex 15	1
Bénédicte Oudart	CITEPA 10 rue du Faubourg Poissonnière – 75010 Paris	1
Pierre Guyon de Montlivault	Direction de l'Eau Ministère de l'écologie et du développement durable	1
Guy Landmann	Chargé de mission, Groupement d'Intérêt Public Ecofor, 19, avenue du Maine, 75 732 Paris cedex 15	1
Anne Probst	Responsable Equipe "Eaux-Sol-Erosion", Laboratoire des Mécanismes et Transferts en Géologie (LMTG), UMR 5563, CNRS/IRD/UPS, 38, rue des 36 Ponts, 31400 TOULOUSE	1
Jean Paul Party	Sol Conseil, 2 rue de Roppenheim, 67000 Strasbourg	1
Laurence Galsomiès	ADEME, 27, rue Louis Vicat 75737 Paris cedex 15	1
François Guérol	Laboratoire Ecotoxicité, Biodiversité, Santé Environnementale (EBSE), Université de Metz, Rue du Général Délestraint, 57070 Metz	1
Jean Charles Massabuau	Université Bordeaux 1, Laboratoire d'Écophysiologie et Écotoxicologie des Systèmes Aquatiques (LEESA) Place du Docteur Peyneau 33120 Arcachon	1
Etienne Dambrine	INRA Nancy, Unite Cycles Biogéochimiques, 54280 Champénois	1
Erwin Ulrich	Responsable national du réseau RENECOFOR, Office National des Forêts, Direction Technique, Département Recherche et Développement, Boulevard de Constance, 77300 Fontainebleau	1
Eric Joos	EDF, Chatou	1

Régis Farret	DRA / EVAL	1
Guy Landrieu	MECO	1
Anne Christine Le Gall	MECO	5
Frédéric Marcel	DRCG	1
Jean-François Raffoux	DSE	1
Michel Nominé	DRCG	1
Vincent Laflèche	DIR	1
Georges Labroye	DIR	1
DOCT		1
	TOTAL	48

PERSONNES AYANT PARTICIPÉ À L'ÉTUDE

Travail	Nom	Qualité	Date	Visa
Rédacteur	Anne Christine Le Gall	Ingénieur études et recherche		
Responsable d'affaire	Régis Farret	Responsable d'unité		
Vérificateur	Régis Farret	Responsable d'unité		
Approbateur	Guy Landrieu	Responsable d'unité		

Fin du Complément non destiné au client