

PROGRAMME "CHARGES CRITIQUES"

DÉTERMINATION ET CARTOGRAPHIE DES CHARGES CRITIQUES
EN POLLUANTS ATMOSPHÉRIQUES DANS LES VOSGES

Rapport scientifique

Période 1994-1996

DOCUMENT

Agence de l'eau
Rhin-Meuse

17571-96

Jean-Paul PARTY*, Anne PROBST*, Clotilde FÉVRIER*, Étienne DAMBRINE**, AL. THOMAS"

Présenté par

- le Centre de Géochimie de la Surface (CGS, UPR 06251 du CNRS) de Strasbourg, sous la responsabilité scientifique de Anne PROBST*, Chargée de Recherche au CNRS

- le Centre de Recherches Forestières (CRF) de l'INRA Nancy sous la responsabilité scientifique de Étienne DAMBRINE**, Chargé de Recherche à l'INRA

au

- Ministère de l'Environnement

N° de contrat 94160

Juin 1996

- CGS, 1 rue Blessig, 67084 STRASBOURG Cedex
Tél. 03 88 35 85 93 Fax 03 88 36 72 35 Email aprost@illite.u-strabg.fr
- ** INRA - CRF - Laboratoire Sols et Nutrition des Arbres Forestiers
54280 CHAMPENOUX
Tél. 03 83 39 40 41 Fax 03 83 39 40 69 Email dambrine@nancy.inra.fr

PLAN	page
RÉSUMÉ	3
1. INTRODUCTION	4
2. ÉVOLUTION DE LA CHIMIE DES EAUX DE SOURCES D'ALIMENTATION ENEAUPOTABLEDESVOGES	6
21. Matériels et méthodes	
• Origine, critères de recueil et validité des données. Limites de l'approche	6
* Méthodes de recueil, de tri et d'analyse	7
* Choix des sources étudiées et types de roches drainées	9
22. Résultats	
* Les eaux de sources disponibles : caractéristiques générales	10
• Évolution générale des pH	11
* Évolution du pH et des éléments chimiques majeurs selon les types de roches	13
* Répartition spatiale de l' acidité des eaux de sources selon les roches drainées	21
23. Discussion	
* Interprétations des résultats obtenus sur les différents types de roches	24
* Autres variables explicatives à considérer	25
• Un comportement particulier : les nitrates	27
3. CARTOGRAPHIE DES CHARGES CRITIQUES POUR LES SOLS DES VOSGES : CARACTÉRISATION DES SOLS DE BASSINS-VERSANTS DE RÉFÉRENCE	29
31. Méthodes, données disponibles et hypothèses de travail	
* Données de base nécessaires au calcul des charges critiques pour les sols	29
* Données disponibles pour le massif des Vosges : typologie des sols, analyses géochimiques des roches et suivis de sites ateliers	29
• Critères retenus et choix des bassins	32
32. Résultats sur les bassins versants types	
• Cartographie et lois de répartition des sols	33
• Les types de sols par bassins-versants types : principales caractéristiques	35
33. Discussion	
* Interprétation des résultats obtenus par types de bassins versants : relations sols-roches-eaux (sources et ruisseaux) vis-à-vis de l'acidité et l'azote	38
* Validité des sites choisis et possibilités d'extrapolation	40
4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	41
REMERCIEMENTS	43
BIBLIOGRAPHIE	44
ANNEXE	48

RÉSUMÉ

En France, ces dernières années, l'inventaire des données disponibles pour le calcul des charges critiques d'acidité a été réalisé. Une cartographie préliminaire des sensibilités aux charges critiques pour le Massif Vosgien a été proposée, puis extrapolée à la France entière. Compte tenu de données quantitatives limitées et fragmentaires disponibles pour les calculs à propos des sols forestiers, nous avons élaboré un programme d'acquisition de nouvelles données nécessaires à l'application de méthodes plus précises (modèle du SSMB en particulier).

Par ailleurs, pour les eaux de sources, des données disponibles dans les DDASS sur les 2 ou 3 dernières décennies ont été informatisées dans le massif des Vosges. Il s'agissait de compléter les données déjà acquises sur les ruisseaux et d'évaluer les possibilités d'application des modèles dynamiques permettant de prévoir des évolutions à long terme (par exemple le modèle MAGIC). Ces méthodes nécessitent de longues séries de données temporelles que seul ce suivi de la qualité des eaux peut actuellement nous fournir sur le territoire français. Des travaux de ce type ont déjà été réalisés dans d'autres pays, la Suède par exemple.

Dans cette optique, les travaux présentés dans ce rapport ont 2 objectifs :

- d'une part, étudier les évolutions de la composition chimique des eaux des sources des Vosges,
- d'autre part, caractériser des bassins-versants de références selon leurs types de roches, d'altérites et de sols, en vue d'acquérir les valeurs d'altération de référence nécessaires aux calculs des charges critiques d'acidité.

Pour les eaux de sources, **l'état actuel de l'acidification** des ruisseaux a été particulièrement **confirmé** par l'étude du pH des sources. Un échantillon de 200 sources sur les 2 000 que compte le massif ont été retenues dans les régions a priori sensibles à l'**acidification**. Le pH est acide pour environ 20 % des 60 sources étudiées sur grès, pour un peu plus de 30 % des 120 sources sur granites, soit moins de 10 % pour l'ensemble des 2 000 sources du massif. L'analyse spatiale de l'acidification des sources menée pour le département des Vosges indique une acidification "en profondeur" des écosystèmes vosgiens plus importante que ne le laissent supposer les résultats obtenus sur les ruisseaux. Les données disponibles pour certaines sources drainant les grès ont permis de mettre en évidence, sur de longues périodes, des diminutions de pH et d'alcalinité, et surtout des augmentations de concentrations en éléments majeurs des eaux de sources, par exemple calcium, sodium, potassium ou encore nitrates. Ainsi les eaux de source qui drainent les Granites des Crêtes présentent des teneurs en nitrates qui ne cessent de **croître** (jusqu'à 15 mg/l) depuis les années 60.

Pour les sols, les mesures effectuées sont conformes aux caractéristiques déjà établies sur d'autres paramètres (eaux de surface et roches). Sur roches pauvres en minéraux altérables (grès et granites acides), les sols, les arènes, les roches, les eaux de sources et les ruisseaux sont fortement acidifiées. Toutefois, sur ces roches acides, quelques **particularités** apparaissent à propos des horizons organiques de surface et des arènes situées au contact de la roche dans certains cas (faciès géochimiques des roches moins sensibles à l'acidification, influence positive ou négative des formations superficielles d'origine glaciaire selon leur situation géographique). Enfin, dans le cas de matériaux riches en minéraux altérables comme le sont les roches d'origine volcanique ou encore la plupart des gneiss des Vosges, la podzolisation et l'acidification sont relativement modérées et le pouvoir tampon résultant est plus élevé.

En perspective, ces travaux doivent être étendus à d'autres régions sensibles (Ardennes, Massif Central), sur la base de nouvelles données pour les sols (valeurs d'altération à partir d'échantillons de roche, d'altérite et de sols) et les eaux (analyses géochimiques de ruisseaux, inventaire des sources comportant les données requises pour l'utilisation des modèles dynamiques, en particulier les cations). Enfin, outre ces paramètres, l'évaluation du drainage qui est un autre paramètre essentiel nécessaire à l'utilisation des méthodes de calcul des charges critiques, doit être amélioré à partir d'une synthèse des travaux existants en matière de bilan hydrique pour les formations naturelles du territoire français.

Mots clés : charges critiques, acidification, acidité, chimie des eaux, sources, ruisseaux, sols forestiers, bassins versants, granites, grès, formations superficielles, Nord-Est de la France, Vosges

1. INTRODUCTION

Les "charges critiques" expriment la sensibilité des écosystèmes à la pollution atmosphérique établie par le niveau critique atteint par un ou plusieurs polluants à partir duquel des effets négatifs apparaissent sur l'environnement (Nilsson, 1986). En Europe, les charges critiques d'acidité ont été définies, calculées et **cartographiées** ces 6 dernières années de façon évolutive au fur et à mesure de l'état des connaissances (Hettelingh et *al.*, 1991, Downing et *al.*, 1993, Posch et *al.*, 1995). L'objet de cette cartographie est de donner des bases techniques et scientifiques pour réduire raisonnablement les émissions de polluants atmosphériques en accord avec des niveaux critiques définis pour chaque pays. Dans ce sens, la charge critique pour un écosystème est définie par l'apport atmosphérique maximum tolérable vis-à-vis des récepteurs de son environnement.

Le concept de charge critique a d'abord été appliqué dans les pays nordiques d'Europe et en Amérique du Nord en rapport avec l'acidification des eaux de surface. Depuis 1989, la Commission Économique des Nations Unies pour l'Europe (UNECE), a adopté le concept de charge critique pour les protocoles de réduction des émissions en particulier pour le dioxyde de soufre (SO₂) et les oxydes d'azote (NO_x).

En France, c'est au début des années 80 que les premières études sur les effets de la pollution atmosphérique transfrontalière sur la qualité des eaux de surface (Bourrié, 1978; Fritz, 1982; Fritz et *al.*, 1984; Dupraz et *al.*, 1985; Massabuau et *al.*, 1987; Probst et *al.*, 1987) et des écosystèmes forestiers (Bouvarel, 1984; **Bonneau**, 1985) ont été menées, notamment dans le massif des Vosges et du Mont-Lozère dans le Massif Central. Dans le **prolongement** de ces travaux, les recherches sur les charges critiques ont été initiées dans notre pays à partir de **1991/1992** par l'ADEME et le Ministère de l'Environnement.

Ces dernières années, nous avons réalisé l'inventaire des données disponibles pour le calcul des charges critiques (**Party et al.**, 1993), proposé une cartographie préliminaire des sensibilités aux charges critiques pour le Massif Vosgien (**Party et al.**, 1994), extrapolée ensuite à la France (**Party et Probst**, 1995). Ce sont des méthodes dites de niveau 0 qui ont été utilisées. Elles reposent essentiellement sur l'utilisation de données qualitatives (avis d'experts, croisement de cartes...). Compte tenu de données quantitatives limitées et fragmentaires disponibles pour les calculs, ces travaux nous ont conduit à élaborer un programme d'acquisition de nouvelles données nécessaires à l'application de méthodes dites de niveau 1 (modèle du SSMB en particulier pour les sols). Les calculs élaborés pour les eaux de surface (modèle du SSWC) ont fait l'objet de publications précédentes (**Party et al.**, 1995, 1996 ; Février 1996).

Par ailleurs, l'existence de données chimiques d'eaux de sources dans le massif des Vosges enregistrées sur les 2 ou 3 dernières décennies nous a incité à entreprendre leur informatisation pour évaluer les possibilités d'application des méthodes de niveau 2 (modèles dynamiques permettant de prévoir des évolutions à terme, par exemple le modèle MAGIC). Ces méthodes nécessitent de longues séries de données temporelles que seul ce suivi de la qualité des eaux peut actuellement nous fournir sur le territoire français. Des travaux de ce type ont déjà été réalisés dans d'autres pays, la Suède par exemple (Von Bromsen, 1985 ; Maxe, 1995).

Dans cette optique, les travaux présentés dans ce rapport ont 2 objectifs

- d'une part, étudier les évolutions de la composition chimique des eaux des sources des Vosges, à partir des données d'analyses collectées en routine par les DDASS (Direction Départementale de l'Action Sanitaire et Sociale), en vue d'examiner les possibilités d'utilisation de modèles dynamiques pour les charges critiques (méthodes de niveau 2),

- d'autre pan, caractériser des bassins-versants de références selon leurs types de roches, d'altérites et de sols, en vue d'acquérir des valeurs d'altération de référence nécessaires aux calculs des charges critiques d'acidité par les méthodes de niveau 1.

En effet, jusqu'à présent, seules les données acquises au niveau du bassin versant d'Aubure (Probst et *al.*, 1992, 1995 a et b ; Dambrine *et al.*, 1992, 1995) et de quelques rares autres sites ont permis de suivre et de quantifier l'impact de la pollution atmosphérique sur les eaux de surface, les sols et la végétation dans les Vosges.

Pour les eaux de surface, ce sont en **priorité** les sources du versant lorrain du massif vosgien (départements de Moselle, de Meurthe-et-Moselle et des Vosges), plus sensible à l'acidification que le versant alsacien (Probst et *al.*, 1990 ; Party et *al.*, 1993, 1995), que nous avons considéré ici.

Pour les sols, les **résultats** présentés ici portent sur l'ensemble du massif des Vosges. Ils seront étendus ultérieurement aux Ardennes et au Massif Central considérés comme 2 autres régions sensibles aux dépôts atmosphériques.

4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les travaux présentés dans ce rapport avaient 2 objectifs

1. étudier les évolutions de la composition chimique des eaux des sources des Vosges gréseuses, à partir des données d'analyses collectées en routine par les DDASS (Direction Départementale de l'Action Sanitaire et Sociale),

2. caractériser des bassins-versants de références selon leurs types de roches, d'altérites et de sols, en vue d'acquérir des valeurs d'altération de référence nécessaires aux calculs des charges critiques d'acidité.

Les eaux de sources : vers l'utilisation de modèles dynamiques ?

Les analyses de contrôle de potabilité effectuées par les services des DDASS, nous ont permis d'étudier sur une échelle de temps assez longue quel était l'étendue de l'acidité et l'ampleur de l'acidification des eaux de sources sur le versant lorrain des Vosges.

Ainsi, pour les granites, il s'est avéré que près d'un tiers des sources retenues (un peu plus de 100 sur un total de 2 000 dans le massif vosgien) ont un pH \leq 5.7. La distribution des pH semble liée à la nature du granite drainé par les eaux de source concernées. Ainsi, le pH est d'autant plus faible que les eaux drainent les granites du Sud des Vosges (région de Remiremont).

Les teneurs en nitrates suivent différentes **évolutions (stabilité ou croissance)** pour différents niveaux de teneurs (faibles $<$ 1 mg/l ou plus élevées). Mais surtout, il apparaît distinctement que les eaux de source qui drainent des granites (par exemple les Granites des Crêtes), présentent des teneurs en nitrates qui ne cessent de croître (jusqu'à 15 mg/l) depuis les années 60. Les paramètres chimiques pH et teneurs en NO_3^- étudiés de façon indépendante, laissent donc transparaître une prédisposition des eaux de source du département des Vosges à l'acidification.

Pour les arès, l'état actuel de l'acidification des ruisseaux a été particulièrement confirmé par l'étude du pH des sources retenues (une soixantaine sur un total de 2 000 dans le massif vosgien), puisque 22 % d'entre elles présentent un pH acide. Trois faits majeurs apparaissent dans l'étude des eaux de sources sur les différents faciès gréseux :

- 1- les sources localisées sur le faciès des grès vosgiens s'acidifient de façon régulière depuis le début des années 1970.
- 2- les pH et le TAC des sources situées sur des grès plus argileux, du type grès intermédiaires ou grès à Voltzia, sont stables ou très légèrement décroissants, mais restent toujours supérieurs à 6,5.
- 3- la présence de conglomérat principal sur les bassins versants drainés par les sources semble contribuer fortement à l'augmentation de certains paramètres chimiques, par exemple les concentrations en nitrates.

Les données disponibles pour les sources drainant les grès ont permis de mettre en évidence des relations, sur de longues périodes, entre les évolutions du pH et de l'alcalinité, et surtout entre les évolutions de pH et les concentrations en éléments majeurs des eaux de sources. Ces relations ont permis de différencier les faciès gréseux suivant leurs capacités à neutraliser les eaux de sources. Ainsi, les grès vosgiens très pauvres en cations basiques possèdent un faible pouvoir tampon, tandis que les grès plus riches en argiles, du type grès à Voltzia, permettent de retarder l'acidification des eaux. Enfin, les sources dont les bassins versants sont formés de trois faciès gréseux (grès vosgiens, conglomérat principal et grès intermédiaires) présentent des évolutions variées, vraisemblablement en relation avec le pourcentage et la position topographique des différents types de grès.

Enfin, l'analyse spatiale de l'acidification des sources du département des Vosges indique une acidification "en profondeur" des écosystèmes vosgiens plus importante que ne le laissaient supposer les résultats obtenus sur les ruisseaux.

L'intérêt d'utiliser des modèles dynamiques (méthodes de niveau 2 pour calculer les charges critiques, tel le modèle MAGIC) semble malgré tout limité à partir de ces données. Seules quelques sources présentent les données requises, en ce qui concerne les **anions** et en particulier les cations basiques. Elles sont situées sur grès dans le Nord-Ouest des Vosges. Aucune source sur granites ne présente ce type de données. Néanmoins, dans le but d'utiliser un SIG sur l'ensemble de la France pour le calcul des charges critiques, il semble aujourd'hui indispensable, avec le concours du Ministère de la Santé, de vérifier dans tous les départements français présentant des zones sensibles, la présence de sources renseignées pour ce type de paramètres. Ceci constitue le seul recul dans le temps pour mener une calibration des modèles dynamiques de calcul des charges critiques d'acidité.

Les sols : un besoin de bilans d'altération sur l'ensemble roche-altérte-sols

Pour les Vosges, les caractéristiques des sols sur les bassins versants étudiés sont conformes aux caractéristiques déjà mesurées sur d'autres paramètres. Sur roches pauvres en minéraux altérables (grès et granites acides), les sols, les arènes, les roches, les eaux de sources et les arènes sont fortement acidifiées. Toutefois, sur ces roches acides, quelques **particularités** apparaissent à propos des horizons organiques de surface et des arènes situées au contact de la roche. C'est le cas lorsque le sol a été formé à partir de la roche en place si celle-ci présente des faciès géochimiques qui ne se classent pas parmi les plus acides (granite des Crêtes par exemple). En revanche, une roche trop pauvre en minéraux altérables ou recouverte par des matériaux d'origine glaciaire peu perméables limitent la capacité de neutralisation de l'acidité des solutions de sol. C'est souvent le cas sur le versant Lorrain des **Vosges**. Toutefois, si les formations superficielles sont perméables, comme sur le versant Alsacien des Vosges dans le cas **d'Aubure** par exemple, c'est un facteur de neutralisation de l'acidité. Enfin, dans le cas de matériaux riches en minéraux altérables comme le sont les roches d'origine volcanique ou encore la plupart des gneiss des Vosges, la podzolisation et l'acidification sont relativement modérées, le complexe absorbant est un peu mieux pourvu en cations basiques échangeables et, en conséquence, le pouvoir tampon résultant est plus élevé.

Pour le reste du territoire français, outre les données existantes vis-à-vis des sols mentionnées pour quelques régions, 5 nouveaux profils de sols ont été réalisés dans les Ardennes forestières sur les mêmes principes que dans les Vosges (Party et al., 1994 ; Février, 1996). D'autre part, 10 sites du sous-réseau CATAENAT du réseau RENECOFOR (Ulrich, 1995) ont été retenus vis-à-vis des sensibilités à l'acidification des écosystèmes français. Des profils de sols ont été échantillonnés sur ces sites de référence. Ils permettront de consolider l'extrapolation au territoire français des résultats établis dans les Vosges (Party et al., 1995) en utilisant les complémentarités des réseaux existants (Party et al., 1997, sous presse).

Au total pour l'ensemble du territoire français, 40 profils ont été caractérisés et analysés (25 dans les Vosges, 5 dans les Ardennes, 10 pour le reste du territoire français). Ces analyses permettent une caractérisation des différents types de sols au sens pédologique du terme (évolution et mode de répartition sur sites ou bassins versants). Elles permettent aussi d'établir des relations générales avec les autres facteurs de l'environnement. Toutefois, pour utiliser des modèles de calcul des charges critiques établis en Europe (méthode du SSMB en particulier, Hettelingh, 1991), ces données doivent être complétées par l'établissement de valeurs d'altération. Nous avons vu que les valeurs avaient été estimées jusqu'ici en référence à 2 ou 3 cas bien connus dans les Vosges. Ceci a permis d'établir une hiérarchie vraisemblable confirmée par l'exploitation des données géochimiques de roches cristallines (Stussi, 1995). Néanmoins, les valeurs d'extrapolation restent approximatives. Pour passer à des mesures plus précises, les travaux en cours ont pour objet :

- de réaliser des analyses chimiques totales sur les roches, les arènes et les horizons de sols des 40 profils retenus pour le territoire français ; ceci représente environ 200 échantillons,
- de reconstituer la minéralogie de chaque échantillon par calcul normatif, par exemple,

- d'effectuer des bilans isovolumiques **et/ou** d'appliquer le modèle PROFILE sur ces résultats pour déterminer les valeurs d'altération qui permettront un calcul des charges critiques scientifiquement fondé par la méthode du SSMB.

Ainsi, le paramètre altération essentiel à ces calculs sera plus précisément défini pour le territoire français. En ce qui concerne l'autre point important du calcul qu'est le drainage **Q**, la détermination de bilans hydriques précis étant lourde et longue à mettre en oeuvre, les modèles existants seront utilisés soit :

- un modèle de bilan hydrique dans les Landes sous peuplements de pin maritime (Loustau et **Cochard, 1991**),
- un modèle de bilan hydrique en Lorraine sous peuplements de chênes (**Bréda, 1994**),
- un modèle de bilan hydrique dans les Vosges et dans les Ardennes sous peuplements d'épicéas (Biron, 1998 ; Granier **et al., 1995**),
- un modèle global à l'échelle de la France et de l'Europe (Loveland, 1994).

Ces données, les plus fiables actuellement à notre disposition doivent permettre d'étendre à court terme les calculs de charges **critiques** de façon satisfaisante à l'ensemble de la France.

REMERCIEMENTS

Ces travaux ont pu être réalisés grâce au support financier du Ministère de l'**Environnement**.

Les auteurs remercient tout particulièrement :

- pour l'accès aux analyses d'eaux des sources AEP du massif vosgien : les services "Santé et Environnement" des DDASS 54, 57, 67, 68 et 88,
- pour le stockage des données de sources AEP sur support informatique, K. SEMHI et E. DELAITRE (CGS, CNRS Strasbourg) et pour leur traitement partiel, M. TROADEC et L. **ANSTETT** (Maitrise de Géologie de l'ULP de Strasbourg),
- pour leurs réflexions à propos d'une possible extension des résultats à l'échelle française : E. ULRICH et A. BRETHERS (ONF Fontainebleau), B. GUILLET (CNRS Orléans), D. KING (INRA Orléans), G. **LANDMANN** (DSF, Ministère de l'Agriculture), Jf? LEGROS (INRA Montpellier), JM. STUSSI (CRPG, CNRS Nancy).