



20445 RM



Agence de l'eau
Paris-Seine-Normandie



LE FEU EN FRANCE

DE 1850 A 1990

Erwin ULRICH et Brigit WILLIOT
avec la collaboration de Guy LANDMANN

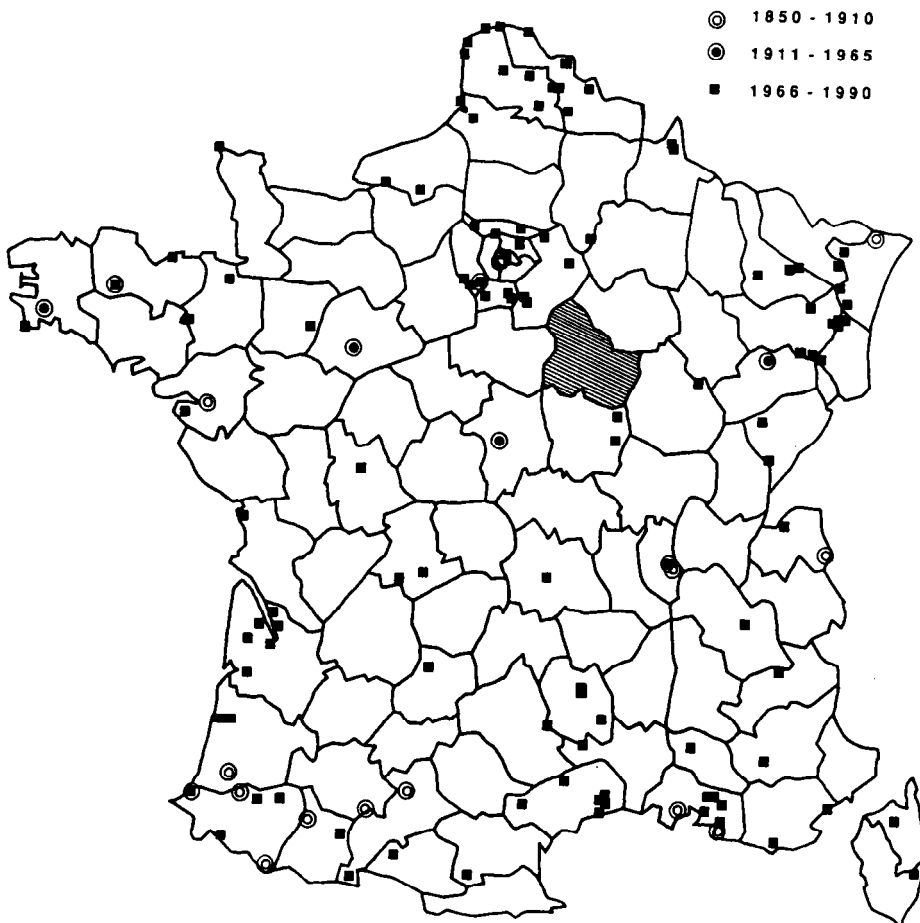


Ademe



LES DEPOTS ATMOSPHERIQUES EN FRANCE

DE 1850 A 1990



Dépôts en milieu rural et en forêt
Dépôts dans les zones industrialisées
et urbaines

Erwin ULRICH et Brigit WILLIOT

avec la collaboration de **Guy LANDMANN**
(Extended abstract)

AVANT - PROPOS

Cette synthèse réunit un grand nombre de données dont beaucoup n'avaient jamais été publiées. De nombreux chercheurs, gestionnaires de **réseaux**, responsables de laboratoires d'analyse et administrateurs se sont montrés très motivés par le projet d'une synthèse sur les dépôts atmosphériques en France. Ce document n'aurait pas vu le jour sans leur collaboration.

On considère en général que peu de travaux ont été réalisés sur ce sujet en France. Nombreux sont ceux qui le déplorent. Les premières recherches basées sur les diverses banques de données bibliographiques ont, de fait, été peu fructueuses. Nous avons donc essayé de contacter le plus grand nombre de personnes possible. Nous avons ainsi pu identifier les institutions, organismes et chercheurs qui ont fait ou font des mesures de dépôts, et avoir **accès** à leurs publications ou leurs rapports internes.

Comme l'atteste ce document, les données françaises sur les **dépôts** atmosphériques sont relativement nombreuses, mais aussi très hétérogènes, ce qui a constitué la difficulté majeure de cette synthèse.

Cette synthèse est basée sur des travaux qui ont souvent duré plusieurs années, voire des dizaines d'années, ce qui signifie à la fois un important engagement personnel et des dépenses considérables de ces organismes.

Nombreuses sont également les citations de travaux réalisés à l'étranger. On trouvera à la fin de cet ouvrage deux listes distinctes : une pour les références françaises, l'autre pour les références étrangères, ceci pour plus de clarté.

SOMMAIRE

1. RESUME	1
1.1. LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX	3
2. EXTENDED ABSTRACT	7
2.1. LIST OF FIGURES AND TABLES (english translation).....	10
3. INTRODUCTION	15
4. OBJECTIFS.....	19
5. DEFINITIONS.....	21
6. SELECTION DES DONNEES PRISES EN COMPTE DANS LA PERIODE DE 1966 A 1990.....	23
6.1. PROBLEMES D'EVALUATION DE LA FIABILITE DES METHODES D'ANALYSE ET D'ECHANTILLONNAGE	23
7. LE PASSE	25
7.1. LES PREMIERES MESURES DE DEPOTS ATMOSPHERIQUES HUMIDES : LA PERIODE DE 1850 A 1910.....	25
7.2. ALBERT-LEVY : LE PIONNIER DU "MONITORING" DES DEPOTS ATMOSPHERIQUES HUMIDES EN FRANCE (1876-1907).....	33
7.2.1. Les protocoles d'études et premiers enseignements	33
7.2.2. Evolution du dépôt d'azote ammoniacal et nitrique de 1876 à 1986 à Montsouris..	35
7.2.3. Reconstitution de la méthode d'analyse d'azote ammoniacal, utilisée par ALBERT-LEVY	41
7.3. LA "PERIODE DE TRANSITION" : 1911 A 1965	43
8. LE PRESENT	45
8.1. EVOLUTION DES EMISSIONS EN FRANCE.....	45
8.2. LES DEPOTS ATMOSPHERIQUES HUMIDES DE 1966 A 1990.....	49
8.2.1. Origine des dépôts atmosphériques.. ..	49
8.2.1.1. Résultats du "European Air Chemistry Network".....	49
8.2.1.2. Origine marine et non-marine	51
8.2.1.3. Origines géographiques des concentrations dans les précipitations	52
8.2.1.4. Origines géographiques et dépôt annuel	57
8.2.2. La qualité des précipitations.....	60
8.2.2.1. Relation entre les concentrations et la durée de l'événement pluvieux.. ..	60
8.2.2.2. Relation entre la pluviosité par événement et sa composition	61
8.2.2.3. Influence de la durée des périodes sèches sur le "wash-out".....	61

8.2.3. Tendances spatio-temporelles des dépôts humides stricto sensu ("wet-only deposition").	. 62
8.2.4. Tendances spatio-temporelles des dépôts totaux (" bulk deposition").	. 73
8.2.5. Tendances spatio-temporelles des dépôts sous forêt (pluiolessivats) et dans les landes bretonnes ("Phroughfall deposition").	. 84
8.2.5.1 . Différences entre les dispositifs de mesure..	. 84
8.2.5.2. Interprétation des mesures..	. 85
8.2.5.3. Facteur d'enrichissement ou d'appauvrissement..	. 87
8.2.5.4. Etudes de gradients ..	. 87
8.2.5.5. Effet de l'essence et de l'âge sur les dépôts sous couvert forestier..	. 91
8.2.5.6. Répartition spatiale des dépôts sous couvert forestier..	. 91
8.2.6. Tendances spatio-temporelles des dépôts dans les zones industrialisées et urbaines ("deposition in urban areas ").	. 97
8.3. LES DEPOTS DUS AUX BROUILLARDS..	. 104
8.4. EVOLUTION DES DEPOTS ATMOSPHERIQUES A L'ETRANGER ..	. 108
8.4.1. Comparaison des dépôts annuels ..	. 108
8.4.2. Comparaison des évolutions à long terme..	. 108
9. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES..	. 115
10. REFERENCES FRANCAISES..	. 119
11. REFERENCES ETRANGERES..	. 127
12. ANNEXES ..	131

1. RESUME

Cet ouvrage est une synthèse bibliographique des mesures de dépôts humides et de qualité des précipitations faites en France entre 1850 et 1990. Il énumère la majeure partie des données disponibles tout en restant critique quant aux méthodes d'échantillonnages employées et à la fiabilité des analyses.

Au total, 202 sites de mesures ont été inventoriés pour cette période sur l'ensemble du territoire, dont 15 entre 1850 et 1910, 8 entre 1911 et 1965 et 179 entre 1966 et 1990. Parmi ces sites, les dépôts annuels n'ont été mesurés entre 1966 et 1990 que sur 118 sites.

Entre 1850 et 1910 les recherches ont plutôt conduit à une identification des éléments contenus dans l'eau de pluie. Le nitrate et l'ammoniacque ont surtout attiré l'attention des chercheurs. Les premières mesures de dépôts annuels datent probablement de 1851, elles ont été faites à Paris et témoignent de la pollution locale. Les grandes villes sont principalement le point de départ de ces mesures. Les premières expériences sur la qualité des précipitations (pluies, rosée, neige, givre et gelée blanche) ont été réalisées sur des précipitations ponctuelles et leurs différences spatiales et saisonnières.

Entre 1876 et 1907, le pionnier français du monitoring des dépôts, ALBERT-LEVY, a effectué des mesures de dépôts d'azote ammoniacal et nitrique en continu à Montsouris en utilisant toujours la même méthode, méthode jugée fiable pour l'ammoniacque. ALBERT-LEVY reste même, à l'heure actuelle, le seul ayant documenté et interprété pendant une aussi longue durée, l'évolution des dépôts humides.

Dans la période de transition, de 1911 à 1965, les dépôts atmosphériques n'ont pas suscité grand intérêt et les travaux recensés témoignent même d'erreurs méthodologiques (exceptés les travaux de l'European Air Chemistry Network, EACN).

Les recherches menées depuis 1966 sont par contre très hétérogènes, aussi bien sur le plan méthodologique qu'au niveau de l'intérêt pour ce sujet.

Les mesures réalisées au sein du EACN ont permis d'identifier les grandes sources des dépôts :

- une origine surtout marine de Na, Cl et de Mg et
- une origine surtout terrestre de Ca, SO_4 et dans une moindre mesure de Mg.

Quelques rares travaux distinguent les origines naturelles et les origines anthropiques des dépôts. Selon la situation géographique la contribution de l'homme pour le SO_4 varie de 15 à 90% et pour le Cl atteint 60% au maximum.

L'origine géographique des concentrations a été étudiée dans plusieurs régions. En Ile de France les flux d'Ouest, du Sud, les marais barométriques et les retours d'Est apportent une contribution de 80 à 85% pour NO_3 et H^+ , sans que l'on puisse noter un gradient Ouest-Est dans la fréquence des apparitions de ces concentrations. Dans cette région, les fortes concentrations de Ca et SO_4 sont également liées aux flux d'Ouest et aux marais barométriques.

Des études détaillées montrent des différences importantes entre les fréquences d'apparition des fortes concentrations et de celles des fortes retombées :

- une forte concentration en H^+ concerne 3% des flux d'ouest, soit 37% de la période étudiée ; pour les flux d'Est les chiffres sont 5% et 21%,
- pour les fortes retombées, 2,2% des flux d'Ouest sont concernés, soit 26,0% pour cette période,
- des valeurs similaires peuvent être constatées pour le SO_4^{2-} , le NO_3^- et le Cl-.

Des études comparatives entre Paris et les Vosges, dans la vallée du gave de Pau et sur le plateau de Lannemezan ont révélé les secteurs d'origine des pluies "polluantes", qui correspondent souvent à des émissions industrielles transportées sur moyennes et longues distances. La comparaison la plus complète entre les origines géographiques et le dépôt annuel a été réalisée sur 10-13 ans avec des mesures hebdomadaires sur 5 sites du réseau BAPMoN. Elle indique des différences notables entre les sites, chaque site étant représentatif d'une des grandes zones climatiques françaises.

La synthèse des recherches sur la qualité des précipitations a abouti aux trois constatations suivantes :

- diminution des concentrations aux cours de

- l'événement pluvieux,
- baisse des concentrations avec l'augmentation de la pluviosité,
- augmentation presque exponentielle des concentrations et du dépôt avec la durée de la période sèche dans la première pluie qui suit cette période.

25,9 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour N-NO₃,
 47,5 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour S-SO₄ et
 436,0 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour Cl,

- la comparaison des études sur les dépôts de pluviollessivats a été rendu difficile à cause d'importantes différences entre les dispositifs de mesures ; néanmoins les grandes tendances sont identiques à celles des dépôts humides stricto *sensu* et des dépôts totaux ; les valeurs maximales de pluviollessivats ont été :

73,6 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour K,
 48,2 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour Ca,
 61,8 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour Na,
 32,6 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour N-NH₄,
 32,6 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour N-NO₃,
 94,6 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour S-SO₄ et
 64,1 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour Cl,

La synthèse des tendances spatio-temporelles des dépôts humides stricto *sensu*, les dépôts totaux et les dépôts de pluviollessivats a fait apparaître quelques points essentiels :

- à l'exception des mesures de dépôts faites dans le réseau BAPMoN il n'existe pas de mesures fiables sur plus de 6 ans, qui permettraient de vérifier des tendances en utilisant les concentrations moyennes pondérées comme indicateur,
- l'étude des dépôts annuels ne permet pratiquement pas de dégager de tendance significative à moyen ou long terme, sauf pour les sites sous l'influence directe d'émissions industrielles ; ces dernières ont fortement baissées dans les années 80,
- d'une année sur l'autre les dépôts peuvent varier du simple au double, surtout en fonction de la pluviosité,
- l'influence de la mer sur les dépôts de Na, Cl, Ca, Mg, K et SO₄ du côté atlantique ressort nettement dans les mesures le long de la côte atlantique sur une bande de 30 km de profondeur,
- la variabilité spatiale des dépôts dans une région peut être selon les conditions d'émissions (ponctuelles ou champ d'émission homogène) aussi importante que celle entre différentes régions, même éloignée l'une de l'autre ; ceci a pu être démontré par le réseau DEMENT dans le massif vosgien (3 000 km²) aussi bien par des mesures de dépôts hors et sous couvert forestiers que par une étude sur les dépôts en plein champ de SO₄ dans 22 stations du seul département de l'Yonne (7 461 km²),
- les dépôts en nitrate et ammonium sont surtout importants dans les Ardennes et en sulfate dans les Vosges et au Mont Lozère ; pour ce dernier la contribution marine a été mise en évidence,
- les variations des dépôts totaux annuels semblent moins fortes que celles des dépôts humides stricto *sensu* et semblent donc mieux caractériser un site ; les valeurs maximales de dépôts totaux observées ont été :

39,1 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour K,
 47,0 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour Ca,
 137,0 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour Na,
 43,6 kg.ha⁻¹.an⁻¹ pour N-NH₄,

- le facteur d'enrichissement ou d'appauvrissement entre les dépôts hors et sous couvert forestier varie selon l'importance du dépôts sec, de la récréation et de l'absorption par le feuillage, de l'essence (plus important sous résineux) et de l'âge des arbres (plus important sous peuplements âgés) de 0,2 à 5,7 pour Ca, Mg, Na, Cl, SO₄, NO₃, NH₄ et P₀₄ et de 0,4 à 84,0 pour K, Fe et Mn.

La synthèse des mesures dans les zones industrialisées et urbaines démontre que tous les dépôts y sont beaucoup plus importants que dans les zones rurales, excepté pour NO₃ et NH₄. Parmi les 13 villes comparées, Clermont-Ferrand, Lyon et Rouen sont les plus polluées.

L'absence de données suffisantes sur les brouillards, nous a seulement permis de faire une approche générale dans ce domaine.

La synthèse des dépôts humides en France se termine par une mise en relation des dépôts français avec ceux d'autres pays européens et en Amérique du Nord, montrant une bonne analogie des données

Quant à l'évolution à long terme des dépôts ou des concentrations, une comparaison assez complète de la littérature, relative à ce sujet incite à être prudent et à ne pas appliquer une valeur ponctuelle à un pays tout entier ou à un ensemble de pays. Toutes tendances, augmentation, baisse ou stabilité sont possibles selon :

- la localisation du site,
- les secteurs d'origine des trajectoires des masses d'air,
- le caractère des circulations atmosphériques.
- la longueur de la période d'investigation,
- la pluviosité.

3. INTRODUCTION

A l'occasion des recherches sur le dépérissement des forêts, il est clairement apparu que la connaissance de l'évolution spatio-temporelle des dépôts atmosphériques en France n'était que très fragmentaire. Par contre, les connaissances sur ce sujet ont considérablement augmenté dans d'autres pays européens et outre-Atlantique, permettant de progresser de manière remarquable dans la modélisation des dépôts et dans la définition de réductions optimales des émissions.

Le territoire français apparaît souvent comme "terra incognita" dans les cartes européennes de dépôts, ou fait l'objet d'une modélisation basée uniquement sur des estimations et non sur des données mesurées. La présente synthèse vise à faire le point sur les données disponibles dans ce domaine.

La réalisation de ce travail coïncide avec la phase de bilan du programme DEFORPA (Dépérissement des Forêts et Pollution Atmosphérique), programme ayant largement contribué aux recherches sur les dépôts atmosphériques (surtout dans les Vosges) mais qui n'avait pas pour vocation spécifique la réalisation de mesures de dépôts à l'échelle nationale ou le développement de modèles de transport à longue distance, et de retombées des polluants atmosphériques.

Depuis une décennie, le monde scientifique prend de plus en plus conscience de l'impact considérable des dépôts atmosphériques sur les écosystèmes aquatiques et terrestres, notamment sur les cycles biogéochimiques. Cet impact sur les sols, les eaux de surface, les eaux souterraines et les forêts peut varier beaucoup en fonction des facteurs stationnels (géologie, type de sol, altitude, hauteur des précipitations, etc.) et dans le cas des écosystèmes forestiers, du mode d'exploitation et de l'essence. Une augmentation des dépôts acidifiants (essentiellement $H_2SO_4^{2-}$, NO_3^- et NH_4^+) peut conduire à un changement de la flore forestière et de la faune aquatique, ainsi qu'à des pertes considérables d'éléments nutritifs par lessivage au niveau du sol. Ces dernières peuvent aboutir à des carences nutritives chez les arbres forestiers. Une augmentation de la

croissance liée à des dépôts excessifs d'azote produit indirectement le même effet.

Depuis quelques années on assiste au développement de la notion de **charge critique** ("critical loads" ; NILSSON et GRENNFELT, 1988) : valeur d'exposition à un ou plusieurs polluants en-dessous de laquelle les éléments sensibles de l'écosystème considéré ne subiront plus d'évolution défavorable. Dans la détermination des charges critiques on tient compte des facteurs stationnels et des essences. Les premiers résultats de calculs pour l'acidité actuelle, l'azote et le soufre révèlent les principales zones sensibles d'Europe (HETTELINGH et al., 1991). Afin de comparer les valeurs concernant ces zones avec les dépôts actuels ou passés des éléments concernés nous devons connaître leur répartition précise et leur tendance à long terme.

Dès la fin des années 1950, les pays scandinaves disposaient à ce titre d'un réseau de plus de 60 stations de mesures (FONSELIUS, 1958), qui ont constitué plus tard avec quelques stations allemandes, autrichiennes, britanniques, hollandaises et françaises le "European Atmospheric Chemistry Network" (GRANAT, 1972). Les mesures effectuées dans ce réseau ont fait l'objet des premières modélisations de la distribution spatiale de la concentration moyenne du SO_4^{2-} et du Cl^- en Europe (DE BARY et JUNGE, 1963). Les scandinaves ont travaillé à la modélisation de la distribution spatiale de l'acidité des précipitations et des dépôts de Ca^{2+} , Na^+ , Cl^- , $N-NH_3$ et $N-NO_3^-$ dans leurs pays bien avant cette première tentative européenne, au cours des années 1950 (BARRETT et BRODIN, 1955; EMANUELSON et al., 1954). Ces premières approches manquaient cependant de précision dans la plupart des autres pays.

De même, la Grande Bretagne disposait dès 1958 d'un réseau de 17 stations, permettant de modéliser la distribution spatiale des concentrations de Ca^{2+} , Cl^- et S (STEVENSON, 1968). Dans une publication plus récente, il est fait état de 65 stations, entretenues par différents organismes, qui ont été opérationnelles pendant au moins un an pendant la période de 1981 à 1985 (BARRETT et al., 1987).

En R.F.A., FÜHRER et al. (1988) résument les résultats de 63 projets (dont 51 portant sur un à deux ans), avec environ 100 stations de mesures

¹ Estimation de la répartition des dépôts de nitrate d'ammonium, de sulfate, de chlorure et de proton avec des modèles de transport et de dépôts, connaissant les émissions (les données au sol servent à calibrer les modèles) qui tiennent compte des mesures faites dans les réseaux nationaux.

entre 1969 et 1986, la plupart ayant fonctionné dans les **années** 1980.

La France ne dispose pas, contrairement à ces pays, d'un réseau de surveillance des **retombées** atmosphériques assez dense et ancien pour permettre aisément de telles comparaisons. Les quelques stations (EMEP, **European Monitoring and Evaluation Program** et **BAPMoN**, Background Air Pollution Monitoring Network) n'existent que depuis le milieu et la fin des années 1970, et ne donnent qu'une idée très partielle de l'évolution des **dépôts** au cours de la phase d'industrialisation rapide qu'a connu la France, depuis la seconde guerre mondiale.

Par comparaison avec les autres pays, les travaux français portant sur la qualité des **précipitations** ou la quantité des dépôts peuvent être répartis sur trois périodes, faisant l'objet chacune d'un chapitre (Figure 1) :

- au cours d'une première **période**, entre 1850 et 1910, on ne trouve que des **résultats** d'analyses ponctuelles, et non coordonnées. La majorité des travaux a **été** réalisée dans les grandes villes (Paris, Lyon, Toulouse et Nantes) en réponse à des problèmes de pollution locale et pour savoir dans quelles mesure la pluie participe à la fertilisation des sols. Seuls deux chercheurs se sont plus spécialement **intéressés** aux dépôts atmosphériques : BARRAL en 1852 et ALBERT-LEW pendant la période 1878 à 1907,
- au cours d'une **deuxième** période, de 1911 à 1965, la chimie des précipitations et les dépôts semblent avoir suscité nettement moins d'intérêt. On ne trouve dans les archives que les publications de trois chercheurs :

- 1) BERTRAND (1935, 1943 a,b,c,d,e, 1944, 1945 a, b, 1946, 1947 a, b), un Français travaillant essentiellement sur le K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} et le soufre dans l'eau de pluie à Paris et à Grignon,
- 2) EGNER et ERIKSSON (1958-1959), deux Suédois, qui publient dans le journal *Tellus* (Journal of Geophysics) les résultats de dépôts mensuels de toutes les stations du réseau "European Atmospheric Chemistry Network" (EACN), y compris ceux de 6 stations françaises (Magny-les-Hameaux, Rostrenen, Luxeuil, Le Mans, Bourges et Ambérieu), pendant un an. D'après SÖDERLUND et GRANAT (1981, 1982 a, b), 5 de ces stations ont **été** fonctionnelles

de 1957 à fin 1974. Les **données** ont été centralisées à l'Institut International de Météorologie de l'**Université** de Stockholm et ont été interprétées globalement avec l'ensemble des autres stations du EACN par SÖDERLUND et GRANAT (1981, 1982 a, b), RODHE *et al.* (1984) et RODHE et GRANAT (1984) (voir chapitre 8.2.1 .1.),

- La troisième est la période la plus riche en recherche : de 1966 à 1990² on note un regain d'intérêt pour la chimie des précipitations et des **dépôts**. Nos recherches nous ont permis d'inventorier 179 sites où à partir de 1966 des analyses de précipitations ont été réalisées. 118 de ces sites ont fourni des données de dépôts annuels, qui se répartissent de la manière suivante :
 - 18 stations sur les dépôts humides stricto **sensu**³,
 - 56 stations sur les dépôts totaux,
 - 28 stations sur les dépôts sous forêt (dont 27 correspondent aux sites de dépôts humides ou totaux),
 - 16 sites en zone urbaine ou industrielle (dans le dernier cas, nous avons **compté** un site par ville ou zone industrielle, même si elles disposent d'un réseau de plusieurs collecteurs).

Les recherches sur les cycles **biogéochimiques** en forêt ou dans les landes bretonnes, qui nécessitent la mesure des dépôts annuels, hors et sous forêt, ont débuté à peu près une dizaine d'années avant la plupart des recherches intensives, sur les dépôts atmosphériques proprement dits (AUSSENAC *et al.*, 1972, FORGEARD *et al.*, 1979 et 1980, RAPP, 1967, 1969 et 1971). Un certain nombre de travaux ont récemment été consacrés à la physico-chimie des hydrométéores (COLIN *et al.* 1987 et 1989 a, b, JAFFREZO et PINART, 1986. ZEPHORIS *et al.*, 1985).

Un grand projet dans ce domaine, NUAC (Nuage Acide), conçu et coordonné par Météo France et réalisé entre avril et juillet 1991 dans les Vosges, a eu pour objectif de mieux comprendre le processus d'acidification des gouttelettes pendant

² Dans le cadre de ce travail, nous espérons avoir **retrouvé** environ **90%** des travaux **réalisés** en France. Malgré des recherches intensives, toutes les **données** existantes n'ont probablement pas pu **être retrouvées**. Nous **espérons** que les **collègues concernés** par d'**éventuels** 'oublis' ne nous en tiendront pas rigueur.

³ La **définition** des termes techniques se trouve dans le chapitre 5

l'ascension des nuages sur le Massif Vosgien. Ce projet, qui a associé des moyens de mesures **aéroportés** et au sol, a fait intervenir 19 **équipes** de **recherches** issues d'Allemagne, Autriche, France et du Québec.

L'installation d'un réseau de surveillance de la chimie des **précipitations** et de **dépôts** humides et totaux au niveau national est actuellement en voie de **développement** : le réseau **MERA (MEsures de Retombées Atmosphériques)**, regroupant 13 stations en milieu rural (dont 7 stations EMEP et 3 stations **BAPMoN**), couvre le territoire français avec des mesures de dépôts humides stricto *sensu*.

De plus, le réseau régional DEMENT (**Dépôt**

d'Éléments Minéraux sur les Ecosystemes Naturels Terrestres) constitue de 8 stations de mesures de **dépôts** humides stricto *sensu* et **dépôts** sous for& dans les Vosges a **été** fonctionnel de 1989 à **début** 1993.

Le réseau RENECOFOR (**Réseau** National de suivi **à long** terme des Ecosystemes Forestiers), **géré** par l'**Office** National des For&s, est en cours de constitution : les **dépôts** humides stricto *sensu*, les **dépôt** totaux hors couvert et les **dépôts** sous couvert forestier sont mesurés dans 25 à 27 stations réparties dans toute la France, dans son sous-réseau CATAENAT (Charge Acide Totale d'origine **Atmosphérique** sur les Ecosystemes Naturels Terrestres).

9. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

a) Le passé

Les premières mesures françaises de dépôts annuels remontent à 1851 ; elles ont été faites à Paris et à Montsouris. Les mesures de Montsouris figurent parmi les très rares mesures en continu et de longue durée dans le monde. Elles permettent une comparaison intéressante avec les conditions actuelles.

Les chercheurs du siècle dernier se sont intéressés tout particulièrement aux composés azotés (NO_2^- , NO_3^- et NH_3), en raison de leur rôle fertilisant pour l'agriculture.

L'examen de la littérature montre que les chercheurs français avaient déjà au cours de la deuxième moitié du 19^{ème} siècle des connaissances précises sur les erreurs méthodologiques, analytiques et d'échantillonnage. Certaines méthodes d'échantillonnage relativement élaborées, par exemple le prélèvement séquentiel des pluies, étaient déjà mises en œuvre dès cette époque. Les grandes caractéristiques de la chimie des précipitations étaient également connues, mais il semble que ces connaissances soient tombées dans l'oubli, jusqu'à leur redécouverte, assez récemment. Il s'agit notamment de la concentration ionique décroissante avec l'augmentation de la quantité d'eau tombée, ou du fait que les concentrations après une longue période sèche soient plus importantes que celles de l'ensemble des pluies tombées pendant une période pluvieuse.

Plusieurs travaux du siècle dernier témoignent des connaissances sur la pollution d'origine industrielle et son impact sur les dépôts urbains. Ces derniers ont souvent été comparés aux dépôts ruraux. Les résultats obtenus à l'époque sont à l'opposé de ceux que l'on obtient aujourd'hui : dans la deuxième moitié du 19^{ème} siècle, les dépôts azotés urbains étaient toujours plus importants qu'en zone rurale. Il s'agit probablement de quantités importantes de dépôts secs, contenant de l'azote, qui se sont plutôt déposées sur le lieu, ou à proximité, de leur émission.

Actuellement, les composés azotes sont surtout émis sous forme gazeuse et sont transportés à courte ou moyenne distance et sont donc plus im-

portants à la campagne qu'à la ville. Néanmoins les concentrations mesurées au 19^{ème} siècle à la campagne sont comparables à celles mesurées aujourd'hui, ce qui semble confirmer l'hypothèse qu'il y avait certainement aussi un transport de polluants d'origine urbaine vers la campagne.

La comparaison des anciennes données de dépôt d'ammoniacque à Montsouris avec celles d'aujourd'hui montre une tendance à la baisse. Ceci pourrait résulter de la diminution de la pollution urbaine, surtout grâce à la disparition de l'élevage des animaux de trait en ville, et l'amélioration des conditions sanitaires (systèmes de tout-à-l'égout) de puis un siècle.

b) Emissions

D'après les estimations actuelles, les émissions de SO_2 et de poussières ont connu une réduction d'environ 50% de leur valeur maximale, atteinte en 1973, ce qui se reflète de manière significative dans les mesures de dépôt de SO_4^{2-} des stations du réseau BAPMoN. Les valeurs stables des émissions de NO, depuis environ 1973 semblent également se traduire par des dépôts stables dans ces stations depuis 1977, bien que les stations BAPMoN soient les seules à avoir mesuré les dépôts humides stricto *sensu* sur une aussi longue période.

Les NO, émis par les véhicules automobiles représentent actuellement environ 75% des émissions et ne cessent d'augmenter. Par contre, les émissions de NO, ont été réduites dans tous les autres secteurs dans une proportion comparable à celle des émissions de SO_2 et de poussière. Une politique de réduction des émissions automobiles semble donc inévitable si l'on souhaite réduire les dépôts azotés.

En ce qui concerne les émissions de NH_3 il faudrait des estimations au niveau national et départemental, afin de repérer les régions exportatrices de ces composés par voie aériennes.

c) Origine des dépôts

Les dépôts atmosphériques humides sont sous influence des flux d'Ouest d'origine marine sur une grande partie du territoire de la France. A ceux-ci il faut rajouter des flux chargés de composés

d'origine anthropiques transportées à courte, moyenne ou longue distance. Les **régions** recevant une proportion significative de ces flux sont surtout situées en bordure du pays. On reconnaît principalement deux influences transfrontalières :

- l'élevage intensif en Belgique et aux **Pays-Bas** au Nord,
- les zones industrialisées d'Europe centrale ou orientale (Allemagne, Tchécoslovaquie, ...) à l'**Est** et espagnoles au Sud, d'où les polluants sont transportés sur les sol français.

L'influence des émissions de grandes métropoles, comme Paris, se fait encore sentir à une centaine de kilomètres de celles-ci. Les grandes agglomérations jouent donc un rôle important dans l'augmentation des apports externes d'éléments aux écosystèmes aquatiques et terrestres (les forêts notamment) qui les entourent. Il serait utile de préciser, par des recherches **écosystémiques** adaptées, dans quelles mesures les grandes agglomérations affectent les écosystèmes naturels et sensibles environnants. Il s'agirait d'un paramètre pertinent dans le cadre d'une réflexion sur la définition d'une politique de réduction des émissions polluantes.

d) Tendances spatio-temporelles des dépôts

L'analyse spatio-temporelle des dépôts a été rendue difficile par l'hétérogénéité des données qui tient aux spécificités des objectifs de recherche, des méthodes de mesure, de la périodicité de l'échantillonnage, de la période d'investigation, et des paramètres pris en compte, sans parler des méthodes analytiques. Enfin les traitements statistiques et la présentation des résultats sont également très variés.

Indépendamment du type de dépôt, on constate généralement une variabilité spatiale considérable, aussi bien d'une région à l'autre que dans une même région. La présente synthèse a seulement permis de faire une présentation globale des différences.

En général, les mesures de dépôt ne permettent pas de dégager de tendances à long terme, soit à cause de l'influence trop importante de la pluviosité et d'investigations de trop courte durée, soit parce qu'aucune analyse distinguant les différents secteurs d'origine n'a été réalisée. Les seules stations qui font exception sont celles du réseau **BAPMoN** avec des mesures hebdomadaires fiables disponibles depuis 1977. Il paraît donc important de garantir leur fonc-

tionnement à long terme. On ne peut que déplorer qu'une partie de ces stations ait été récemment abandonnée.

Les dépôts humides stricto sensu mesurés en France sont comparables à ceux d'autres pays. On observe des valeurs maximales de N-NH_4^+ de $12,2 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$, de N-NO_3^- de $9,1 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$, de S-SO_4^{2-} de $19,6 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ et Cl^- de $59 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$.

En ce qui concerne les mesures françaises des dépôts totaux comparées à celles d'autres pays, elles sont élevées en bordure de mer pour Cl^- et Na^+ , avec respectivement 436 et $137 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$, laissant supposer une influence sur la nutrition de nos forêts maritimes. L'influence de ces dépôts est perceptible au moins à 30 kilomètres des côtes. Les dépôts totaux atteignent en France au maximum $43,6 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ de N-NH_4^+ , $25,9 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ de N-NO_3^- et $47,5 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ de S-SO_4^{2-} .

L'influence des peuplements forestiers sur la **quantité** des dépôts sous couvert est très variable d'une essence à l'autre. Pour une même essence, les dépôts sous couvert peuvent être inférieurs ou bien supérieurs à ceux hors couvert, suivant les conditions de nutrition du peuplement, d'âge des arbres, de pollution locale et de pluviosité.

Le facteur d'enrichissement ou d'appauvrissement entre les dépôts annuels hors et sous couvert forestier varie fortement selon l'élément ou le compose. Dans les zones assez polluées les dépôts sous couvert sont cependant toujours plus importants que hors couvert (exception : parfois N-NH_4^+). Ce large éventail est à prendre en considération lors d'une future comparaison de charges **critiques** avec les valeurs réelles mesurées hors couvert forestier.

On observe surtout des dépôts importants sous couvert de pessières dans les Ardennes et les Vosges, ainsi que dans les sapinières vosgiennes, où ils ont atteint dans une année des valeurs maximales pour N-NH_4^+ de $32,6 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$, pour N-NO_3^- de $32,6 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ et pour S-SO_4^{2-} de $94,6 \text{ kg}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$. Cet effet négatif d'enrichissement est à prendre en considération par les forestiers lors d'un changement d'essences de feuillus vers des résineux, surtout sur des sols de fertilité moyenne à pauvre et dans des régions influencées par des transports importants de polluants atmosphériques.

Malgré les travaux approfondis de quelques chercheurs, il faut constater que, compte tenu de la diversité des écosystèmes forestiers français, allant de la forêt alluviale à la forêt subalpine soumise à des climats atlantique, méditerranéen ou continental, il reste encore beaucoup à découvrir dans le

domaine des **dépôts atmosphériques** en for&. De plus, des efforts doivent **être** faits pour quantifier la part réelle de l'apport atmosphérique dans les dépôts totaux sous couvert.

Au niveau des dépôts dans les zones industrielles et urbaines on trouve parfois des dépôts très élevés pour Cl^- (jusqu'à $493 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$), Na^+ (jusqu'à $248,5 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$) et S-SO_4^{2-} (jusqu'à $148,9 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$) et ceci même dans des villes qui ne se trouvent plus sous l'influence **prépondérante** des flux d'origine maritime. Ceci laisse supposer une forte pollution locale à l'intérieur même des ces villes relativement éloignées des sources **d'émissions** industrielles. Une importante variabilité spatiale des dépôts dans ces zones peut être constatée.

e) Brouillard

Les recherches sur les apports dus aux brouillards sont peu nombreuses en France. L'importance de ces apports dans les cycles **biogéochimiques** des forêts d'altitude et les problèmes nutritifs qui pourraient en découler justifieraient des études complémentaires, malgré les difficultés rencontrées pour les mesures. Des travaux réalisés sur ce sujet à l'étranger et dans les Vosges en France laissent supposer une contribution non négligeable de ces dépôts "occultes" aux apports annuels de certaines forêts d'altitude.

f) Tendances des dépôts mesurés à l'étranger

La **synthèse** bibliographique des tendances des dépôts atmosphériques humides observées à l'étranger a pu montrer qu'il n'existe pas une seule tendance générale mais plutôt une diversité de tendances. Il convient de rester prudent quand on se réfère à des tendances à la hausse ou à la baisse d'un composé donné. Celles-ci varient beaucoup d'une région à l'autre, selon que le site de mesure se trouve sous le vent d'une source émettrice (même lointaine), ou qu'il se trouve au centre d'une région présentant un champ d'émission bien homogène.

Il est donc nécessaire de distinguer les secteurs d'origine dans l'analyse de tendances à long terme. La période d'investigation joue également un rôle important, **c'est-à-dire** si elle se trouve avant, pendant ou après les années de forte réduction des émissions. A titre d'exemple, RHODE et GRANAT (1984) observent en France (analyse des mesures du European Air Chemistry Network) pour SO_4^{2-} une augmentation de la **concentration** de 60% entre 1955 et 1982. Par contre, la concentration de SO_4^{2-} diminue aux Etats-Unis (Hubbard Brook) de 34% entre 1963 et 1982 et en Finlande (Utö, Virolahti et Athäri) de 39% entre 1973 et 1988.

g) Points concernant l'ensemble des mesures

Ce travail nous a permis de constater une certaine diversité des travaux dans ce domaine en France, ce qui va à l'encontre de l'opinion **très** répandue selon laquelle il n'existerait presque pas de données sur les retombées atmosphériques. Malheureusement, beaucoup de ces **résultats** n'ont pas **été** publiés dans des revues nationales ou **internationales**, et sont difficilement accessibles. Il serait donc souhaitable que les activités et les résultats de mesure de dépôt des différents laboratoires ou organismes de surveillance soient centralisées au niveau national (par exemple par l'Association pour la Prévention de la Pollution Atmosphérique, l'A.P.P.A., l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie, l'A.D.E.M.E. ou l'Institut Français pour l'Environnement, l'IFEN).

Il serait également souhaitable de définir un catalogue contenant un minimum de règles **methodologiques** et analytiques à respecter, si l'on envisage de contribuer à l'amélioration de nos connaissances sur les dépôts en France ce qui permettrait ainsi une comparaison entre les différentes régions. Ceci concerne surtout les mesures effectuées en forêt (nombre et type de collecteurs utilisés, question de la représentativité des conditions en forêt). Un tel catalogue aiderait également à éviter les erreurs **méthodologiques** et analytiques, qui ont été observées lors de cette synthèse.

En France, nous ne disposons guère de mesures comparatives entre les dépôts humides stricto *sensu* et les dépôts totaux.

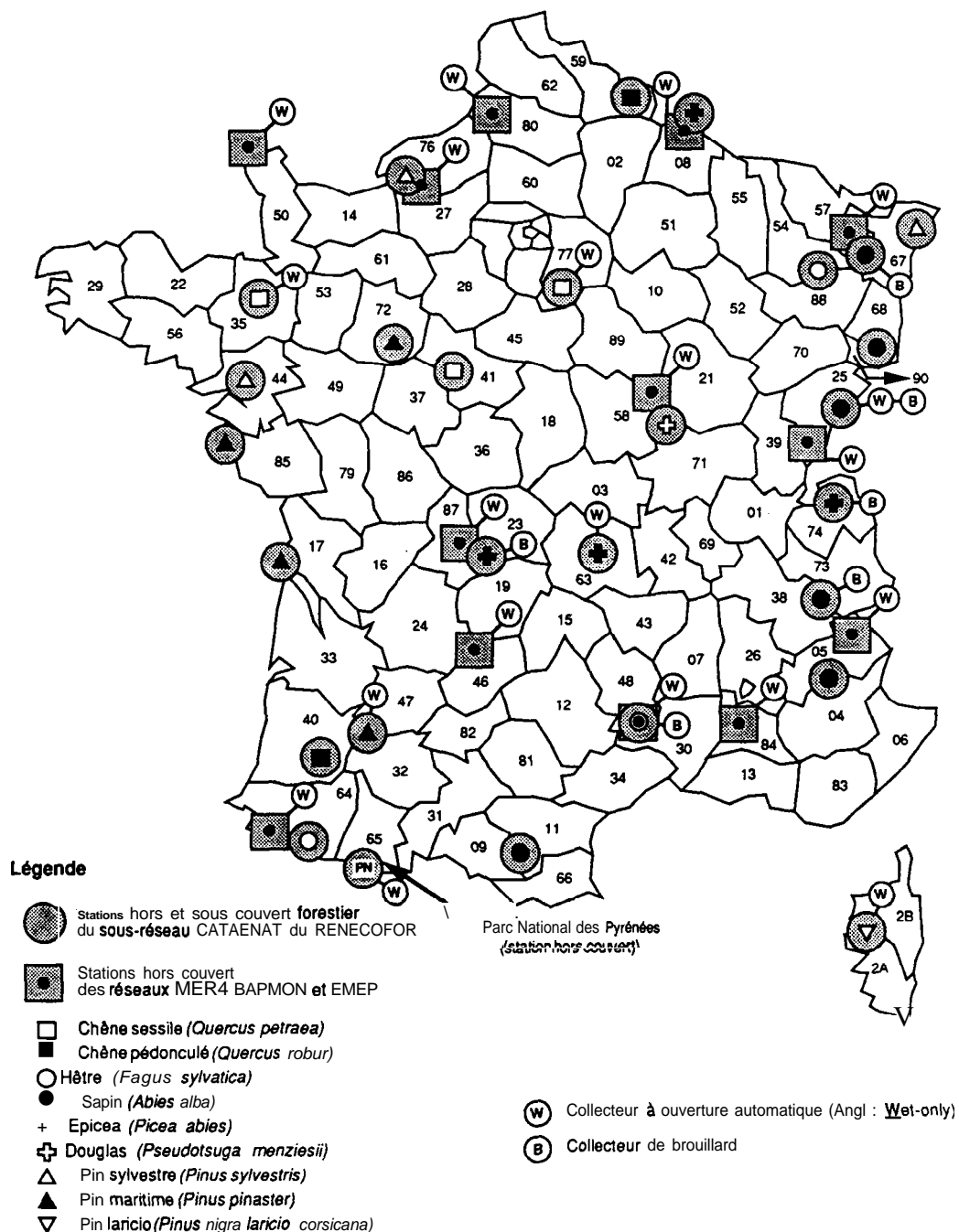
Des mesures de dépôt le long de gradients altitudinaux dans des régions forestières montagnardes seraient à envisager, afin d'évaluer leurs conséquences sur le cycle nutritif des peuplements.

Dans le cas où l'on cherche à estimer les apports externes aux cycles biogéochimiques d'un **écosystème**, il ne suffirait pas de faire des mesures sur une ou deux années, car on risquerait de faire des erreurs d'estimation considérables. Ces erreurs peuvent porter préjudice à la qualité des bilans d'éléments minéraux, notamment dans le cas de forêts où l'ensemble des flux sont faibles. Un minimum de 5 ans est nécessaire pour intégrer la variabilité annuelle du dépôt, afin de connaître sa fourchette régionale.

Dans un proche avenir les connaissances sur les dépôts atmosphériques, encore dispersées, devraient s'améliorer grâce aux mesures

réalisées dans les 13 stations à découvert du réseau MERA (Mesure de Retombées Atmosphériques) et les 27 stations à découvert et sous

le couvert forestier du réseau RENECOFOR (Réseau National de suivi à long terme des Ecosystèmes Forestiers) (Figure 33).



DTCS/ML/11/93

Figure 33 Localisation des stations du réseau MERA (Mesure de Retombées Atmosphériques) et du sous-réseau CATAENAT (Charge Acide Totale d'origine Atmosphérique sur les Ecosystèmes Naturels Terrestres) du RENECOFOR (Réseau National de suivi à long terme des Ecosystèmes Forestiers), dans lesquels sont actuellement mesurés les dépôts humides stricto sensu, les dépôts totaux ou les dépôts de pluviollessivats.