



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

UNIVERSITE DE NANCY I

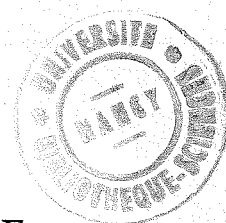
U.F.R. S.T.M.P.

THESE
présentée à
l'UNIVERSITE DE NANCY I
pour l'obtention du grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE NANCY I

Par

Thierry BECQUER

*PRODUCTION ENDOGENE DE PROTONS
PAR LES CYCLES DE L'AZOTE ET DU SOUFRE
DANS DEUX SAPINIERES VOSGIENNES :
BILANS SAISONNIERS ET INCIDENCE
SUR LA TOXICITE DE L'ALUMINIUM*



Soutenue publiquement le 12 mars 1991
devant la Commission d'Examen

Membres du Jury

MM. A.J. HERBILLON, Professeur à l'Université de Nancy I, Président
M. BONNEAU, Directeur de Recherche, I.N.R.A. Champenoux, Rapporteur
H.J. VAN PRAAG, Chercheur I.R.S.I.A., Gembloux, Rapporteur
J.P. BOUDOT, Chargé de Recherche au C.N.R.S., Nancy
J. DEXHEIMER, Professeur à l'University de Nancy I

UNIT 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2



Unit 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2

Unit 2

à Anne

à Sébastien et Adeline

AVANT-PROPOS

Au terme de ce travail, je tiens à exprimer toute ma gratitude à ceux qui m'ont témoigné leur amitié ou fourni leur aide au cours de mon séjour au Centre de Pédologie Biologique.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE	1
 PREMIERE PARTIE : QUE SAIT-ON SUR LE DEPERISSEMENT FORESTIER ?	 5
 I.- APPRECIATION DE LA VITALITE DES FORETS	 6
 II.- ANALYSE DE LA SITUATION	 7
 III.- LES PRINCIPAUX FACTEURS CONDUISANT AU DEPERISSEMENT	 9
1.- Rôle des facteurs climatiques	9
2.- La pauvreté chimique des sols	10
3.- Pluies acides, acidification des sols et toxicité alumineuse	11
4.- Minéralisation de la matière organique et acidification des sols	14
5.- Impact direct des polluants atmosphériques	17
6.- Surfertilisation des sols par les polluants azotés atmosphériques	18
7.- L'hypothèse "Pathogènes"	19
8.- L'influence de l'acidification sur les mycorhizes	19
 IV.- CONCLUSIONS	 20
 DEUXIEME PARTIE : LES SITES D'ETUDES ET LE CLIMAT DE POLLUTION	 25
 I.- SITUATION DES STATIONS	 25
 II.- LE SOL	 27
1.- Les caractéristiques morphologiques	27
2.- Les caractéristiques physico-chimiques	27

III.- LE CLIMAT 28

- 1.- Les précipitations 28
- 2.- Les températures 31
- 3.- Comparaison climatique des deux stations 31

IV.- LE CLIMAT DE POLLUTION DES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS 33

- 1.- Le dispositif expérimental 33
- 2.- Méthodes d'analyses 33
- 3.- Résultats 34

V.- CONCLUSION 36

TROISIEME PARTIE : EVALUATION DES FLUX DE NITRATES DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

 39

CHAPITRE I : REVUE DES METHODES UTILISABLES EN VUE D'EVALUER LA NITRIFICATION ET LES FLUX DE NITRATES 43

I.- LES METHODES VISANT A MESURER LA NITRIFICATION 43

- 1.- La signification du dosage direct des nitrates dans les sols - Les profils de nitrates 43
- 2.- Le comptage des nitrifiants 44
- 3.- Mesure de la nitrification potentielle 44
- 4.- Mesure directe de la nitrification *in situ* 45

II.- LES METHODES VISANT A MESURER LES FLUX DE NITRATES DANS LES SOLS 46

- 1.- Evaluation de la lixiviation des nitrates 46
- 2.- Estimation des prélèvements effectués par la végétation 47
- 3.- méthodes de mesure conjointe de la nitrification, de la lixiviation et des prélèvements 47

CHAPITRE II : EVALUATION DE LA NITRIFICATION ET DES FLUX DE NITRATES PAR INCUBATION *IN SITU*

51

I.- MATERIEL ET METHODE

51

1.- Méthodologie

51

2.- Méthode de calcul

53

II.- RESULTATS

55

1.- Intensité de la nitrification

55

2.- Prélèvements et pertes de nitrates

55

3.- Comparaison avec une méthode lysimétrique

60

III.- DISCUSSION

62

1.- Validité de la méthode

62

*a.- Régime hydrique et températures à l'intérieur et à l'extérieur
des tubes*

62

b.- La durée des incubations

64

c.- le pH

65

2.- Flux de nitrates et fonctionnement des écosystèmes

65

QUATRIEME PARTIE : EVALUATION DES FLUX DE SULFATES DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

71

CHAPITRE I : METHODES D'ETUDE DES TRANSFERTS DE SULFATES

75

I.- LES METHODES D'EXTRACTION DES SULFATES

75

II.- LA MESURE DES FLUX DE SULFATES

76

1.- La minéralisation et l'immobilisation des sulfates

76

2.- L'adsorption et la désorption des sulfates

77

3.- La lixiviation des sulfates

78

4.- Evaluation des prélèvements de sulfates

78

**CHAPITRE II : ETUDE DES FLUX DE SULFATES
DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS** 81

I.- MATERIEL ET METHODE 81

1.- Validité de la méthode d'extraction 81

2.- Méthode de calcul 84

II.- RESULTATS 85

III.- DISCUSSION 89

**CINQUIEME PARTIE :
BILANS SAISONNIERS DES PROTONS ET RELATION
AVEC LA TOXICITE ALUMINEUSE** 95

**CHAPITRE I : LES PHENOMENES DE TOXICITE ALUMINEUSE
VIS-A-VIS DES VEGETAUX** 99

I.- LES FORMES DE L'ALUMINIUM ET LEUR TOXICITE 99

II.- LES EFFETS DE L'ALUMINIUM SUR LA VEGETATION 102

1.- Mécanismes d'action et conséquences de la toxicité alumineuse 102

2.- La tolérance des végétaux vis-à-vis de l'aluminium 103

III.- EVALUATION DE LA TOXICITE - LES INDICES DE TOXICITE 104

1.- La comparaison de la sensibilité des espèces végétales à l'aluminium 104

2.- Le rapport Ca/Al 105

3.- Le CAB (Calcium-Aluminium Balance) 106

4.- Proposition d'un indice de toxicité adapté aux écosystèmes
forestiers tempérés 107

**CHAPITRE II : EVALUATION DE LA TOXICITE ALUMINEUSE
DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS** 111

I.- METHODOLOGIE 111

II.- RESULTATS 113

III.- DISCUSSION	113
1.- La comparaison avec le CAB* et le Ca/Al	113
2.- Causes de la toxicité alumineuse	114
3.- Estimation du cycle de protons total : flux de protons liés aux cycles des cations et du carbone	121
4.- Conclusion	126
CONCLUSIONS GENERALES	129

BIBLIOGRAPHIE

ANNEXES

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION

A la suite de l'apparition de symptômes de dépérissement dans de nombreuses forêts de l'hémisphère Nord depuis les années 70, plusieurs programmes d'études ont été instaurés dans différents pays. Les hypothèses les plus généralement avancées attribuaient un rôle majeur aux pluies acides (Secrétariat d'Etat à l'Environnement, 1984). En France, à la suite de ces réflexions, le programme DEFORPA (**DE**périssement des **FOR**êts attribué à la **P**ollution **A**tmosphérique), financé par les Ministères de l'Environnement, de la Recherche et de l'Agriculture sous les auspices de la C.E.E., a été lancé en 1984. Il avait pour but de faire le point tant sur l'état de santé des forêts que sur l'état de la pollution atmosphérique régnant alors, ainsi que d'analyser les causes du dépérissement forestier afin de tenter d'y remédier.

De nombreuses études ont été effectuées dans de nombreux pays depuis l'apparition des dégâts. Elles ont conduit à mettre en évidence la grande variabilité des phénomènes pouvant intervenir dans le dépérissement forestier. Les caractéristiques pédologiques des écosystèmes, la structure des peuplements, la nature des essences forestières présentes, le climat de pollution des diverses zones géographiques considérées jouent un rôle très important dans l'intensité des dégâts. Parmi les hypothèses les plus souvent avancées il faut en souligner certaines qui paraissent être pour l'essentiel d'origine naturelle. C'est notamment le cas des facteurs climatiques, en particulier hydriques (BECKER, 1987a et b ; LEVY et BECKER, 1987 ; BECKER *et al.*, 1989), de la pauvreté chimique des sols (LANDMANN *et al.*, 1987 ; BONNEAU, 1987a, 1989) et des attaques de pathogènes (LE TACON, 1988 ; BONNEAU, 1989). Le rôle des activités humaines sur ces phénomènes d'apparence naturelle n'est toutefois pas à exclure bien que cela n'ait pas été clairement démontré (influence de l'"effet de serre" sur les phases de sécheresse par exemple). D'autres causes sont plus nettement d'origine anthropique. Telles sont l'action directe des polluants atmosphériques sur le couvert forestier (HINRICHSSEN, 1986 ; HENNEQUIN, 1987 ; BONNEAU, 1989 ; SCHULZE, 1989) ou l'acidité des pluies et des pluvioloessivats (ULRICH *et al.*, 1979, 1980 ; VAN BREEMEN *et al.*, 1982, 1987 ; VAN BREEMEN et JORDENS, 1983, PACES, 1985 ; REHFUESS, 1987). Les apports de protons par les pluies acides conduiraient notamment à la diminution des réserves nutritives et à l'acidification des sols (HALLBÄCKEN et TAMM, 1986 ; FALKENGREN-GRERUP, 1989 ; BILLET *et al.*, 1990).

L'acidification est toutefois un processus normal dans l'évolution des sols. De nombreux mécanismes interviennent dans les écosystèmes non perturbés et conduisent à la production de protons par les cycles biogéochimiques (VAN BREEMEN *et al.*, 1983 ; BONNEAU *et al.*, 1987). Il nous est donc paru intéressant de quantifier les diverses sources de protons dans les écosystèmes forestiers et notamment de préciser l'importance respective des sources internes et externes. Pour cela, nous avons quantifié, dans deux écosystèmes forestiers des Basses-Vosges, l'un dépérissant et l'autre sain, les flux de nitrates et de sulfates, qui sont les deux éléments le plus souvent incriminés dans les phénomènes d'acidification liés à la pollution atmosphérique. Une large part de la production interne étant liée à la nitrification, certains auteurs ont attribué cette production à un dysfonctionnement du cycle biogéochimique de l'azote dû à la pollution atmosphérique. Ce point de vue sera également étudié.

Les observations effectuées depuis plusieurs années dans la station dépérissante (GRAS *et al.*, 1987, 1988a et b, 1989) avaient mis en évidence une importante solubilisation d'aluminium notamment en hiver. Des observations identiques ont également été effectuées dans d'autres écosystèmes forestiers de l'hémisphère Nord (PROBST et DAMBRINE, 1988 ; VAN BREEMEN *et al.*, 1987). L'aluminium ou certaines de ses formes, peut se révéler particulièrement toxiques pour la végétation (SEGALEN, 1973 ; KINRAIDE et PARKER, 1989) et être une cause importante de dépérissement forestier (ULRICH, 1983 ; HÜTTERMAN et ULRICH, 1984 ; MATZNER, 1986). Dans un deuxième temps, nous avons donc tenté de déterminer les relations existant entre les flux d'azote et de soufre et la toxicité liée à l'aluminium.

PREMIERE PARTIE

QUE SAIT-ON SUR LE DEPERISSEMENT FORESTIER ?

SECRET

CONFIDENTIAL

QUE SAIT-ON SUR LE DEPERISSEMENT FORESTIER ?

Durant les années soixante dix, les forestiers et les scientifiques ont observé d'importantes défoliations dans les peuplements de conifères du centre et du nord de l'Europe. Des dommages très importants, qui pouvaient même aller jusqu'à l'anéantissement de vastes surfaces boisées, ont été observés dans certains pays d'Europe centrale (Tchécoslovaquie en particulier). Depuis, les mêmes types de symptômes sont apparus dans de nombreux pays d'Europe occidentale et en Amérique du Nord, souvent avec une intensité plus faible. Ceci a conduit l'opinion publique à prendre conscience du problème. A la suite de ces observations, de nombreux pays ont élaboré des programmes de recherche afin de comprendre le déterminisme du phénomène, et afin de faire face à l'éventualité de la disparition des forêts, annoncée par certains. En France, la réflexion sur ce sujet a débuté en 1984 par la rédaction d'un Livre Blanc sur les pluies acides, considérées, à priori, comme responsables des dégâts. La même année, le programme DEFORPA (programme français de recherche sur le DEpérissement des FORêts attribué à la Pollution Atmosphérique), financé par les ministères de l'Environnement, de la Recherche et de l'Agriculture, sous les auspices de la C.E.E., est mis en place. Quatre axes de travail ont été fixés (LANDMANN, 1987) :

- l'évaluation des dommages et leurs relations avec les conditions écologiques,
- la caractérisation du climat de pollution en zone forestière,
- l'étude de l'action directe des polluants atmosphériques sur la végétation,
- les effets de la pollution acide par l'intermédiaire du sol.

La suite de ce chapitre cherche à faire le point sur l'extention des dégâts et à dégager les principaux enseignements issus des divers travaux accomplis jusqu'ici.

I.- APPRECIATION DE LA VITALITE DES FORETS

Le premier objectif des recherches entreprises était d'évaluer le plus objectivement possible l'importance des dommages. Le repérage des arbres ou des peuplements forestiers dépérissants nécessite d'avoir à disposition des critères traduisant réellement leur baisse de vitalité. La définition de la vitalité n'est cependant pas aisée (LANDMANN, 1988). Les signes d'une baisse de celle-ci qui sont généralement cités, tels la présence de symptômes "inhabituels" ou l'existence de mortalités "anormales", reposent sur des appréciations souvent subjectives. L'évaluation objective des dégâts nécessite la connaissance de l'aspect "normal" des arbres et des peuplements, ainsi que l'acquisition de références qui font souvent défaut.

La méthode la plus classique est l'appréciation visuelle de l'état des houppiers. Chez les arbres, l'état des houppiers est en effet fortement lié à la croissance, et l'examen des premiers est susceptible de renseigner sur cette dernière (BECKER *et al.*, 1990). Cette méthode, mise au point en Allemagne, est aujourd'hui utilisée en France et dans la plupart des pays de la C.E.C. Deux critères majeurs sont pris en compte, à savoir la défoliation et l'altération de la couleur du feuillage (en général le jaunissement). Pour caractériser l'intensité des dommages, une classification a été élaborée (BUFFET, 1986), qui utilise des classes de défoliation et de jaunissement :

• Classes de défoliation :

- * 1 = défoliation inférieure à 10 % : arbres sains
- * 2 = défoliation de 10 à 25 % : arbres faiblement détériorés
- * 3 = défoliation de 25 à 60 % : arbres fortement détériorés
- * 4 = défoliation de 60 à 100 % : arbres dépérissants
- * 5 = défoliation de 100 % : arbres morts

• Classes de jaunissement :

- * 1 = couleur normale
- * 2 = couleur anormale sans indication de l'importance du phénomène
- * 3 = couleur anormale pour 0 à 25 % du feuillage
- * 4 = couleur anormale pour 25 à 60 % du feuillage
- * 5 = couleur anormale pour 60 à 100 % du feuillage.

Cette méthode est cependant parfois jugée assez subjective et peu pertinente, car il y a une variabilité parfois importante des résultats obtenus par différents observateurs (LANDMANN, 1988). De plus, la croissance mesurée par des études dendrochronologiques (BECKER, 1987a) ne montre pas de relation stricte avec les pertes foliaires. Dans les Vosges et dans le cas du sapin pectiné, BECKER (1987a) ne constate une baisse significative de la croissance qu'à partir de 40 % de perte d'aiguilles. En Allemagne et en Suisse, d'autres auteurs situent ce seuil vers 15 à 20 % (LANDMANN, 1988). Dans le cas de l'épicéa commun, ce seuil correspondrait à 40-45 % de défoliation (LANDMANN, 1988). D'une façon générale, on considère actuellement que la croissance est affectée à partir de 25 % de pertes de feuilles ou d'aiguilles (classe 3, 4, 5). L'appréciation de l'altération de la couleur du feuillage est également difficile à réaliser, en raison de la variabilité du phénomène ; la diversité des agents responsables ainsi que la multitude des perturbations physiologiques induites explique cette variabilité mais complique d'autant la détermination des causes.

II.- ANALYSE DE LA SITUATION

Malgré les limites que nous venons d'évoquer, ces deux critères servent de référence pour la surveillance de l'état sanitaire des forêts dans la plupart des pays européens. En ce qui concerne la France l'O.N.F. (Office National des Forêts) a mis en place, dès 1983, des réseaux de surveillance utilisant ces critères. Ils sont constitués de placettes d'observation régulièrement visitées, et ont été installés dans différentes régions du pays (massifs montagneux : Vosges, Jura, Alpes, Massif-Central, Pyrénées ; régions de plaine : Nord, Picardie, Normandie, Région Parisienne).

Les résultats montrent que le maximum de dépérissement s'observe dans l'Est de la France, à la fois chez les conifères et chez les feuillus (LANDMANN 1987 ; LANDMANN, 1988). Le phénomène y avait d'ailleurs été plus précoce que dans la plupart des autres régions. D'une façon générale, les dommages sont beaucoup plus importants sur les conifères que sur les feuillus : sur les massifs montagneux de l'est de la France, par exemple, la proportion d'arbres ayant perdu plus de 25 % de feuilles est de 15 à 25 % chez le sapin pectiné et le pin sylvestre, d'environ 10% chez l'épicéa commun et seulement de 5 à 10 % chez le hêtre et le chêne. Les mêmes tendances s'observent pour le jaunissement. Ces deux symptômes ne correspondent toutefois pas strictement, au moins chez certaines espèces. A titre d'exemple, le sapin pectiné est très défolié dans les Vosges mais ne présente que peu de jaunissement ; l'inverse se produit dans les Alpes du Sud.

Contrairement à ce qui se produit en Europe centrale, où le dépérissement a pu conduire à l'anéantissement d'importantes zones forestières, les dégâts observés en France ne sont pas nécessairement irréversibles. Dans les Vosges, les dommages affectant le sapin pectiné ont atteint un maximum en 1985, aussi bien en ce qui concerne la défoliation que le jaunissement. Depuis, une certaine amélioration de l'état des peuplements semble avoir eu lieu. En fait, des phases d'amélioration paraissent alterner avec des phases de dégradation.

Malgré les prévisions quelquefois alarmistes relevées dans la presse et l'opinion publique, le phénomène du dépérissement survient dans une phase d'augmentation générale de la croissance radiale des sapins et des épicéas (BECKER, 1987a, 1989 ; BECKER *et al.*, 1990). La productivité moyenne de nombreux conifères (sapins, épicéas,...) a ainsi augmenté d'environ 70 % de 1850 à 1930-1940, s'est ensuite stabilisée, puis a été entachée d'une légère diminution (- 10 %). Ceci a été observé aussi bien dans les Vosges que dans la Forêt-Noire et le nord du continent américain. Le dépérissement observé en Europe occidentale ne doit donc pas être considéré comme un processus continu, général et inéluctable. Si le spectre de la disparition prochaine de nos forêts n'est plus à craindre pour le moment, il reste à bien comprendre le phénomène pour tenter de mieux en prévoir l'évolution à moyen terme et essayer d'améliorer l'état de santé des peuplements forestiers.

De nombreuses hypothèses ont été formulées afin d'expliquer les différents types de dépérissement. Aucune d'entre elles prise isolément ne paraît pouvoir expliquer la totalité des observations effectuées jusqu'ici, et l'état des forêts résulte sans aucun doute de l'interaction de plusieurs facteurs, dont certains agissent en synergie. Certains sont plus ou moins naturels et pourraient expliquer les phases de défoliation ou de jaunissement mentionnées par divers auteurs à la fin du siècle dernier ou au début de ce siècle (LANDMANN, 1988). Cependant, l'explication du développement récent du dépérissement forestier peut faire appel à des causes nouvelles et très certainement d'origine anthropique. Nous allons brièvement passer en revue les hypothèses qui peuvent être considérées comme étant actuellement les mieux étayées.

III.- LES PRINCIPAUX FACTEURS CONDUISANT AU DEPERISSEMENT

1. - ROLE DES FACTEURS CLIMATIQUES

Par ses paramètres température et pluviométrie, le climat joue un rôle majeur dans le fonctionnement des écosystèmes.

L'augmentation générale de la productivité au cours du siècle que nous avons mentionnée précédemment est bien corrélée aux oscillations des températures moyennes de l'hémisphère nord. Cette augmentation globale, qui coïncide avec l'accroissement de l'industrialisation des pays dits développés, pourrait être mise en relation avec "l'effet de serre" dû à l'augmentation du CO₂ dans l'atmosphère (BECKER *et al.*, 1990 ; BOUVAREL, 1990). Ce dernier point n'est toutefois pas démontré et il existe bien évidemment des changements climatiques tout à fait naturels (JONES, 1990), qui peuvent être suffisamment importants pour provoquer la disparition de certaines espèces et leur remplacement par d'autres, mieux adaptées.

L'influence des périodes de sécheresse répétées sur le dépérissement des forêts a été avancée fort logiquement, car les principales essences concernées étaient connues pour être exigeantes sur le plan de leur alimentation en eau. Les résultats les plus intéressants dans ce domaine ont été obtenus grâce à des études dendrochronologiques. Effectuées tout d'abord dans les Vosges puis étendues à d'autres régions, elles ont révélé les points suivants (BECKER, 1987a, 1987b ; LEVY et BECKER, 1987 ; BECKER *et al.*, 1989) :

- chez le sapin pectiné, l'état de défoliation actuel des arbres est bien corrélé à la croissance radiale à laquelle ils ont donné lieu durant la dernière décennie. Ceci n'est pas vrai pour le jaunissement.
- au sein de la phase d'augmentation générale de croissance qui a été précédemment mentionnée, il existe chez le sapin des crises de très faible croissance et de forte défoliation d'environ 8-9 ans (1916-25/1943-51/1973-81), qui correspondent à des périodes de déficits pluviométriques importants et répétés.
- les données climatiques rendent compte de près de 80 % de la variabilité de la croissance radiale du sapin.
- les peuplements actuellement défoliés ont une croissance inférieure à celle des peuplements sains depuis les années 30 et surtout depuis 1960. La cause de cette divergence réside dans les pratiques sylvicoles, les peuplements actuellement dépérissants étant ceux qui étaient trop denses dans le passé (compétition trop forte pour l'eau et les nutriments). Ces pratiques sylvicoles expliqueraient le fait que certains peuplements basculent dans le

dépérissement pendant les crises de sécheresse alors que d'autres ne paraissent pas être affectés.

La défoliation du sapin, qui est rarement précédée du jaunissement des aiguilles, est donc essentiellement due aux périodes de sécheresse et aux pratiques sylvicoles. Toutefois, malgré la fréquence élevée des années sèches ayant eu lieu au cours des dernières décennies, ces deux seuls facteurs ne sont probablement pas les seuls à mettre en cause, car ils n'expliquent pas le jaunissement observé chez cette espèce, même si celui-ci est faible. De même, la défoliation de l'épicéa apparaît être surtout la conséquence du jaunissement préalable de ses aiguilles et aucun de ces deux symptômes n'est corrélé aux accidents climatiques. D'autres facteurs interviennent à l'évidence, qui paraissent donc avoir un rôle plus important chez certaines espèces comme l'épicéa que chez d'autres comme le sapin. Nous allons en discuter plus en détail dans la suite de ce chapitre.

2.- LA PAUVRETE CHIMIQUE DES SOLS

En milieu non calcaire, le jaunissement est beaucoup plus répandu sur les roches pauvres que sur les roches riches et devient fréquent sur les grès et les granites les plus acides. Sur de telles roches et en ce qui concerne le massif vosgien, le jaunissement du sapin et de l'épicéa est très bien corrélé à des carences en Mg (LANDMANN *et al.*, 1987 ; BONNEAU, 1987a ; BONNEAU, 1989). Ceci est également le cas en Allemagne (SCHULZE, 1989). Dans les Ardennes, le jaunissement de l'épicéa correspond à des carences en Ca (NYS, 1987). Chez le sapin, les carences en Ca provoquent plutôt le brunissement des aiguilles. En règle générale, on ne constate pas de relation entre le taux de calcium et la classe de défoliation (BONNEAU, 1987a), malgré des niveaux de calcium souvent très faibles dans les aiguilles (BONNEAU, 1989).

Sur les sols calcaires des Pyrénées, des Alpes et du Jura, le jaunissement du sapin est lié à des carences en K (antagonisme de Ca et de Mg sur l'absorption de K). Il en est de même sur les sols décarbonatés mais saturés en bases. Des carences en Mn sont présumées exister sur sol dolomitique.

La faible fertilité chimique de certains sols ne constitue certainement pas le déterminisme essentiel du dépérissement, car leur pauvreté est une caractéristique ancienne. Il s'agit néanmoins d'un "facteur prédisposant" évident (BONNEAU, 1989).

3.- PLUIES ACIDES, ACIDIFICATION DES SOLS ET TOXICITE ALUMINEUSE.

L'acidification des écosystèmes a pour cause essentielle la présence dans l'atmosphère de SO_2 (qui s'oxyde en H_2SO_4), de NH_3 (qui se condense avec SO_2 pour donner $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ au niveau de la végétation), d'oxydes d'azote (NO_x) (qui se transforment en HNO_3), de chlorures et parfois des fluorures. Ces composés se dissolvent dans l'eau de pluie et se concentrent à la surface des organes aériens de la végétation par le jeu des dépôts secs et occultes. Ils acidifient les pluies, les pluviolessivats et les sols, soit directement, soit par le biais de la nitrification de l'ammonium.

Les dépôts, qui étaient pratiquement nuls au début de l'ère industrielle, ont rapidement augmenté depuis cette époque (GALLOWAY, 1989 ; SCHULZE, 1989). Les dépôts de H_2SO_4 , issus de l'utilisation massive des combustibles fossiles (pétrole, charbon, lignite), ont augmenté rapidement jusqu'en 1930-40 pour se stabiliser autour de 0,2 moles/m²/an (= 64 kg de S/ha/an) en Allemagne (SCHULZE, 1989) ou vers 10 millions de tonnes de S par an aux U.S.A. (= 10 kg de S/ha/an) (GALLOWAY, 1989). Par contre, les dépôts azotés, qui étaient relativement limités jusqu'en 1950-1960, ont fortement augmenté ensuite (JENKINSON, 1977 in LEGG et MEISINGER, 1982 ; GALLOWAY, 1989 ; SCHULZE, 1989), aussi bien en raison de la production massive d'oxydes d'azote par l'automobile que du fait de l'utilisation d'engrais azotés par l'agriculture ou de l'intensification de l'élevage dans certaines régions (épandages de lisiers). Ces dépôts azotés atteignent 0,3 moles/m²/an de HNO_3 en Allemagne (= 42 kg d'N/ha/an) (SCHULZE, 1989) et 0,15 moles/m²/an de NH_4 aux Pays-Bas (= 21 kg d'N/ha/an) (SCHULZE, 1989). Aux U.S.A., les dépôts sont en moyenne évalués à 6 millions de tonnes d'N par an (= 6 kg d'N/ha/an) (GALLOWAY, 1989) ; ils s'élèvent toutefois à 13-30 kg d'N/ha/an dans les zones agricoles (LEGG et MEISINGER, 1982). Les efforts actuellement faits pour limiter la pollution atmosphérique doit conduire, selon GALLOWAY (1989), à la stabilisation des émissions de soufre et d'azote dans les pays industrialisés. Les perspectives sont par contre beaucoup moins encourageantes dans les pays en voie de développement.

Au niveau des écosystèmes forestiers les apports sont très variables (Tableau I). Les régions forestières situées à proximité des grands centres de pollution européens reçoivent des apports atmosphériques importants. Les zones soumises à l'influence directe de la Ruhr, par exemple, reçoivent des apports de 20 à 50 kg d'N/ha/an et de 50 à 85 kg de S- SO_4 /ha/an (ULRICH *et al.*, 1979, 1980 ; MEIWES *et al.*, 1980). Aux confins de l'Allemagne et de la Tchécoslovaquie, les reliefs soumis à l'influence directe des centrales thermiques reçoivent 109 kg de S- SO_4 /ha/an (PACES, 1985 ; REHFUESS, 1987).

Tableau I.- Importance des dépôts acides d'origine atmosphérique au niveau de différents écosystèmes forestiers de l'hémisphère Nord.

Site	Espèce	Apports par les pluviollessivats (en Kg.ha/an)					Référence	
		H ⁺	N-NO ₃ ⁻	N-NH ₄ ⁺	N tot.	S-SO ₄ ²⁻		
FRANCE :								
Vosges (Haut-Jacques)	Sapin		19	14	20,4	27	Becquer <i>et al.</i> (1990)	
Vosges (Aubure)	Epicéa	1,9	11,1	5,6	16,7	32,8	Probst et Dambrine (1988) Dambrine et Prevosto (1989)	
Ardennes (Monthermé)	Epicéa				50,7	70,8	Nys (1987)	
	Hêtre				18,9	47,1		
Massif-Central (Mont-Lozère)	Epicéa		8,7	6,9	15,6	55,4	Probst et Dambrine (1988)	
	Hêtre		4,5	2,8	7,3	34,8		
ALLEMAGNE :								
Solling	Epicéa	3,15-3,81	15,7	15,5	31,2-50	68,8-108	Ulrich <i>et al.</i> (1979, 1980) Meiwes <i>et al.</i> (1980) Matzner (1986) Bredemeier <i>et al.</i> (1990)	
	Hêtre	1,34-1,9	11,5	13,4	24,9-40	39,1-66		
L. Heide	Pin	0,97	8,1	10,2	18,3	36		Bredemeier <i>et al.</i> (1990)
	Chêne	0,5	5	8,8	13,8	28,6		
Spanbeck	Epicéa	1,1	12,6	14,9	27,5	57,3	Bredemeier <i>et al.</i> (1990)	
Harste	Hêtre	0,41	12,6	12,5	25,1	24,1	Bredemeier <i>et al.</i> (1990)	
TCHECOSLOVAQUIE :								
Sud Bohême (zone rurale)	Epicéa	1,56			8	20-29,7	Faces (1985)	
Nord Bohême (zone industr.)	Epicéa	6,3			13	92-109	Faces (1985)	
PAYS-BAS :								
Forêts feuillues			41	13	54	100	Van Breemen <i>et al.</i> (1987)	
	Chêne		34	8	42			
GRANDE BRETAGNE :								
Ecosse	Chêne	1	3,1	4,3	7,4	27,4	Last (1989)	
	Epicéa de Norvège	3,8	11	17,2	28,2	99,7	Last (1989)	
	Epicéa Sitka	0,3	3,7	4,9	8,6	21,1	Last (1989)	
	Pin d'Ecosse	1,4	3,3	2,8	6,1	37,9	Last (1989)	
	Mélèze	0,8	0,6	3,1	3,7	36,5	Last (1989)	

Tableau I. (suite)

Site	Espèce	Apports par les pluviollessivats (en Kg.ha/an)					Référence
		H ⁺	N-NO ₃ ⁻	N-NH ₄ ⁺	N tot.	S-SO ₄ ²⁻	
SCANDINAVIE :							
Nord du Danemark (Gribskov forest)	Epicéa	1,84	9,5	16,6	26,1	49,1	Freiesleben <i>et al.</i> (1986)
Nord de la Suède	Epicéa	0,2-0,4			4,0-6,0	2,0-5,0	Nilsson (1986)
Sud de la Suède	Epicéa	0,8-1,2	5,7	4,7	10,4	24,7-31	Grennfelt <i>et al.</i> (1985)
Sud de la Norvège		0,44	16,7	5	21,7	25,1	Abrahamsen <i>et al.</i> (1989)
U.S.A. :							
New Hampshire (Hubbart Brook)	Epicéa	1	4,4	2,3	6,7	12,8	Likens <i>et al.</i> (1977) Johnson <i>et al.</i> (1989)
New Hampshire (Mt Moosilauke)	Epicéa	3,9	27,8	16	43,8	67,6	Johnson <i>et al.</i> (1989)
New York (White Face Mountain)	Epicéa	1	6,1	7,1	13,2	20,1	Johnson <i>et al.</i> (1989)
Walker Branch	Chêne	1,6	7,5	2,5	10	25,6	Johnson et Lindberg (1986)

Dans les secteurs d'élevage intensif des Pays-Bas, les apports sont les suivants : N = 45 à 63 kg/ha/an (33 à 48 kg d'N-NH₄ + 12 à 15 kg d'N-NO₃) ; S-SO₄ = 89 à 108 kg/ha/an (VAN BREEMEN *et al.*, 1982, 1987 ; VAN BREEMEN et JORDENS, 1983 ; MULDER *et al.*, 1987). Les régions qui ne sont pas directement soumises aux émissions polluantes reçoivent des apports nettement plus modérés. Les Vosges, par exemple, ne reçoivent que 15-20 kg d'N/ha/an et 30 kg de S/ha/an (PROBST et DAMBRINE, 1988 ; BECQUER *et al.*, 1990). Les zones rurales de Bohême ne reçoivent que 20-30 kg de S/ha/an (PACES, 1984, 1985). Ces apports peuvent être très faibles dans certaines régions : ainsi le nord de la Suède ne reçoit que 4 à 6 kg d'N/ha/an et 2 à 5 kg de S/ha/an (NILSON *et al.*, 1986). Il existe donc des zones de pollution aigüe situées à proximité des points d'émission et des zones plus modérément atteintes, souvent plus éloignées, soumises à une pollution qui diffuse à l'échelle planétaire.

Ces apports dépendent également de l'effet de filtre exercé par le couvert végétal vis à vis des particules et des aérosols présents dans l'atmosphère. Les forêts de résineux sont plus efficaces que les peuplements de feuillus en raison de la persistance de leur couvert durant l'hiver. Les dépôts mesurés sous pessière sont donc supérieurs à ceux mesurés sous hêtraie (MATZNER, 1986 ; NYS, 1987 ; PROBST et DAMBRINE, 1988).

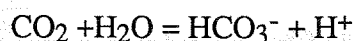
L'acidité des pluies et des pluviolessivats exerce diverses conséquences néfastes sur l'écosystème. Tout d'abord, elle amplifie l'extraction de divers nutriments du feuillage (récrétion) et favorise l'apparition de carences en Ca, Mg et K (MILLER et MILLER, 1980 ; KAUPENJOHANN *et al.*, 1988 ; DAMBRINE et PREVOSTO 1989).

L'acidité de l'eau favorise également l'appauvrissement des sols en ces mêmes éléments. Sous forêt, les sols reçoivent ainsi annuellement une quantité d'acide capable de dissoudre entre 100 et 700 Kg de calcaire pur par hectare. Les "pluies acides" jouent donc un rôle essentiel dans l'acidification des sols, notamment ceux présentant une faible capacité à tamponner les apports. Divers auteurs (HALLBÄCKEN et TAMM, 1986 ; FALKENGREN-GRERUP, 1989 ; BILLET *et al.*, 1990) ont ainsi montré que la baisse de pH pouvait atteindre une unité dans certains sols. On notera à ce propos que certains sols paraissent avoir perdu jusqu'à 30 % de leur réserve en Ca échangeable en 16 ans, ou encore que d'autres auront perdu la totalité de leurs réserves en Ca et Mg dans 1 siècle si le rythme de l'acidification n'est pas modifié (BONNEAU, 1989). Cette acidification favorise également l'apparition d'aluminium soluble dont certaines formes sont connues pour être toxiques. Ce point sera abordé dans la cinquième partie de ce document. Ceci provoque des nécroses racinaires et gêne l'absorption de l'eau et de certains éléments minéraux. La toxicité alumineuse agit probablement en synergie avec la pauvreté minérale des sols et les phases de sécheresse dans l'apparition des symptômes de dépérissement.

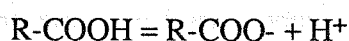
4. MINÉRALISATION DE LA MATIÈRE ORGANIQUE ET ACIDIFICATION DES SOLS

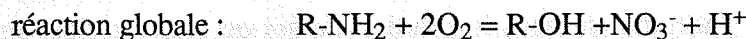
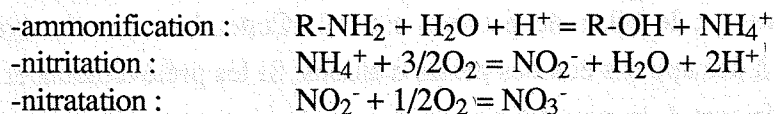
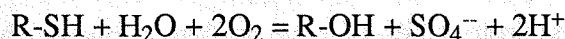
Nous avons vu précédemment le rôle majeur des apports externes dans l'acidification des sols. Il existe également de nombreuses sources de protons internes au sol (VAN BREEMEN *et al.*, 1983 ; BONNEAU *et al.*, 1987), qui, bien que naturelles, agissent dans le même sens que les précédentes. Parmi celles-ci, la minéralisation de la matière organique joue un rôle majeur. Les principales réactions mises en jeu sont les suivantes (VAN BREEMEN *et al.*, 1983) :

(1) : *la dissolution du CO₂*



(2) : *la dissociation des acides organiques*



(3) : *la minéralisation et la nitrification de l'azote organique*(4) : *la minéralisation et l'oxydation du soufre organique*

Le CO_2 provient de la minéralisation de la matière organique du sol et de la respiration des racines et des organismes vivants du sol. Une partie du CO_2 présent dans l'atmosphère du sol, dont la teneur est généralement très supérieure à celle de l'air libre, se dissout dans la solution du sol puis se dissocie pour former de l'acide carbonique. L'équilibre de la réaction de dissociation est régulé par la pression de CO_2 (PCO_2) et la concentration en protons du milieu selon l'équation :

$$(\text{H}^+)(\text{HCO}_3^-) = \text{PCO}_2 \cdot 10^{-7,81}$$

D'après les données de REUSS et JOHNSON (1986), la dissociation du CO_2 est pratiquement nulle à $\text{pH} < 4,5$. L'acide bicarbonique, qui est l'agent naturel majeur de l'acidification des sols alcalins ou neutres, a donc une action négligeable dans les sols les plus acides. Dans ce cas, cette acidité est remplacée par une importante acidité organique, qui provient de la dissociation des acides organiques produits lors de la transformation et de l'oxydation de la matière organique du sol. Dans les sols où l'activité biologique est importante (humus de type mull) la minéralisation de la matière organique est rapide et les acides organiques n'interviennent alors que dans l'acidification des horizons de surface (DAMBRINE et PREVOSTO, 1989).

La minéralisation de l'azote et du soufre organique conduit à la production de NH_4^+ et de SO_4^{--} . L'ammonium peut ensuite être nitrifié. L'ammonium et les nitrates sont consommés par la végétation et les microorganismes du sol. Les sulfates sont soumis à des processus physico-chimiques d'adsorption sur les colloïdes électropositifs du sol, notamment les oxyhydroxydes de fer et d'aluminium (TABATABAI, 1982 ; BOLAN, 1986a et b ; JOHNSON *et al.*, 1986 ; NOVODIN *et al.*, 1986 ; CURTIN et SYERS, 1990a). Dans un système en équilibre, en absence d'apports et de pertes par lixiviation, la consommation des nitrates et l'adsorption des

sulfates libèrent des ions OH^- , ce qui neutralise les protons produits lors de la formation de ces anions ; la consommation d'ammonium libère des protons qui neutralisent les ions OH^- produits lors de l'ammonification : le bilan de protons est nul. Cependant, les écosystèmes sont généralement soumis à des apports et à des pertes d'anions. Si les prélèvements et l'adsorption des anions sont supérieurs à la production par les cycles internes, ceux-ci conduisent à l'alcalinisation du milieu. A l'inverse, si la production est supérieure aux prélèvements et à l'adsorption, les anions s'accumulent dans la solution du sol ou sont lixiviés, les protons ne sont pas neutralisés et il y a acidification.

En ce qui concerne l'azote, la plupart des études rapportées dans la littérature semblent montrer que la production interne de protons liés au cycle de l'azote joue un rôle relativement faible dans le bilan global. Dans le cas de quatre écosystèmes des U.S.A. et des Pays Bas, VAN BREEMAN *et al.* (1983) indiquent que cette production varie de 0 à 1,2 kmoles/ha/an et ne représente que de 0 à 20 % du bilan total de protons. Dans les Vosges, DAMBRINE et PREVOSTO (1989), obtiennent les mêmes types de résultats : l'oxydation de l'azote du sol produit 0,06 kmoles/ha/an sur un total de 3,12 kmoles/ha/an. Dans le cas de cinq stations étudiées en Allemagne, BREDEMEIER *et al.* (1990) indiquent que la totalité des sources internes de protons représente moins de 30 % du bilan total. Ces différents résultats semblent donc attribuer un rôle mineur aux processus internes d'acidification par rapport aux apports atmosphériques, ce qui tend à signifier que les écosystèmes auraient atteint un quasi état d'équilibre dans ce domaine. Toutefois, ces données, généralement exprimées en moyennes annuelles, ne semblent pas s'attacher suffisamment aux variations saisonnières qui sont susceptibles d'affecter cette production interne. Certaines études révèlent en effet que la nitrification peut être suffisamment forte dans certaines situations pour entraîner une baisse de pH très sensible (MATZNER, 1986), ce qui provoque la solubilisation des cations alcalins et alcalino-terreux (BERTHELIN *et al.*, 1985), ainsi que la solubilisation de l'aluminium (BONNEAU, 1987a ; MULDER *et al.*, 1987 ; GRAS *et al.*, 1988 ; ADAMS *et al.*, 1990), qui peut alors être toxique. Cette accumulation de nitrate se produisant à certaines périodes de l'année (MATZNER, 1986) pourrait être due, selon ULRICH (1983) et ULRICH *et al.* (1980), à un dysfonctionnement des écosystèmes en voie d'acidification, dont la conséquence essentielle serait l'apparition d'une certaine toxicité alumineuse. Cette dernière pourrait être responsable du dépérissement des forêts dans les régions acides.

5.- IMPACT DIRECT DES POLLUANTS ATMOSPHERIQUES

Plusieurs hypothèses se fondent sur l'action directe de divers polluants atmosphériques pour expliquer le dépérissement forestier. En effet, divers polluants provoquent des altérations importantes du fonctionnement physiologique du feuillage.

L'hypothèse de l'action du SO_2 , dont la présence dans l'atmosphère provient principalement de l'utilisation des combustibles fossiles, peut localement être retenue. Ce gaz pénètre dans les stomates, se transforme en H_2SO_4 qui provoque le blanchiment (feuillus) ou le brunissement (conifères) du feuillage et entraîne la mort de la végétation. Le seuil d'apparition des dégâts paraît devoir se situer vers $96 \mu\text{g}$ de $\text{SO}_2/\text{m}^3/24 \text{ h}$ (SCHULZE, 1989). Cette action rend compte de l'anéantissement des forêts en Europe centrale, où la présence de centrales thermiques à lignite rejetant de fortes quantités de SO_2 est à l'origine de l'une des pollutions atmosphériques les plus fortes du continent. C'est ainsi que les concentrations en SO_2 mesurées au niveau des reliefs les plus exposés de Tchécoslovaquie (Forêt de Bohême) sont chroniquement comprises entre 55 et $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (PACES, 1985 ; REHFUESS 1987). Dans cette région, plus de 30000 ha de forêts ont disparu en une dizaine d'année. En Europe occidentale, les teneurs de l'atmosphère en SO_2 sont plus faibles et le dépérissement forestier ne paraît pas pouvoir leur être imputé (Vosges : 10 à $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ durant la saison de végétation, avec de brefs pics de 200 - $300 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{jour}$ en hiver (HENNEQUIN, 1987 ; BONNEAU, 1989), sans effet important car les stomates sont plus ou moins fermées et le SO_2 est alors peu dangereux (SCHULZE, 1989).

L'hypothèse de l'action de l'ozone n'est toujours pas à rejeter. Ce gaz résulte de l'action des UV sur les oxydes d'azote gazeux, les hydrocarbures volatiles et l'oxygène. Il endommage les tissus, les rend réceptifs aux pathogènes, fait diminuer la résistance des arbres au froid et accélère l'extraction des nutriments par les pluies. Il agit donc en synergie avec l'acidité des pluies et est particulièrement nocif au niveau des sols désaturés. Les valeurs seuil d'apparition de symptômes visibles (nécroses, jaunissements, chutes de feuilles,...) varient considérablement selon les auteurs : HINRICHSSEN (1986) et BONNEAU (1989) le situent vers 100 - $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pendant 6 h ou plus alors que SCHULZE (1989) le situe à $1080 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pendant 8 h . Des altérations physiologiques, telles que la réduction de la photosynthèse ou l'augmentation de la transpiration, peuvent cependant apparaître, chez les espèces les plus sensibles, à des teneurs nettement plus faibles, de l'ordre de 40 à $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (BONNEAU, 1989). Les teneurs en ozone mesurées en Europe et aux USA se situent entre 50 et 250 (400) $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Dans les Vosges, la moyenne des concentrations mesurées hors couvert avoisine les 58 à $64 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (100 en été) (HENNEQUIN, 1987 ; BONNEAU, 1989), mais il existe des pics de concentration atteignant

220 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. En atmosphère forestière les concentrations sont encore supérieures et le risque est évident, notamment sur les sols pauvres.

Le rôle des polluants organiques a également été invoqué. L'éthylène et l'aniline sont les principaux d'entre eux à pouvoir avoir une action néfaste sur la santé des forêts (HINRICHSSEN, 1986). Le premier provoque la chute des feuilles pour des concentrations supérieures à 0,1 g/l d'air. Le second provoque le brunissement des aiguilles et la mort de certains résineux, de même que la chute des feuilles vertes chez les feuillus. Ces types de pollution sont surtout des phénomènes locaux issus de certaines industries chimiques.

L'effet des métaux lourds (Pb, Cd, Cu, Zn, ...), dont la présence sous forme d'aérosols dans l'atmosphère, puis le dépôt et l'accumulation dans les sols, sont liés à l'utilisation des combustibles fossiles, aux industries métallurgiques et à l'automobile, a également été incriminé en ce qui concerne le dépérissement des forêts (HINRICHSSEN, 1986). On peut doser jusqu'à 2 g de Pb/m² dans certains humus forestiers; toutefois la part respective de la pollution et de l'accumulation naturelle par le jeu des cycles biologiques (à partir du plomb naturel des roches) est inconnue. Quelle qu'en soit l'origine, les métaux lourds présents dans les sols sont susceptibles d'être solubilisés et rendus toxiques vis à vis des microorganismes et de la végétation (apparition de chloroses, etc...), par le simple fait de l'acidification des pluies.

6.- SURFERTILISATION DES SOLS PAR LES POLLUANTS AZOTES ATMOSPHERIQUES

Des apports importants en nitrates ou en ammoniac d'origine atmosphérique sont susceptibles d'exercer un effet de surfertilisation azotée sur les peuplements forestiers. En agissant en synergie avec l'augmentation des températures et des teneurs en CO₂ de l'atmosphère, cette surfertilisation contribuerait elle aussi à l'augmentation de la croissance des arbres que l'on observe depuis l'essor industriel des pays les plus développés. Ces trois facteurs provoqueraient une augmentation de la demande vis à vis des autres éléments, épuiseraient le sol et provoqueraient des carences en nutriments. En conjonction avec l'augmentation des phénomènes de récréation, ceci pourrait expliquer l'apparition du jaunissement sur sol calcaire, où l'acidification du substrat ne peut être invoquée. Cette hypothèse est renforcée par le fait qu'une fertilisation azotée volontaire du sol provoque le jaunissement de l'épicéa en faisant apparaître des carences minérales, lorsqu'aucun autre élément n'est apporté en complément (NYS, 1989).

En Europe occidentale, le risque de voir ce mécanisme se réaliser est important dans des régions à forte intensité d'élevage comme la Bretagne ou les Pays-Bas (les apports d'N

s'élèvent à 45-63 kg/ha/an au voisinage des zones d'épandage de lisier aux Pays-Bas) ou à forte industrialisation comme la Ruhr (apports d'N = 20 à 50 kg/ha/an). Dans les régions peu industrialisées et essentiellement atteintes par des pollutions diffuses, le risque est plus faible mais est loin d'être nul. C'est ainsi que des apports de 20 et 28 kg d'N/ha/an ont été mesurés sur le versant occidental des Vosges et dans les Ardennes, respectivement (NYS, 1987 ; BECQUER *et al.*, 1990).

7.- L'HYPOTHESE "PATHOGENES"

La présence d'organismes pathogènes dans les peuplements dépérissants a souvent été observée (champignons parasites, virus, etc...). Ces organismes apparaissent toutefois être davantage une conséquence du dépérissement que la cause de celui-ci. En particulier les virus observés dans les aiguilles jaunissantes des résineux sont incapables de provoquer l'extension de ce même jaunissement au reste de l'arbre lorsque des rameaux jaunes sont greffés à des arbres sains (BONNEAU, 1989). On doit néanmoins garder en mémoire que cette flore délétère est susceptible d'exercer un effet de compétition directe avec les racines pour l'absorption des éléments minéraux (LE TACON, 1988).

8.- L'INFLUENCE DE L'ACIDIFICATION SUR LES MYCORHIZES

Dans les peuplements forestiers, les mycorhizes (notamment les ectomycorhizes) jouent un rôle majeur dans la nutrition minérale des arbres. L'acidification des écosystèmes est susceptible de provoquer une réduction de la mycorhization. HINRICHSSEN (1986) et JANSEN (1988) ont souligné l'existence d'une relation négative entre l'importance des dépôts atmosphériques de SO₂ et NO_x et la mycorhization. La solubilisation d'aluminium induite par ces apports acides peut, en particulier, avoir une action défavorable. Diverses études, menées *in vitro*, ont montré que la tolérance des champignons mycorhiziens à l'aluminium était très variable en fonction des espèces étudiées : *Suillus variegatus* présente une croissance réduite de façon significative en présence de 5 ppm d'aluminium, alors que *Suillus lateus* n'est affecté qu'au-delà de 300 ppm (THOMPSON et MEDVE, 1984 ; ZEL et GOGALA, 1989). L'aluminium peut donc conduire à une diminution de la mycorhization et/ou à la sélection des espèces les plus tolérantes. La nutrition minérale, notamment en phosphore, peut être perturbée.

IV.-CONCLUSIONS

De très nombreuses hypothèses ont été émises pour expliquer le dépérissement forestier. Nous n'avons fait ici qu'évoquer celles qui nous paraissent être actuellement les mieux étayées.

Il est actuellement acquis que la défoliation de certains conifères indigènes en Europe occidentale provient essentiellement de déficits hydriques répétés, dont l'impact se trouve être renforcé par celles des pratiques sylvicoles qui augmentent la demande en eau. Bien qu'il soit dans ce cas d'origine climatique et a priori naturel, il n'est pas impossible que ce dépérissement soit en réalité fortement influencé par les activités humaines. Les périodes de sécheresse incriminées et les phases de défoliation qui en résultent se manifestent en effet au sein d'une vaste période de forte croissance globale qui semble être liée à une augmentation généralisée des températures dans l'hémisphère nord. L'apparition de cette phase "chaude" coïncide avec l'essor de l'ère industrielle dans les pays développés, et il n'est pas exclu que tout ceci résulte de "l'effet de serre". On peut en outre penser que l'augmentation des teneurs en CO_2 et/ou en polluants azotés inorganiques de l'atmosphère contribue également à cette augmentation de croissance.

Les pollutions atmosphériques jouent à l'évidence un rôle important. Les phénomènes de dépérissement aigu suivi de l'anéantissement des peuplements doivent légitimement être imputés aux émissions de SO_2 gazeux et aux retombées d'acide sulfurique à proximité des points d'émission. Bien que spectaculaires et dramatiques, ces dépérissements aigus ne constituent pas la situation générale. Les dépérissements chroniques d'origine nutritionnelle, qui, quant à eux, ne se traduisent pas par la mort des forêts, mais se manifestent plutôt par des phases temporaires de défoliation et de jaunissement alternant avec des phases de rémission, sont bien plus répandus. Divers mécanismes permettent d'expliquer les désordres nutritionnels pouvant conduire au dépérissement, notamment : i) l'acidification des écosystèmes par les pluies et les dépôts secs et occultes amplifie les phénomènes de récrétion, provoque l'appauvrissement des sols en nutriments et peut induire l'apparition au moins momentanée d'une certaine toxicité alumineuse, qui gênerait considérablement la réabsorption de certains des nutriments initialement perdus ; ii) l'augmentation du taux d'ozone est susceptible de fragiliser les arbres et d'augmenter l'intensité des phénomènes de récrétion ; iii) une augmentation "anormale" de la croissance des peuplements est susceptible d'entraîner une trop forte demande en nutriments et de conduire, en conjonction avec les autres facteurs, à l'apparition de carences minérales et au jaunissement.

Le rôle des facteurs climatiques ou de l'action directe des polluants gazeux sur la végétation est actuellement bien démontré. L'action acidifiante de plusieurs types de retombées atmosphériques ne peut pas davantage être mise en doute. Par contre, l'hypothèse de l'apparition récente d'un déséquilibre affectant les cycles biologiques internes du sol, et en particulier modifiant le cycle de l'azote, voire celui du soufre, est moins bien étayée. Certaines études montrent une relation étroite entre une forte accumulation de nitrate, l'abaissement du pH et l'augmentation des concentrations en aluminium, alors que les bilans annuels de protons indiquent une intervention réduite de ces mécanismes dans l'acidification. Il nous a donc paru intéressant de préciser l'action des flux des anions majeurs (NO_3^- et SO_4^{2-}), et ceci plus particulièrement à l'échelle saisonnière. Après une analyse du bilan entrées-sorties au niveau du système sol-plante, nous avons donc mesuré les flux (production, prélèvements par la végétation, lixiviation) de NO_3^- et de SO_4^{2-} afin de pouvoir en apprécier les conséquences sur le bilan des protons et sur les risques de toxicité dûs à la solubilisation de l'aluminium.

to this the history of the French language is a history of the French people. The French language is a living language, it is not a dead language. It is a language that has been spoken for centuries, and it is a language that is still being spoken today. The French language is a language that has been shaped by the French people, and it is a language that has shaped the French people. The French language is a language that is full of life, and it is a language that is full of love. The French language is a language that is a part of the French people, and it is a language that is a part of the French people's life. The French language is a language that is a part of the French people's history, and it is a language that is a part of the French people's future. The French language is a language that is a part of the French people's identity, and it is a language that is a part of the French people's soul. The French language is a language that is a part of the French people's heart, and it is a language that is a part of the French people's mind. The French language is a language that is a part of the French people's body, and it is a language that is a part of the French people's spirit. The French language is a language that is a part of the French people's life, and it is a language that is a part of the French people's death. The French language is a language that is a part of the French people's everything, and it is a language that is a part of the French people's nothing. The French language is a language that is a part of the French people's all, and it is a language that is a part of the French people's none. The French language is a language that is a part of the French people's everywhere, and it is a language that is a part of the French people's nowhere. The French language is a language that is a part of the French people's always, and it is a language that is a part of the French people's never. The French language is a language that is a part of the French people's forever, and it is a language that is a part of the French people's nevermore. The French language is a language that is a part of the French people's everything, and it is a language that is a part of the French people's nothing. The French language is a language that is a part of the French people's all, and it is a language that is a part of the French people's none. The French language is a language that is a part of the French people's everywhere, and it is a language that is a part of the French people's nowhere. The French language is a language that is a part of the French people's always, and it is a language that is a part of the French people's never. The French language is a language that is a part of the French people's forever, and it is a language that is a part of the French people's nevermore.

DEUXIEME PARTIE

LES SITES D'ETUDES ET LE CLIMAT DE POLLUTION

LES SITES D'ETUDES ET LE CLIMAT DE POLLUTION

Notre objectif, dans ce travail, est de mieux comprendre certaines des causes du dépérissement forestier. Dans ce but, nous avons choisi deux stations forestières aussi proches que possible du point de vue du pédoclimat et de l'identité des essences présentes, le critère discriminant étant l'état de santé des peuplements. Dans ce chapitre, nous avons donc comparé les deux sites d'étude en ce qui concerne les caractéristiques physico-chimiques du sol, le climat général et le climat de pollution. En ce qui concerne ces deux derniers points, nous nous sommes plus particulièrement attachés à décrire les conditions enregistrées au cours de la période d'étude, qui s'est étalée sur deux années dans le cas de la station dépérissante (du 22 mars 1988 au 18 avril 1989 et du 25 mai 1989 au 1er juin 1990) et une année dans la station saine (du 25 mai 1989 au 1er juin 1990).

I.- SITUATION DES STATIONS

Les deux sites étudiés se trouvent dans les Basses-Vosges gréseuses entre les villes de Saint-Dié et de Rambervillers (Figure II.1.).

La forêt dépérissante se trouve à proximité du col du Haut-Jacques (coordonnées = E 6°51' - N 48°17'), à une altitude de 600 m (dans la suite de ce document, cette station sera notée "Haut-Jacques"). Il s'agit d'une sapinière à hêtre d'environ 110 ans. Le sapin (*Abies alba* Mill) domine largement le hêtre (*Fagus sylvatica* L.) qui ne représente que 10% de la strate arborescente. Le dépérissement est très accentué : environ 80% des sapins ont des pertes d'aiguilles supérieures à 60%. Les aiguilles restantes ainsi que les feuilles de hêtre présentent souvent un jaunissement important. La strate herbacée est largement dominée par la fétuque (*Festuca silvatica* Vill.) et les ronces (*Rubus* sp.). Ces deux espèces sont caractéristiques des sols bruns à mull acide à forte activité biologique (DUCHAUFOR, 1955).

La forêt saine est située près du village de Saint-Benoît-la-Chipotte (coordonnées = E 6°46' - N 48°22') à une altitude de 460 m (cette station sera notée "La Chipotte"). Il s'agit d'une sapinière pure de 40 ans qui ne présente pas de symptômes de dépérissement. La végétation herbacée est représentée par des mousses, des ronces et des pieds épars de canche flexueuse (*Deschampsia flexuosa* L.). C'est une végétation plus acidiphile dont la nature est en relation avec un humus de type mull-moder.

II. - LE SOL

1. - LES CARACTERISTIQUES MORPHOLOGIQUES

Les sols de nos deux stations sont tous deux des sols bruns acides. Ils présentent cependant quelques différences morphologiques (Annexe I). La matière organique s'accumule plus nettement en surface dans le cas de la station saine. L'humus, qui est un mull typique dans la station dépérissante, tend au moder dans la localité saine. Le sol de la Chipotte est également beaucoup plus compact, plus riche en argiles et en sables grossiers. Il montre en outre des traces d'hydromorphie en profondeur.

2. - LES CARACTERISTIQUES PHYSICO-CHIMIQUES

Au niveau chimique, les deux sols ne présentent pas de différences importantes (Tableau II.1.). Le $\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}}$ est légèrement plus faible dans la station saine avec une teneur en aluminium sur le complexe d'échange plus élevée. Le taux de saturation en bases au pH du sol est faible dans les deux cas (environ 10 à 20 %), le sol du Haut-Jacques étant plus riche en calcium et plus pauvre en potassium.

Tableau II.1.- Caractéristiques physico-chimiques des sols.

Horizons	pH _{H2O}	CEC pHsol (me/100g ⁻¹)	Bases éch. % CEC pH _{sol}	Al ³⁺ éch. (me/100g ⁻¹) ^a	Arg. (% sol)	C %	N %	Extract. oxalate (% sol) ^b		Extract. C.B.D. (% sol) ^c	
								Fe	Al	Fe	Al
HAUT-JACQUES											
A ₁₁ (0-5 cm)	4,1	4,5	22,2	2,1	6,3	5,3	0,29	1,3	0,9	3,8	0,7
A ₁₂ (5-15)	4,3	4,2	13,6	2,3	7,8	2	0,12	1,3	0,9	3,5	0,8
A ₁ (B) (15-30)	4,6	2,6	10,5	1,5	7,7	0,6	0,04	1,2	1,2	3,7	1,3
(B) (30-40)	4,8	2,1	12	1,3	8,1	0,3	0,02	1,1	1,2	3,3	1,2
C (80-100)	4,6	3,4	10,5	2,7	12,7			1,3	1,1	6,7	1,1
LA CHIPOTTE											
A ₀ -A ₁ (0-5 cm)	3,9	4,7	15,3	3,6	12,1	5,8	0,30	1,7	1,1	3,6	0,8
A ₁₂ (5-15)	4,1	4,0	7,2	3,4	12,4	2,2	0,08	2,3	2,1	4,2	0,6
A ₁ (B) (15-30)	4,2	2,4	7,9	2,1	12,4	1,1		2	2,3	4	1,8
(B) (30-60)	4,3	2,1	7,6	1,8	13,1	0,6		1,8	2	4,2	1,6
C (100-130)	4,4	3,4	7,6	3,0	11	0,1		1,7	1,1	4	1

a. Rouiller *et al.* (1980) ; b. Extraction oxalate de Tamm (Schwertmann, 1964) ; c. Extraction au Citrate-bicarbonate-dithionite de sodium (Mehra et Jackson, 1960)

III.- LE CLIMAT

1. - LES PRECIPITATIONS

Le Tableau II.2. présente les hauteurs des précipitations mensuelles relevées aux postes météorologiques les plus proche des deux stations, Rambervillers pour la station de la Chipotte et Saint-Dié pour la station du Haut-Jacques. Les valeurs recueillies durant la période d'étude sont comparées aux valeurs "normales" (= moyenne de la hauteur des précipitations d'une période de référence) mesurées durant la période 1931-1960. Ces "normales" sont élevées et atteignent 830 mm à la station saine et 1170 mm à la station déperissant. Les précipitations sont bien réparties toute l'année.

Durant la période d'étude, la pluviométrie annuelle a été normale à la Chipotte en 1989, alors qu'au Haut-Jacques, elle a été supérieure à la moyenne en 1988 et inférieure en 1989. En ce qui concerne les rythmes saisonniers, nous avons estimé les déficits hydriques et le drainage climatique pour chaque mois par la différence entre la hauteur des pluies et l'ETP. Celle-ci a été obtenue à partir des données moyennes de Saint-Dié durant la période 1961-1973 (CACHAN, 1974) (Tableau II.3.). Les deux années ont été marquées par une pluviométrie estivale très faible, avec 4 à 5 mois de déficit hydrique (figure II.2.). Les automnes et les hivers ont au

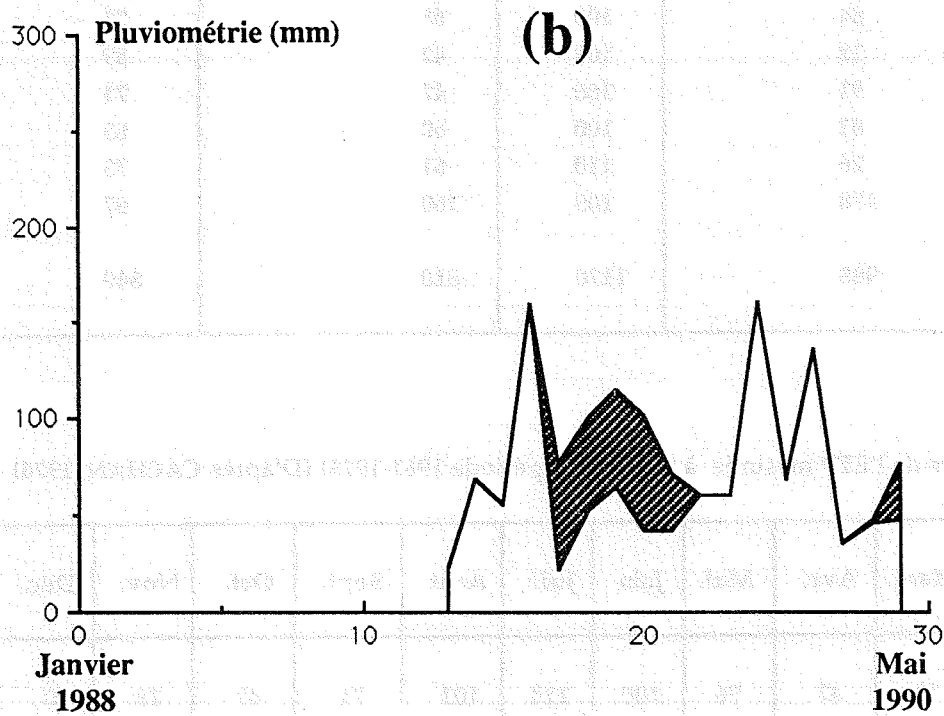
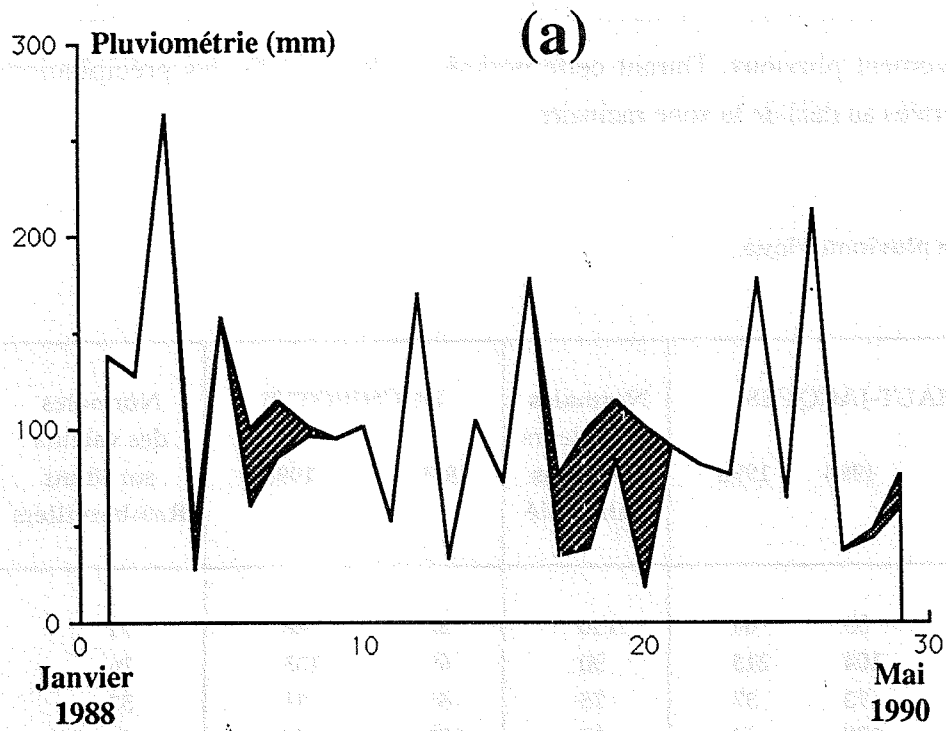
contraire été relativement pluvieux. Durant cette période de 80 à 85 % des précipitations incidentes sont exportées au delà de la zone racinaire.

Tableau II.2.- Régime pluviométrique.

	HAUT-JACQUES			Normales des valeurs sur 30 ans Saint-Dié	LA CHIPOTTE		Normales des valeurs sur 30 ans Rambervillers
	1988	1989	1990		1989	1990	
Janvier	138	33	64	110	22	68	71
Février	128	104	213	90	69	135	76
Mars	263	73	37	75	55	35	53
Avril	28	177	44	70	159	46	53
Mai	158	34	59	85	23	57	63
Juin	61	38		120	52		90
Juillet	86	84		100	65		71
Août	96	18		105	42		89
Septembre	95	91		100	42		71
Octobre	101	82		100	60		63
Novembre	53	76		110	61		73
Décembre	170	178		105	160		67
Total	1377	988		1170	810		840

Tableau II.3.- Valeurs de l'ETP mesurée à Saint-Dié (période 1961-1973) (D'après CACHAN, 1974)

Janv.	Fev.	Mars	Avr.	Mai	Juin	Juil.	Août	Sept.	Oct.	Nov.	Déc.
0	6	19	47	76	100	114	101	71	47	18	0



— Pluviométrie
 ▨ Déficit hydrique

Figure II.2.-Les périodes de déficit hydrique au cours de l'étude pour les stations du Haut-jacques (a) et de La Chipotte (b).

2. - LES TEMPERATURES

Le Tableau II.4. présente les températures moyennes mensuelles relevées aux mêmes stations que précédemment, au cours de la période d'étude. Les valeurs des "normales", enregistrées à Epinal de 1921 à 1950, sont également mentionnées. Les températures de 1988 et 1989 sont proches des valeurs "normales", bien que les hivers aient été plus doux que d'habitude pendant les deux années d'étude (températures de 1 à 4° C plus élevées que la moyenne en ce qui concerne les trois mois d'hiver)

Tableau II.4.- Régime des températures.

	HAUT-JACQUES			LA CHIPOTTE		Normales des valeurs sur 30 ans Epinal
	1988	1989	1990	1989	1990	
Janvier	4,9	2,1	1,7	2,2	2	1
Février	2,5	3,4	6,6	3,3	7	2,1
Mars	4,1	8,3	7,2	8,2	7,6	5,6
Avril	9,3	7,7	7,4	7,7	8	9,1
Mai	13,9	14,3	14,3	14,3	14,6	13,2
Juin	15,5	15,2		15,3		16,3
Juillet	17,1	18,5		19,3		18,3
Août	17,5	17,8		18,4		17,7
Septembre	14	14,5		14,3		14,9
Octobre	11,2	10,6		11,2		10,1
Novembre	3,6	3,7		3,3		5,1
Décembre	3,7	3		2,9		1,1

3.- COMPARAISON CLIMATIQUE DES DEUX STATIONS

Le climat de l'Est de la France et notamment celui du massif vosgien est marqué par une grande variabilité (SHAMSI, 1968 ; CACHAN, 1974 ; BOUDOT, 1982) allant jusqu'à des climats de type subalpin voir alpin au niveau des sommets vosgiens. La synthèse climatique de l'Est de la France réalisée par SHAMSI (1968) repose sur différents paramètres qui permettent de classer et de comparer différentes stations. Ces paramètres sont les suivants :

- nombre de mois pendant lesquels la température moyenne est supérieure ou égale à 10 °C ;
- température moyenne du mois le plus froid ;

$$\text{- continentalité thermique} = \frac{(1,7 \cdot \text{amplitude moyenne annuelle})}{\sin (\text{degré latitude} + 10)} - 14 ;$$

$$\text{-continentalité pluviale} = \frac{\text{Précipitations des 6 mois les plus chauds}}{\text{Précipitations des 6 mois les plus froids}} ;$$

- régime pluviométrique = classement des saisons par pluviométrie décroissante.

Les valeurs de ces paramètres pour 1988 et 1989 ainsi que les valeurs moyennes sont présentées dans le Tableau II.5.

Tableau II.5.- Caractéristiques climatiques des deux années d'étude comparées aux périodes de référence (1931-1960 pour la pluviométrie, et 1921-1950 pour les températures).

	Température moyenne du mois le plus froid	Nb de mois avec T ≥ 10°C	Continentalité thermique	Continentalité pluviale	Régime pluviométrique*	Conclusion
HAUT-JACQUES						
Période de référence	1	6	20,68	1,05	AEHP	Climat mésothermique humide mi-continental, mi-océanique, à été long
1988	2,5	6	16,07	0,77	HAEP	
1989	2,1	6	18,88	0,54	APHE	
LA CHIPOTTE						
Période de référence	1	6	20,68	1,17	EPAH	Climat mésothermique humide mi-continental, mi-océanique, à été long
1989	2,2	6	20,28	0,54	APEH	

* Classement des saisons par pluviométrie décroissante

Il apparaît que les deux stations étudiées présentent de grandes similitudes du point de vue climatique, avec néanmoins une différence importante au niveau de la hauteur des précipitations (respectivement 1170 mm/an au Haut-Jacques et 840 mm/an à la Chipotte). Cette différence, liée à la distance séparant ces deux localités de la crête principale des Hautes-Vosges, est très marquée en automne et en hiver (+ 210 mm au Haut-Jacques). Ceci joue probablement un rôle important vis à vis des risques de lixiviation existant dans les deux peuplements étudiés. Les stations de ce type appartiennent au "Climat mésothermique humide mi-continental, mi-océanique, à été long" de SHAMSI (1968). Les années 1988 et 1989 se démarquent toutefois fortement des "normales" par une faible pluviométrie pendant la saison chaude, caractérisé par une continentalité pluviale nettement inférieur à 1 alors qu'en général elle se situe entre 1 et 1,2. La continentalité thermique est également plus faible que la normale en raison d'une amplitude thermique réduite.

Ces deux particularités traduisent une tendance climatique beaucoup plus océanique pour les deux années d'étude, avec un déficit hydrique estival qui peut-être très préjudiciable pour les peuplements, et avec un drainage climatique hivernal qui peut amplifier l'exportation des éléments minéraux.

IV. - LE CLIMAT DE POLLUTION DES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

1. - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Les précipitations incidentes ont été récoltées et mesurées dans trois pluviomètres (1 seul à la Chipotte) de type météorologie nationale, constamment ouverts. Ceux-ci étaient situés dans des zones déboisées situées à environ 500 m de chacune des stations d'étude.

Les pluvioléssivats ont été récoltés par différents systèmes. Dans la station déperissante, 3 pluviomètres identiques aux précédents, 8 bacs rectangulaires (0,54 m X 0,28 m) servant à la récolte des litières (les aiguilles et les feuilles se déposant sur une toile en nylon et l'eau s'écoulant vers des réservoirs placés sous ces bacs) et 2 collecteurs à gouttière (2 m X 0,12 m) ont été utilisés. A la Chipotte, les pluvioléssivats ont été récoltés à l'aide d'un seul pluviomètre.

L'écoulement le long des troncs n'a pas été mesuré, en raison de difficultés techniques et du faible pourcentage qu'il représente (moins de 10 % des pluvioléssivats selon LOVBLAD et WESTLING (1989) dans le cas des résineux. (Ces flux pourraient toutefois être plus élevés et atteindre 20-25 % des quantités de soufre récoltées dans les pluvioléssivats et 10-15 % de celles de l'azote dans les forêts feuillues).

2. - METHODES D'ANALYSES

Les prélèvements des pluvioléssivats ont été effectués chaque semaine, au cours de deux périodes fortement pluvieuses d'environ six semaines (généralement en mai-juin et en novembre-décembre). Le reste du temps, les prélèvements n'ont été que ponctuels et ont été effectués en fonction des épisodes pluvieux.

Après leur retour au laboratoire, les eaux sont filtrées à 0,45 µm sur des membranes Millipore, puis analysées pour le pH, les cations majeurs, les anions, le carbone organique et inorganique, selon les méthodologies suivantes :

- le pH est mesuré au pH-mètre (TACUSSEL PHN-850), avec une électrode AgCl-KCl ;
- Ca, Mg, Mn, Al, Fe ont été dosés par spectrométrie d'émission par torche à plasma (I.C.P. JOBIN YVON JY32) ;
- Na et K ont été dosés par spectrométrie d'absorption atomique à flamme (VARIAN AA6)
- NH_4 est dosé par chromatographie ionique (DIONEX 2000i avec précolonne et colonne CS2 DIONEX) depuis juin 1989. Auparavant, nous utilisions la méthode colorimétrique au bleu d'indophénol (réaction de BERTHELOT, 1859) ;
- les anions (NO_3^- , SO_4^{2-} , Cl^- , PO_4^{2-}) sont dosés par chromatographie ionique (DIONEX 2000 avec précolonne et colonne AS4A DIONEX) depuis juin 1989. Auparavant, les nitrates étaient dosés par colorimétrie au sulfate d'hydrazine sur autoanalyseur TECHNICON et le chlore par colorimétrie au thiocyanate mercurique (réaction de SWAIN, 1956). Les sulfates étaient jusqu'à cette date assimilés au soufre total, qui était dosé à la torche à plasma ;
- le carbone est dosé en milieu liquide à l'aide d'un T.C.M. (Total Carbon Monitoring) avec un appareil CARLO-ERBA 420.

3. - RESULTATS

Les résultats des analyses des pluies et des pluviolessivats récoltés entre janvier 1987 et juin 1990 ont été utilisés dans le cas de la station déperissante (Tableau II.6.). Les pluies (pH moyen = 4,5) et les pluviolessivats (pH moyen = 4,3) ont un caractère acide marqué, du fait des teneurs importantes en nitrates et sulfates. L'acidité est légèrement plus marquée en hiver et au printemps (pH plus bas d'environ 0,2 unité par rapport à la moyenne annuelle). En été les apports acides sont relativement faibles et le pH remonte autour de 4,8. Les pluies sont très peu chargées en cations, hormis en protons. Lors de leur transfert à travers le couvert végétal, elles se chargent en cations et en anions par lavage des dépôts secs, humides et occultes, ainsi que des éléments provenant des processus de récrétion. Par rapport aux pluies, les teneurs des pluviolessivats sont multipliées par 2-3 pour les éléments dont l'origine est essentiellement imputable aux dépôts atmosphériques tels que le sodium, le chlore, les protons le soufre et l'azote. Par contre, les concentrations des éléments d'origine mixte ou provenant des processus de récrétion sont 5 à 30 fois plus fortes dans les pluviolessivats que dans les pluies. Des observations similaires ont été effectuées par DAMBRINE et PREVOSTO (1989) à Aubure (Vosges).

En ce qui concerne la station saine, nous ne disposons de résultats que de janvier 1989 à juin 1990. Il n'y a pas de différences importantes des concentrations des pluies et des pluviolessivats par rapport à celles de la station déperissante (Tableau II.6.), hormis pour les

nitrate dans les pluviollessivats : leur concentration est seulement de 3,45 mg/l à la Chipotte alors qu'elle s'élève à 9,65 mg/l au Haut-Jacques.

Tableau II.6.- Composition chimique des pluies et des pluviollessivats (moyennes saisonnières sur la période 01/01/1987-01/06/1990).

	P (en mm)	pH	H ⁺ μg/l	Na mg/l	K mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Mn mg/l	Al mg/l	NH ₄ mg/l	SO ₄ mg/l	NO ₃ mg/l	Cl mg/l
HAUT-JACQUES													
Pluies													
Printemps	248	4,44	36,31	0,38	0,20	0,08	0,44	0,03	0,05	0	2,84	2,84	0,83
Été	235	4,75	17,78	0,23	0,25	0,07	0,48	0,03	0,02	0,09	1,50	0,66	0,82
Automne	330	4,73	18,62	0,63	0,13	0,15	0,23	0,03	0,02	0,14	1,36	0,74	0,87
Hiver	370	4,41	38,90	0,61	0,14	0,12	0,30	0,02	0,04	0,06	1,95	1,44	1,46
Année	1183	4,55	28,18	0,45	0,19	0,1	0,38	0,03	0,03	0,07	2,15	1,67	1,04
Pluviollessivats (mg/l)													
Printemps	198	4,16	69,18	0,90	2,60	0,41	2,02	0,69	0,14	0,03	8,38	13,49	3,27
Été	165	4,85	14,13	0,51	2,96	0,23	1,59	0,50	0,14	0,01	4,70	4,10	2,65
Automne	231	4,32	47,86	1,14	2,45	0,35	1,86	0,65	0,08	0,36	6,81	7,39	3,32
Hiver	296	4,12	75,86	1,49	1,91	0,37	1,54	0,74	0,1	0,18	8,65	5,77	4,71
Année	830	4,3	50,12	0,98	2,51	0,36	1,83	0,66	0,12	0,12	7,5	9,65	3,48
LA CHIPOTTE													
Pluies													
Printemps-Été	383	4,18	66,07	0,37	0,23	0,09	0,63	0,09	0,04	0	3,35	1,25	0,85
Automne-Hiver	471	4,59	25,70	0,64	0,11	0,11	0,33	0,02	0,04	0,09	1,24	0,84	1,10
	854	4,39	41,69	0,51	0,17	0,10	0,48	0,06	0,04	0,05	2,3	1,05	0,98
Pluviollessivats (mg/l)													
Printemps-Été	268	4,27	53,70	0,91	4,37	0,47	2,09	0,72	0,14	0	10,39	4,57	3,5
Automne-Hiver	377	4,45	31,62	0,93	1,93	0,24	0,95	0,46	0,09	0,31	5,82	2,33	2,53
Année	645	4,36	43,65	0,92	3,15	0,36	1,52	0,59	0,12	0,16	8,11	3,45	3,02

A partir des analyses des pluies et de la mesure des précipitations, on peut faire le bilan quantitatif des apports par les pluies (Tableau II.7.). Pour faire le bilan des apports par les pluviollessivats, en l'absence de mesures directes des hauteurs d'eau, nous avons estimé, à partir de la bibliographie, l'importance de l'interception par le couvert végétal. Elle s'élève, en moyenne, à environ 25 % des pluies incidentes (PROBST et DAMBRINE, 1988 ; DAMBRINE et PREVOSTO, 1989), avec de légères fluctuations saisonnières : environ 20 % en hiver et au printemps et 30 % en été et en automne (NYS, comm. pers.). Nous pouvons dès lors estimer quantitativement les apports par les pluviollessivats (Tableau II.7.).

Les concentrations des différents éléments dans les pluies et les pluviollessivats sont du même ordre de grandeur dans les deux stations. Ceci montre que le climat de pollution est sensiblement identique. La seule divergence notable concerne la concentration des nitrates dans les pluviollessivats, qui est nettement plus faible à la Chipotte. On peut relier ce fait à une

assimilation beaucoup plus importante de l'azote nitrique au niveau foliaire dans le peuplement sain, ou plus probablement à une récrétion plus importante dans le peuplement dépérissant. D'un point de vu quantitatif, les apports par les pluviolessivats sont de 20 à 40 % plus faibles à la Chipotte, ce qui s'explique en grande partie par la pluviométrie plus faible d'environ 30 %. C'est le cas notamment des dépôts de composés acides ou acidifiants (protons et ammonium).. Il faut toutefois signaler que les apports d'ammonium sont très faibles (1 kg de $N-NH_4^+$ /ha/an) dans les deux stations, contrairement à ce qui se passe dans beaucoup d'autres écosystèmes.

Tableau II.7.- Apports saisonniers et annuels par les pluies et les pluviolessivats (moyennes sur la période 01/01/1988-01/06/1990).

	P (en mm)	H ⁺ (mg/m ²)	Na (mg/m ²)	K (mg/m ²)	Mg (mg/m ²)	Ca (mg/m ²)	Mn (mg/m ²)	Al (mg/m ²)	NH ₄ (mg/m ²)	SO ₄ (mg/m ²)	NO ₃ (mg/m ²)	Cl (mg/m ²)
HAUT-JACQUES												
Pluies												
Printemps	248	9	94,24	49,60	19,84	109,12	7,44	12,4	0	704,32	704,32	205,84
Eté	235	4,18	54,05	58,75	16,45	112,80	7,05	4,7	21,15	352,50	155,10	192,70
Automne	330	6,14	220,50	45,50	52,50	80,50	10,50	7	49	476	259	304,500
Hiver	370	14,39	225,70	51,80	44,40	111	7,40	14,8	22,20	721,50	532,80	540,2
Année	1183	33,36	532,35	224,77	118,3	449,54	35,49	35,49	82,81	2543,5	1975,6	1230,3
Pluviolessivats												
Printemps	198	13,73	178,56	515,84	81,34	400,77	136,90	27,78	5,95	1662,60	2676,4	648,77
Eté	165	2,32	83,90	486,92	37,84	261,56	82,25	23,03	1,65	773,15	674,45	435,93
Automne	231	11,06	263,34	565,95	80,85	429,66	150,15	18,48	83,13	1573,10	1707,10	766,92
Hiver	296	22,47	441,04	565,36	109,52	455,84	219,04	29,60	53,28	2560,40	1707,90	1394,20
Année	890	44,45	869,45	2226,9	319,39	1623,6	585,55	106,46	106,46	6654	6765,85	3087,5
LA CHIPOTTE												
Pluies												
Printemps-Eté	383	25,32	141,71	88,09	34,47	241,29	34,47	15,32	0	1283,1	478,75	325,55
Automne-Hiver	471	12,10	301,44	51,81	51,81	155,43	9,42	18,84	42,39	584,04	395,64	518,1
Année	854	35,61	431,27	145,18	85,4	409,92	46,97	34,16	38,43	1959,9	892,43	832,65
Pluviolessivats												
Printemps-Eté	268	14,40	243,97	1171,6	126,01	560,35	193,03	37,53	0	2785,6	1225,2	938,35
Automne-Hiver	377	11,91	350,42	727,22	90,43	357,96	173,33	33,91	116,81	2193	877,94	953,3
Année	645	27,93	589,26	2017,6	227,38	973,56	377,9	73,66	99,28	5191,3	2209,7	1931,1

V.- CONCLUSION

Ces différents points nous ont permis de voir que les deux stations étudiées présentent un certain nombre de similitudes pédologiques et climatiques, en particulier leurs climats de pollution respectifs sont assez proches. La pluviométrie plus faible à la Chipotte et une différence dans les apports ou les retombées en nitrates réduisent toutefois les risques de lixiviation et d'acidification dans cette station.

TROISIEME PARTIE

EVALUATION DES FLUX DE NITRATES DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

INDICATIVE PART II

EVALUATION OF THE USE OF NITRATE IN THE SOIL OF COTTON

Dans nos stations, l'humus relativement actif conduit à la décomposition rapide des acides organiques et le pH faible conduit à l'absence d'acide carbonique. Le cycle du carbone joue donc un rôle réduit dans les processus d'acidification et de transfert des éléments minéraux.

La lixiviation des éléments nutritifs est donc contrôlée par les flux de NO_3^- , SO_4^{2-} et Cl^- . Les phénomènes d'acidification, quant à eux, sont liés à l'équilibre existant entre la production interne de ces éléments et leur consommation par la végétation ou leur lixiviation. Dans le cas du chlore, les deux premiers de ces phénomènes sont faibles. Les transformations internes de l'azote et du soufre sont donc essentielles dans la régulation du pH du sol, alors que celles du chlore peuvent être passées sous silence. A ces phénomènes, s'ajoutent les apports externes de NO_x , SO_4^{2-} et Cl^- . Le bilan global des protons est déterminé par l'ensemble de ces mécanismes. Dans ce travail, nous supposons donc que les dépôts atmosphériques de Cl^- traversent le sol sans changement notable (sorties = entrées). Nous suivrons par contre dans le détail les flux saisonniers de nitrates et de sulfates au cours de leur transit à travers l'écosystème, ceux-ci pouvant varier en fonction de la production interne, de la consommation par la végétation, de l'adsorption sur le sol et de la pluviométrie.

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à la mesure des flux de nitrates (les flux de sulfates seront étudiés dans la quatrième partie). Une analyse bibliographique des différentes méthodologies possibles nous a conduits à utiliser une méthode d'étude *in situ*. Des mesures périodiques de la lixiviation, de la production et de la consommation des nitrates ont été effectuées. La quantification des nitrates lixiviés permet de mieux connaître la contribution de cet élément dans l'acidification et l'appauvrissement du sol. L'éventualité d'un découplage temporaire entre la production et la consommation de cet élément, qui conduirait à la dégradation progressive de l'écosystème, a également été analysée.

CHAPITRE I

REVUE DES METHODES UTILISABLES EN VUE D'EVALUER LA NITRIFICATION ET LES FLUX DE NITRATES

CHAPTER

THESE ARE THE METHODS OF THE
RESEARCH IN THE
FIELD OF THE

REVUE DES METHODES UTILISABLES EN VUE D'EVALUER A NITRIFICATION ET LES FLUX DE NITRATES

La mesure fidèle de la production et des flux de nitrate dans les sols est très complexe. Diverses méthodes ont été utilisées par le passé, chacune d'entre elles présentant des défauts plus ou moins importants qui tendent à biaiser plus ou moins fortement les résultats escomptés.

I.- LES METHODES VISANT A MESURER LA NITRIFICATION

1.- LA SIGNIFICATION DU DOSAGE DIRECT DES NITRATES DANS LES SOLS - LES PROFILS DE NITRATES

Si le dosage des nitrates présents dans un sol à un instant donné ne pose pas de problèmes majeurs depuis les mises au point de BREMNER et KEENEY (1966), il est illusoire de chercher à utiliser ce seul type de données dans le but d'évaluer la production totale de ces ions au cours d'une période donnée. Une certaine proportion des ions nitrates est en effet soit utilisée par la végétation, soit lixiviée, soit dénitrifiée, ou encore peut-être immobilisée par les microorganismes si ceux-ci sont carencés en ammonium. Il est clair que cette démarche est surtout utilisable pour mesurer l'azote inorganique résiduel des sols, par exemple en vue de faire des recommandations de fumures (KEENEY, 1982). Elle ne permet en aucun cas d'évaluer la nitrification.

La comparaison des profils de nitrates à des dates successives ne peut en fait servir à estimer la nitrification qu'en l'absence de végétation, de lessivage et de pertes gazeuses, ce qui limite très fortement leur utilité.

2.-LE COMPTAGE DES NITRIFIANTS

Certains auteurs ont pensé que la production de nitrates pouvait être estimée à partir du comptage des bactéries nitrifiantes. Deux méthodes de comptage sont généralement utilisées (SCHMIDT, 1982) : la M.P.N. (Most Probable Number enumeration) (Alexander et Clark, 1965) et la F.A. (Fluorescent Antibody technique) (SCHMIDT, 1973).

De nombreux auteurs ont utilisé ces techniques d'énumération en culture pure et aux champs (SCHMIDT, 1982). Les résultats sont relativement homogènes en culture pure. Ils sont par contre très variables au champ et dépendent du type de sol. De plus, les activités microbiennes sont souvent dix fois plus importantes au champ qu'en culture pure. Ceci serait dû, d'une part à une forte sous-estimation des populations bactériennes dans le premier cas (BELSER, 1979), et d'autre part au fait que l'activité d'une population bactérienne ne dépend pas uniquement de son importance numérique. Les populations dénombrées dans les sols sont du reste généralement très faibles (RUSSEL, 1973). Ces différents points semblent montrer que les techniques de comptage sont mal adaptées aux mesures de terrain.

3.- MESURE DE LA NITRIFICATION POTENTIELLE

Face aux différents problèmes qui viennent d'être évoqués, il se pourrait que la nitrification sur le terrain puisse être estimée au laboratoire à partir de la mesure de la "nitrification potentielle" du sol (STANFORD et SMITH, 1972). Cette technique repose sur la détermination de la quantité de nitrate formée lors d'une incubation en conditions standardisées (temps d'incubation, température, humidité, ...). Dans la plupart des études de ce type, les temps d'incubation utilisés sont généralement de plusieurs semaines (STANFORD *et al.*, 1973 ; CASSMAN et MUNNS, 1980 ; MYERS *et al.*, 1982 ; BOUDOT et CHONE, 1985). Du fait des variations affectant l'importance numérique des populations bactériennes au cours de telles incubations, qui peuvent varier d'un sol à l'autre (SCHMIDT, 1982), l'activité nitrifiante observée n'est pas nécessairement représentative de celle du sol pris dans son état initial. De plus, ces mesures concernent généralement des sols ayant subi divers prétraitements (tamisage, ajustement de l'humidité...), qui peuvent induire de profondes modifications sur les cinétiques de minéralisation et de nitrification. Ces différentes possibilités d'artefacts rendent suspectes, voire caduques, de telles méthodes dès que l'on cherche à les utiliser en vue de transposer les résultats obtenus au champs (KEENEY, 1982).

Pour pallier ces difficultés, diverses améliorations ont été proposées. D'une part, MYERS *et al.* (1989) ont mis au point un appareil permettant de prélever et de faire des incubations de sols non perturbés. D'autre part, la mise au point récente de méthodes de dosage très sensibles permettent actuellement de faire des incubations très courtes qui minimisent les artefacts. WALKER et WICKRAMASINGHE (1979) ainsi que LENSİ *et al.* (1985, 1986), ont proposé une méthode de mesure de la nitrification avec des temps d'incubation de l'ordre de 48 heures. Cette méthode consiste à transformer le nitrate, produit pendant une phase aérobie, en N_2O , lors d'une incubation anaérobie. Le N_2O est alors dosé par chromatographie en phase gazeuse.

Le passage de ces données de laboratoire à une estimation de la production réelle de nitrate au champ, réalisé grâce à des modèles mathématiques (STANFORD *et al.*, 1973 ; CASSMAN et MUNNS, 1980 ; MYERS *et al.*, 1982) reste difficile. Comme dans le cas des profils d'azote, ces méthodes ont plutôt comme objectif d'être applicables à des prévisions en fumures azotées. Elles ne peuvent être substituées aux mesures directes de nitrification.

4.- MESURE DIRECTE DE LA NITRIFICATION *IN SITU*

LEMEE (1967) et LABROUE et LASCOMBES (1971) sont parmi les premiers à utiliser une méthode visant à mesurer la minéralisation de l'azote et la nitrification directement sur le terrain. Ces auteurs ont utilisé des boîtes en aluminium retournées dans le sol (le fond affleurant à la surface de celui-ci), dans lesquelles ils ont mesuré la quantité d'azote minéral après une certaine période d'incubation. Cette technique présente toutefois diverses imperfections (LEMEE, 1967) :

- les apports d'azote par les pluviollessivats et les eaux de percolation ayant traversé la litière sont supprimés,
- les prélèvements racinaires et le lessivage sont également supprimés,
- il n'y a plus d'effet rhizosphère. Or la rhizosphère stimule l'ammonification, la réorganisation et la dénitrification. Elle peut également inhiber la nitrification du fait de la production d'exsudats.

Depuis, différents auteurs ont utilisé des méthodes dérivant de celle-ci, en introduisant le sol dans des sacs de polyéthylène (NADELHOFFER *et al.*, 1984) ou des tubes de P.V.C. ou d'acier (ADAMS et ATTİWİL, 1986 ; RAISON *et al.*, 1987 ; TIETEMA ET VERSTRATEN, 1988 ; TIETEMA *et al.*, 1990).

II.- LES METHODES VISANT A MESURER LES FLUX DE NITRATES DANS LES SOLS

1.- EVALUATION DE LA LIXIVIATION DES NITRATES

Les méthodes les plus généralement utilisées en vue d'évaluer les pertes en nitrate par lixiviation sont les systèmes lysimétriques avec ou sans tension et les bougies poreuses (MATZNER, 1986 ; NYS, 1987 ; VAN BREEMEN *et al.*, 1987 ; PROBST *et* DAMBRINE, 1988 ; UGOLINI *et al.*, 1988 ; BEIER *et al.*, 1989 ; LINDBERGH *et* JOHNSON 1989). Les problèmes posés par l'emploi de ces techniques ont déjà été longuement discutés dans la littérature (HAINES *et al.*, 1982 ; BARBEE *et* BROWN, 1986 ; HORNUNG, 1989 ; ADDISCOTT, 1990).

Les tubes lysimétriques ont parfois été utilisés (GRAS *et al.*, 1987 ; NYS, 1987), car ces systèmes permettent de quantifier les flux d'entrée et de sortie, et donc d'établir des bilans. Ce type de lysimètre exclut toutefois l'action de la végétation (prélèvements de l'eau et des nutriments) et ne semble donc pas en mesure d'apporter des informations correctes sur le fonctionnement actuel des sols.

Les autres méthodes (bougies poreuses, plaques lysimétriques) permettent de mesurer la concentration des solutions, mais pas les quantités d'eau drainées. Pour faire un bilan, les flux d'eau doivent donc être déterminés en parallèle par une méthode indépendante, telle que la tensiométrie, ou par un modèle intégrant les paramètres climatiques. Les bougies poreuses sont très utilisées du fait d'une installation relativement facile et d'un coût peu élevé (ADDISCOTT, 1990). L'extraction de la solution du sol est obtenue en appliquant une succion à un collecteur poreux placé dans le sol. De nombreux auteurs leur attribuent toutefois un certain nombre d'artefacts (BARBEE *et* BROWN, 1986) : i) la taille réduite du collecteur ne permet pas de prendre en compte l'hétérogénéité spatiale du milieu, ii) dans les sols bien structurés, les bougies captent généralement très mal l'eau de la macroporosité, iii) hormis le téflon (très coûteux), les matériaux poreux utilisés, comme la céramique, ne sont pas chimiquement inertes, iv) la succion exercée perturbe le flux normal des solutions. Les plaques lysimétriques permettent d'éviter les trois premiers défauts des bougies poreuses. Les plaques à tension intègrent une partie des eaux capillaires, qui ne doivent pas être retenues dans les calculs d'exportations. L'utilisation de plaques lysimétriques sans tension semble donc être le moyen le plus efficace de récolte des eaux gravitaires du sol sans trop de perturbations.

Des méthodes plus globales, basées sur la mesure des flux d'eau et des concentrations des solutés dans les cours d'eau drainant les bassins versants sont également utilisées (LIKENS *et al.*, 1977 ; PROBST et DAMBRINE, 1988). Dans ces études, les flux d'eau qui alimentent les nappes profondes ne sont pas pris en compte. De plus, les transformations physico-chimiques ou biologiques qui peuvent affecter les différents éléments au cours de leur transfert (notamment les phénomènes de dénitrification dans le cas du cycle de l'azote) sont également négligées. Ces dernières méthodes sont donc peu adaptées aux études visant à mieux comprendre le fonctionnement du sol.

2.- ESTIMATION DES PRELEVEMENTS EFFECTUES PAR LA VEGETATION

La mesure des prélèvements effectués par la végétation est très généralement faite à partir de la détermination ou de l'estimation de la production de biomasse. Dans le cas des plantes herbacées, ceci peut se faire de façon relativement simple par minéralisation et dosage de l'azote contenu dans la plante. Ce type de méthode est utilisé essentiellement en agronomie.

En ce qui concerne les arbres, par contre, cette mesure est plus complexe. L'évaluation est généralement basée sur des tables de production et la mesure de la minéralomasse des différents compartiments de l'arbre (NYS, 1987). Dans certains cas, des corrélations entre la surface terrière et le contenu en azote de l'arbre ont été mises en évidence (SMETHURST et NAMBIAR, 1989).

3.- METHODES DE MESURE CONJOINTE DE LA NITRIFICATION, DE LA LIXIVIATION ET DES PRELEVEMENTS

L'utilisation d'azote marqué, et notamment du ^{15}N , s'est développée de façon considérable depuis quelques années dans l'étude du cycle de l'azote (BREMNER et HAUCK, 1982). Cependant cette approche est encore assez peu utilisée dans les écosystèmes forestiers. Les coûts d'expérimentation sont en effet relativement élevés du fait de la surface à traiter, et les sources d'erreur liées à l'échantillonnage et à l'hétérogénéité des parcelles deviennent très importantes (SAFFIGNA, 1987). Ceci explique certains résultats peu satisfaisants obtenus avec des microparcelles forestières traitées au ^{15}N (LEGG et MEISINGER, 1982).

Les méthodes d'incubation *in situ*, destinées à évaluer la minéralisation de l'azote et la nitrification dans les sols (LEMEE, 1967), ont été améliorées afin de permettre l'évaluation des flux d'ammonium et de nitrate. NADELHOFFER *et al.* (1984), en comparant les teneurs en nitrate d'échantillons de sols contenus dans des sacs de polyéthylène incubés avec les teneurs

du sol environnant, a pu mesurer les prélèvements dans 9 écosystèmes forestiers, en partant du postulat que la lixiviation de l'azote était nulle. RAISON *et al.* (1987) ont élaboré une méthodologie qui permet l'évaluation de la nitrification, des prélèvements de nitrate par la végétation et de leur lixiviation. Cette démarche semble être la mieux adaptée à la problématique qui nous intéresse (se reporter au chapitre II pour la méthodologie détaillée et la discussion de la méthode). L'intérêt des méthodes d'incubation *in situ* dans l'estimation des prélèvements a été confirmée par ailleurs par NADELHOFFER *et al.* (1985), qui ont noté une bonne corrélation ($r^2 = 0,72$) entre les résultats obtenus par cette technique et l'estimation de la productivité primaire de 9 stations forestières tempérées. SMETHURST et NAMBIAR (1989) ont également mis en évidence une certaine corrélation ($r^2 = 0,57$) entre de tels résultats et la mesure directe de la minéralomasse sur de jeunes pins. Dans la suite de cet exposé, nous allons donc présenter les résultats obtenus avec cette méthode.

CHAPITRE II

EVALUATION DE LA NITRIFICATION ET DES FLUX DE NITRATES PAR INCUBATION IN SITU

CHAPTER II

THE HISTORY OF THE
THE FIRST OF THE
THE SECOND OF THE

EVALUATION DE LA NITRIFICATION ET DES FLUX DE NITRATES PAR INCUBATION *IN SITU*

I.- MATERIEL ET METHODE

1.- METHODOLOGIE

La méthode qui se trouve être actuellement la mieux adaptée à la mesure simultanée de la nitrification et des flux d'azote minéral dans le sol est, comme nous l'avons vu précédemment, celle qui a été développée par RAISON *et al.* (1987).

Trois séries de six tubes de PVC de cinquante centimètres de longueur et 15,20 cm² de surface interne, bisautés à la base, sont enfoncés dans le sol afin d'isoler des colonnes de sol non perturbé (Figure III.1.).

Deux séries sont ainsi laissées sur place pour des périodes variant de 24 à 72 jours :

- la première (T1) est recouverte d'une plaque de PVC qui évite les apports par les pluies et les pluviollessivats, mais qui permet l'aération des tubes afin de limiter les risques de dénitrification.
- la deuxième (T2) reste ouverte et est donc soumise aux apports par les pluviollessivats ainsi qu'à la lixiviation naturelle.

La troisième série est installée et prélevée immédiatement sans incubation au début et à la fin de chaque période d'incubation de T1 et T2 pour déterminer le contenu du sol en azote minéral.

Après incubation, les tubes sont prélevés, placés dans des sacs de polyéthylène pour éviter tout dessèchement et rapportés au laboratoire. Ils sont stockés à 4°C jusqu'à utilisation. Aussi rapidement que possible, généralement dans la semaine suivant le prélèvement, les carottes sont sectionnées en deux parties (0-20 cm et 20-45 cm), les racines et les pierres sont éliminées à la main et chaque fraction est homogénéisée.

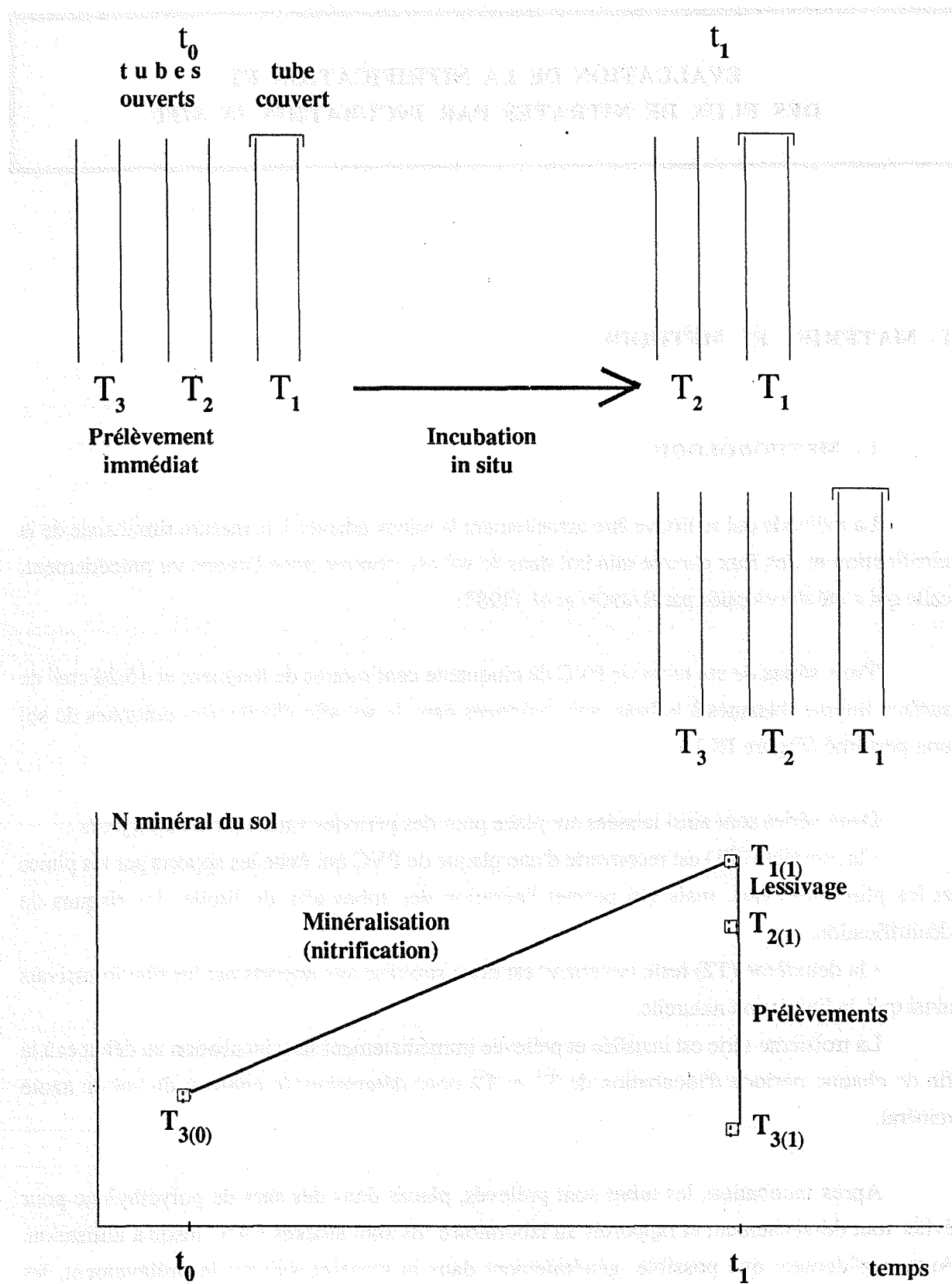


Figure III.1.- Schéma de la méthode d'incubation in situ utilisée pour mesurer la nitrification, les prélèvements et la lixiviation des nitrates.

L'azote minéral échangeable (NH_4^+ et NO_3^-) est extrait d'un sous-échantillon de 100 g de sol par agitation d'une heure dans une solution de KCl 1N, puis centrifugation et filtration. L'ammonium et les nitrates sont dosés par distillation selon la méthode de BREMNER et EDWARDS (1965) et BREMNER et KEENEY (1966), en présence d'un tampon tétraborate de sodium- acide borique à pH 8,8 (STEVENSON *et al.*, 1967).

Le reste du sol est pesé et séché à 105°C jusqu'à poids constant afin de déterminer l'humidité et le poids de sol présent dans chaque tube.

Dans un deuxième temps, à partir du 10/01/89, ce protocole a subi quelques modifications. L'azote minéral a été extrait par une solution de KCl N/100. Cette méthode est sans incidence en ce qui concerne l'extraction des nitrates (Tableau III.1.) et nous a permis de les doser en chromatographie ionique, ce qui est une méthode plus rapide et plus précise. Par contre l'extraction de l'ammonium n'est pas totale, car celui-ci est en partie fixé sur le complexe d'échange ; les valeurs obtenues pour NH_4^+ sont alors inutilisables.

Tableau III.1. Comparaison de l'extraction des nitrates d'un sol (en μg de N-NO_3^- pour 100 g de sol frais) avec différentes solutions de KCl et de l'eau (dosage par distillation)

	KCl N	KCl N/20	KCl N/100	H ₂ O
Echant. n° 1	433	438	417	412
Echant. n° 2	466	480	488	501
Moyenne	449,5	459	452,5	456,5

2. METHODE DE CALCUL

Les calculs permettant d'obtenir les valeurs des flux d'azote minéral impliquent que les cinétiques de minéralisation, de nitrification nette et de dénitrification, ainsi que les flux d'eau, soient identiques à l'intérieur et à l'extérieur des tubes.

La nitrification, les prélèvements par la végétation et la lixiviation des nitrates sont calculés à la fin de chaque période d'incubation en prenant en compte les apports par les pluviollessivats.

Ainsi, si l'on note N min. l'azote minéral et N-NO₃ l'azote nitrique, T1f(N-NO₃) et T2f(N-NO₃) le contenu en azote nitrique des tubes T1 et T2 à la fin d'une période d'incubation donnée, et T3i(N-NO₃) et T3f(N-NO₃) le contenu en azote nitrique de T3 respectivement au début et à la fin d'une période d'incubation, on peut écrire les trois équations suivantes

- $T3f(N-NO_3) = T3i(N-NO_3) + \text{Nitrification nette}^{(*)} + \text{N min. des Pluviolessivats} - \text{Prélèvements de N-NO}_3 - \text{Lixiviation de N-NO}_3$

- $T2f(N-NO_3) = T3i(N-NO_3) + \text{Nitrification nette}^{(*)} + \text{N min. des Pluviolessivats} - \text{Lixiviation de N-NO}_3$

- $T1f(N-NO_3) = T3i(N-NO_3) + \text{Nitrification nette}^{(*)}$

(*) *Nitrification nette = Nitrification nette après dénitrification et en supposant que celle-ci soit identique à l'intérieur et à l'extérieur des tubes.*

Après simplification, on obtient:

$$\text{Nitrification nette} = T1f(N-NO_3) - T3i(N-NO_3)$$

$$\text{Prélèvements de N-NO}_3 = T2f(N-NO_3) - T3f(N-NO_3)$$

$$\text{Lixiviation de N-NO}_3 = T1f(N-NO_3) - T2f(N-NO_3) + \text{N min. des pluviolessivats}$$

On notera que pour les pluviolessivats, on prend en compte N min. et non pas uniquement N-NO₃, car l'on considère que les apports d'ammonium sont très rapidement nitrifiés. Pour une période donnée, leur importance a été calculée selon la formule suivante :

$$Q_n = P \times I \times C, \text{ avec :}$$

Q_n = quantité de N min. dans les pluviolessivats d'une période (en mg d'N min./ m²)

P = hauteur de pluie (en mm)

I = coefficient moyen d'interception par le couvert [= 0,2 en hiver et au printemps et 0,3 en été et en automne (NYS, comm. pers.)]

C = concentration moyenne des pluviolessivats (en mg/l)

Les valeurs annuelles des flux sont obtenues par sommation des valeurs obtenues lors d' incubations successives qui s'échelonnent du 22 mars 1988 au 18 avril 1989 et du 25 mai 1989 au 1er juin 1990 pour la station dépérissante, du 25 mai 1989 au 1er juin 1990 pour la station saine.

II.- RESULTATS

Les résultats obtenus pour les deux stations sont présentés dans le tableau III.2.

1.- INTENSITE DE LA NITRIFICATION

Malgré l'acidité des sols ($\text{pH} = 4,1$) la nitrification est active dans les deux stations étudiées. La production endogène nette de nitrate s'élève à 70-80 kg d' $\text{N-NO}_3/\text{ha/an}$ dans la station du Haut-Jacques (peuplement déperissant) pour les années 1988-90. Dans la station de la Chipotte (peuplement sain), la nitrification nette est moins importante et ne s'élève qu'à 45 kg d' $\text{N-NO}_3/\text{ha/an}$ pour 1989-90. La nitrification est surtout active dans les horizons de surface et 70-80% des ions nitrates apparaissent dans les 20 premiers centimètres des profils.

Il est bien connu que l'intensité de la nitrification est sensible aux variations de température (RUSSEL, 1973 ; EMMER et TIETEMA, 1990). On observe toutefois que la production de nitrate reste importante en hiver notamment sous le peuplement déperissant (du 1/11 au 31/03 par exemple, 23,4 kg d' $\text{N-NO}_3/\text{ha}$ ont été produits tant en 1988-89 qu'en 1989-1990). Sous le peuplement sain, elle subsiste également mais se situe à un niveau plus faible (9,4 kg d' $\text{N-NO}_3/\text{ha}$ en 1989-90).

2.- PRELEVEMENTS ET PERTES DE NITRATES

Les prélèvements de nitrates effectués par la végétation s'élèvent à 74 kg d' $\text{N}/\text{ha/an}$ en 1988-1989 et à 111 kg d' $\text{N}/\text{ha/an}$ en 1989-90 pour la station du Haut-Jacques, à 50 kg d' $\text{N}/\text{ha/an}$ en 1989-1990 pour la Chipotte.

Dans les deux stations, la végétation est apte à prélever la quasi totalité des nitrates produit durant sa période d'activité (de fin avril-début mai à septembre) (Figure III.2.). Le rythme des prélèvements se situe alors entre 30 et 50 $\text{mg N}/\text{m}^2/\text{jour}$ dans la sapinière déperissante et entre 10 et 30 $\text{mg N}/\text{m}^2/\text{jour}$ dans la sapinière saine. Durant cette période de consommation, aucun lessivage de nitrate n'est détectable (par la méthode utilisée) au delà de la zone racinaire. Le drainage climatique est par ailleurs souvent très réduit, du fait de la consommation en eau par la végétation, ce qui restreint d'autant la lixiviation.

Tableau III.2.a. Contenu en azote nitrique des différents tubes incubés et calcul des flux correspondants pour les épaisseurs 0-20 cm et 0-45 cm. Station du Haut-Jacques, Année 1988-1989 (22/03/88-18/04/89).

0-20 cm									
Date	Nb de jours	N-NH ₄ ⁺ + N-NO ₃ ⁻ apporté par les pluviolessivats	T3i	T1f	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
				µg N-NO ₃ ⁻ par tube ⁽¹⁾			mg N.m ⁻² jour ⁻¹		
22/03/88						309 ± 77			
09/05/88	48	272	309 ± 77	2108 ± 306	2265 ± 437	460 ± 237	24,66a	24,7a	3,51
27/06/88	49	471	460 ± 237	1977 ± 396	1919 ± 697	587 ± 123	20,37a	17,88a	10,39
21/07/88	24	74	587 ± 123	958 ± 241	1071 ± 257	289 ± 104	10,17b	21,44a	-0,01e
19/09/88	60	107	289 ± 104	1652 ± 425	2112 ± 969	273 ± 48	14,95a	20,16a	-3,26e
19/10/88	30	126	273 ± 48	783 ± 399	502 ± 71	195 ± 41	11,18b	6,73a	10,36
24/11/88	36	93	195 ± 41	1189 ± 110	800 ± 203	582 ± 147	18,17a	3,98c	9,69
10/01/89	47	278	582 ± 147	805 ± 138	331 ± 123	511 ± 57	3,12b	-2,52e	12,55
13/03/89	62	175	511 ± 57	1260 ± 294	711 ± 129	419 ± 76	7,95a	3,10a	8,65
18/04/89	36	309	419 ± 76	2689 ± 500	349 ± 370	209 ± 294	41,48a	2,56a	51,35
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		16,7					53,2 ⁽²⁾	41,5 ⁽²⁾	27,3 ⁽²⁾
(du 22/03/88 au 22/03/89)							53,2 ⁽³⁾	41,5 ⁽³⁾	27,3 ⁽³⁾

0-45 cm									
Date	Nb de jours	NO ₃ ⁻ N apporté par les pluviolessivats	T3i	T1f	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
				µg N-NO ₃ ⁻ par tube ⁽¹⁾			mg N.m ⁻² jour ⁻¹		
22/03/88						686 ± 222			
09/05/88	48	272	686 ± 222	2403 ± 233	3031 ± 373	673 ± 185	23,53a	32,32a	-2,94e
27/06/88	49	471	673 ± 185	3102 ± 1070	3818 ± 986	1245 ± 180	32,61a	34,55a	0,00
21/07/88	24	74	1245 ± 180	1312 ± 350	1780 ± 244	569 ± 268	1,84d	33,20a	-9,75e
19/09/88	60	107	569 ± 268	2670 ± 892	4508 ± 1372	617 ± 140	23,04a	42,66a	-18,37e
19/10/88	30	126	617 ± 140	1115 ± 487	836 ± 363	394 ± 103	10,92a	9,69b	10,32
24/11/88	36	93	394 ± 103	1351 ± 152	1149 ± 260	746 ± 105	17,49a	7,36b	6,27
10/01/89	47	278	746 ± 105	1080 ± 239	735 ± 308	709 ± 62	4,68b	0,36d	10,74
13/03/89	62	175	709 ± 62	2460 ± 390	1244 ± 372	912 ± 120	18,58a	3,52c	15,73
18/04/89	36	309	912 ± 120	4208 ± 283	778 ± 593	744 ± 839	60,23a	0,62d	71,27
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		16,7					70,2 ⁽²⁾	74 ⁽²⁾	26,6 ⁽²⁾
							69,8 ⁽³⁾	73,9 ⁽³⁾	26,6 ⁽³⁾

⁽¹⁾ Moyenne de 6 répétitions ± écart-type. ⁽²⁾ Somme des valeurs significatives et non significatives. ⁽³⁾ Somme des valeurs significatives (non aberrantes).
a = significatif à 99 % (test t de Student) ; b = significatif à 95 % ; c = significatif à 90 % ; d = non significatif ; e = valeurs aberrantes.

Tableau III.2.b. Contenu en azote nitrique des différents tubes incubés et calcul des flux correspondants pour les épaisseurs 0-20 cm et 0-45 cm. Station du Haut-Jacques, Année 1989-1990 (25/05/89-01/06/90).

0-20 cm									
Date	Nb de jours	N-NH ₄ ⁺ + N-NO ₃ ⁻ apporté par les pluviollessivats	T3i	T1f	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
μg N-NO ₃ ⁻ par tube ⁽¹⁾							mg N m ⁻² jour ⁻¹		
25/05/89						235 ± 66			
19/06/89	25	34	235 ± 66	1700 ± 391	1927 ± 277	608 ± 155	38,55a	34,71a	-4,61e
17/08/89	59	114	608 ± 155	2140 ± 364	2862 ± 818	216 ± 57	17,08a	29,50a	-6,12e
28/09/89	42	63	216 ± 57	1361 ± 253	1622 ± 410	439 ± 83	17,94a	18,53a	-2,59e
04/12/89	67	216	439 ± 83	1568 ± 174	1362 ± 358	336 ± 103	11,09a	10,07a	5,25
12/02/90	70	296	336 ± 103	1340 ± 397	856 ± 423	416 ± 37	9,44a	4,14b	8,78
25/04/90	72	350	416 ± 37	2449 ± 305	2225 ± 814	1030 ± 156	18,58a	10,92b	6,91
01/06/90	36	136	1030 ± 156	3089 ± 832	3107 ± 378	899 ± 273	37,63a	40,32a	3,42
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		12,1					68,2 ⁽²⁾ 68,2 ⁽³⁾	65,9 ⁽²⁾ 65,9 ⁽³⁾	15,9 ⁽²⁾ 15,9 ⁽³⁾

0-45 cm									
Date	Nb de jours	N-NH ₄ ⁺ + N-NO ₃ ⁻ apporté par les pluviollessivats	T3i	T1f	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
μg N-NO ₃ ⁻ par tube ⁽¹⁾							mg N m ⁻² jour ⁻¹		
25/05/89					530 ± 149				
19/06/89	25	34	530 ± 149	2160 ± 502	2399 ± 356	760 ± 278	42,89a	43,13a	-4,93e
17/08/89	59	114	760 ± 278	2830 ± 512	4733 ± 1538	296 ± 66	23,08a	49,48a	-19,29e
28/09/89	42	63	296 ± 66	1622 ± 410	2763 ± 476	455 ± 96	20,77a	36,15a	-16,37e
04/12/89	67	216	455 ± 96	1997 ± 222	2200 ± 489	414 ± 113	15,14a	17,54a	1,23
12/02/90	70	296	414 ± 113	1606 ± 440	1457 ± 519	520 ± 71	11,20a	8,81a	5,63
25/04/90	72	350	520 ± 71	2892 ± 290	3900 ± 917	1211 ± 236	21,67a	24,57a	-4,35e
01/06/90	36	136	1211 ± 236	3501 ± 851	4157 ± 488	1116 ± 214	41,85a	55,57a	-8,24e
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		12,1					81,7 ⁽²⁾ 81,7 ⁽³⁾	110,8 ⁽²⁾ 110,8 ⁽³⁾	4,8 ⁽²⁾ 4,8 ⁽³⁾

⁽¹⁾ Moyenne de 6 répétitions ± écart-type - ⁽²⁾ Somme des valeurs significatives et non significatives - ⁽³⁾ Somme des valeurs significatives (non aberrantes)
a = significatif à 99 % (test t de Student) ; b = significatif à 95 % ; c = significatif à 90 % ; d = non significatif ; e = valeurs aberrantes.

Tableau III.2.c. Contenu en azote nitrique des différents tubes incubés et calcul des flux correspondants pour les épaisseurs 0-20 cm et 0-45 cm. Station de La Chipotte, Année 1989-1990 (25/05/89-01/06/90).

0-20 cm									
Date	Nb de jours	N-NH ₄ ⁺ + N-NO ₃ ⁻ apporté par les pluviollessivats	T3i	T1f	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
			µg N-NO ₃ ⁻ par tube ⁽¹⁾				mg N m ⁻² jour ⁻¹		
25/05/89						58 ± 81			
26/06/89	32	28	58 ± 81	491 ± 209	507 ± 58	22 ± 49	8,90a	9,97a	0,55
25/08/89	60	94	22 ± 49	1192 ± 218	1856 ± 876	142 ± 120	12,83a	18,79a	-5,71e
07/11/89	74	104	142 ± 120	1683 ± 383	1973 ± 901	199 ± 182	13,70a	15,77a	-1,17e
12/01/89	66	99	199 ± 182	422 ± 192	181 ± 41	78 ± 17	2,22c	1,03a	3,90
21/03/90	68	130	78 ± 17	527 ± 208	359 ± 142	69 ± 27	4,34a	2,81a	3,54
01/06/90	71	100	69 ± 27	1032 ± 313	769 ± 128	238 ± 109	8,92a	4,92a	3,85
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		5,6					31,4 ⁽²⁾ 31,4 ⁽³⁾	32,2 ⁽²⁾ 32,2 ⁽³⁾	7,9 ⁽²⁾ 7,9 ⁽³⁾

0-45cm									
Date	Nb de jours	N-NH ₄ ⁺ + N-NO ₃ ⁻ apporté par les pluviollessivats	T3i	T1f	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
			µg N-NO ₃ ⁻ par tube ⁽¹⁾				mg N m ⁻² jour ⁻¹		
25/05/89						131 ± 182			
26/06/89	32	28	131 ± 182	538 ± 257	619 ± 222	22 ± 49	8,37b	12,27a	-0,79e
25/08/89	60	94	22 ± 49	1768 ± 264	2678 ± 1024	204 ± 199	19,14a	27,13a	-8,41e
07/11/89	74	104	204 ± 199	2408 ± 546	2970 ± 1172	279 ± 277	19,59a	23,92a	-3,59e
12/01/90	66	99	279 ± 277	648 ± 215	358 ± 65	158 ± 42	3,68b	1,99a	4,39
21/03/90	68	130	158 ± 42	806 ± 214	662 ± 206	116 ± 34	6,27a	5,28a	3,30
01/06/90	71	100	116 ± 34	1520 ± 317	1470 ± 263	334 ± 111	13,01a	10,53a	1,87
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		5,6					44,6 ⁽²⁾ 44,6 ^(*)	50,3 ⁽²⁾ 50,3 ⁽³⁾	6,5 ⁽²⁾ 6,5 ⁽³⁾

⁽¹⁾ Moyenne de 6 répétitions ± écart-type - ⁽²⁾ Somme des valeurs significatives et non significatives - ⁽³⁾ Somme des valeurs significatives (non aberrantes)
a = significatif à 99 % (test t de Student) ; b = significatif à 95 % ; c = significatif à 90 % ; d = non significatif ; e = valeurs aberrantes.

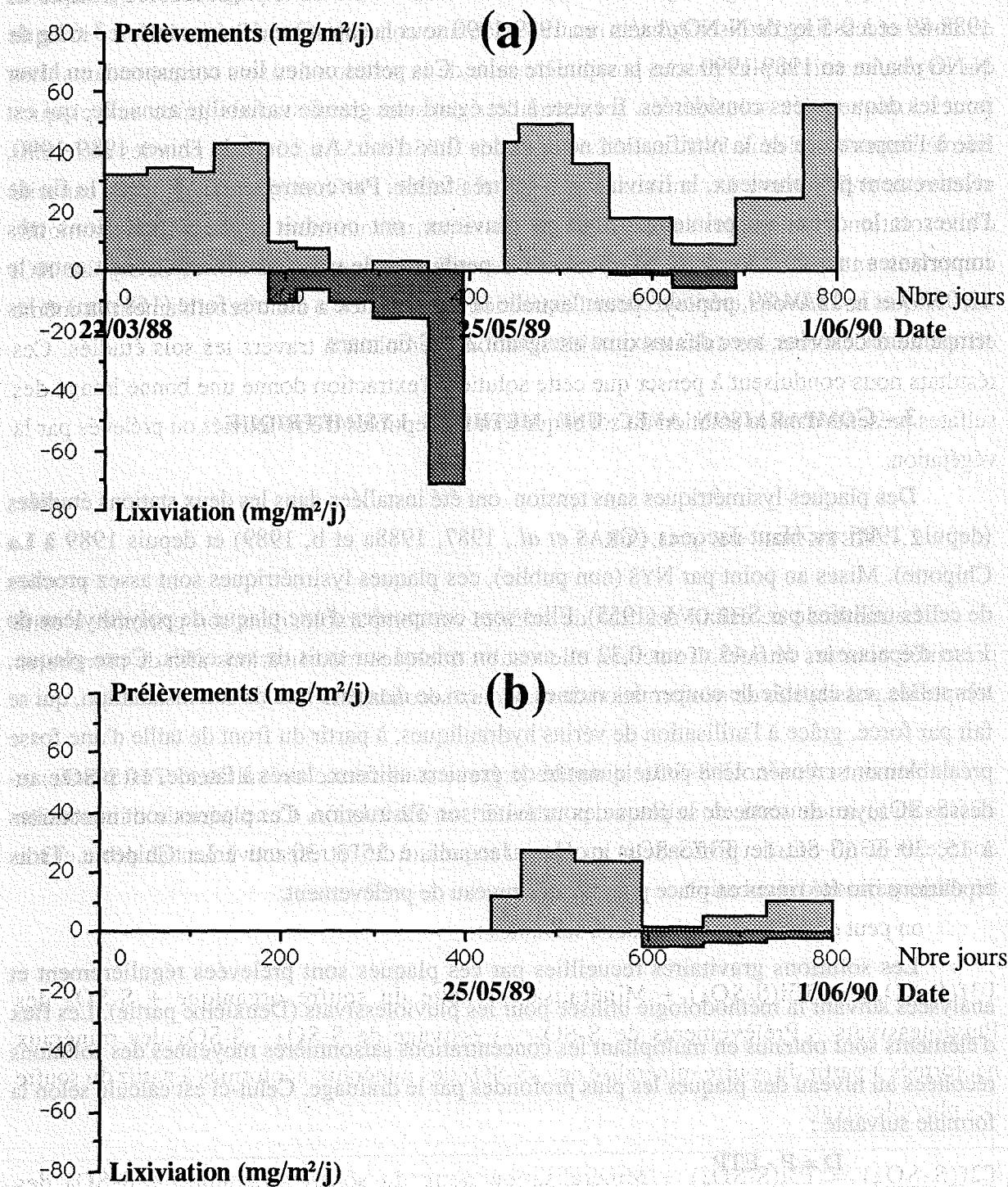


Figure III.2.-Variations saisonnières des prélèvements et de la lixiviation des nitrates dans la couche 0-45 cm du sol dans les stations du Haut-Jacques (a) et de La Chipotte (b).

Les pertes de nitrates par lixiviation se sont élevées à 15-27 kg de $\text{N-NO}_3/\text{ha/an}$ en 1988-89 et à 0-5 kg de $\text{N-NO}_3/\text{ha/an}$ en 1989-1990 sous la sapinière dépérissante, à 3-6 kg de $\text{N-NO}_3/\text{ha/an}$ en 1989-1990 sous la sapinière saine. Ces pertes ont eu lieu uniquement en hiver pour les deux années considérées. Il existe à cet égard une grande variabilité annuelle, qui est liée à l'importance de la nitrification nette et des flux d'eau. Au cours de l'hiver 1989-1990, relativement peu pluvieux, la lixiviation a été très faible. Par contre, en 1988-1989, la fin de l'hiver et le début du printemps doux et pluvieux, ont conduit à des exportations très importantes : ainsi 25 kg de $\text{N-NO}_3/\text{ha}$ ont été perdus sous le peuplement dépérissant entre le 13/03/89 et le 18/04/89, période durant laquelle la pluviométrie a été très forte (168 mm) et les températures élevées, avec des maxima atteignant 25°C fin mars.

3.- COMPARAISON AVEC UNE METHODE LYSIMETRIQUE

Des plaques lysimétriques sans tension ont été installées dans les deux stations étudiées (depuis 1985 au Haut-Jacques (GRAS *et al.*, 1987, 1988a et b, 1989) et depuis 1989 à La Chipotte). Mises au point par NYS (non publiée), ces plaques lysimétriques sont assez proches de celles utilisées par SHILOVA (1955). Elles sont composées d'une plaque de polyéthylène de 1 cm d'épaisseur, de 0,45 m sur 0,32 m, avec un rebord sur trois de ses côtés. Cette plaque, très solide, est capable de couper des racines de 1 cm de diamètre lors de son installation, qui se fait par force, grâce à l'utilisation de vérins hydrauliques, à partir du front de taille d'une fosse préalablement creusée. Une petite quantité de graviers siliceux, lavés à l'acide, est placée au-dessus du tuyau de sortie de la plaque, pour éviter son obstruction. Ces plaques sont introduites à 15, 30 et 60 cm de profondeur au Haut-Jacques, à 15 et 30 cm à La Chipotte. Trois répétitions ont été mises en place pour chaque niveau de prélèvement.

Les solutions gravitaires recueillies par ces plaques sont prélevées régulièrement et analysées suivant la méthodologie utilisée pour les pluviolessivats (Deuxième partie). Les flux d'éléments sont obtenus en multipliant les concentrations saisonnières moyennes des solutions récoltées au niveau des plaques les plus profondes par le drainage. Celui-ci est calculé selon la formule suivante :

$$D = P - \text{ETP}$$

où D = drainage

P = Pluviométrie de la période considérée

ETP = ETP moyenne (d'après CACHAN, 1974)

Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau III.3.

En ce qui concerne la lixiviation des nitrates, cette méthodologie montre également que le flux est nul durant la période de végétation, le drainage climatique étant nul ; la totalité des exportations de nitrates a donc lieu en automne et en hiver.

Les résultats quantitatifs sont toutefois à considérer avec précaution. Si on utilise les concentrations des percolats recueillis à 60 cm de profondeur, les flux enregistrés sont similaires à ceux obtenus avec la méthode d'incubation *in situ* au Haut-Jacques pour l'année 1988-1989, et à la Chipotte pour 1989-1990. Par contre, il existe une forte divergence de résultats pour la station du Haut-Jacques en 1989-1990. Si on utilise les concentrations des percolats recueillis à 30 cm de profondeur dans la station déperissant, les flux sont 5 fois plus faibles que ceux recueillis à 60 cm pour les deux années d'étude. Cette variabilité importante des résultats limite grandement leur validité.

Tableau III.3.- Comparaison des flux de nitrates évalués par lysimétrie-plaque et par incubation *in situ*.

Station du Haut-Jacques Année 1988-1989				Station du Haut-Jacques Année 1989-1990			Station de la Chipotte Année 1989-1990		
Saison	Drainage (mm)	[N-NO ₃] ⁻ (mg/l)	Quantité de N-NO ₃ ⁻ (kg/ha)	Drainage (mm)	[N-NO ₃] ⁻ (mg/l)	Quantité de N-NO ₃ ⁻ (kg/ha)	Drainage (mm)	[N-NO ₃] ⁻ (mg/l)	Quantité de N-NO ₃ ⁻ (kg/ha)
Printemps + Été	14	6,4	0,9	0	4,1	0	0	0,8	0
Automne + Hiver	491	5,3	25,8	560	11,7	65,8	426	1,9	8
Année			26,7			65,8			8
Résultats des incubations <i>in situ</i>			26,6			4,8			6,5

III.- DISCUSSION

1.- VALIDITE DE LA METHODE

La méthode des incubations *in situ* avec prélèvements séquentiels de RAISON *et al.* (1987) utilisée dans cette étude est basée sur un certain nombre de postulats. On suppose notamment que les flux d'eau et les cinétiques de transformation de l'azote ne sont pas perturbés par la présence des tubes. Toutes les méthodes existantes destinées à évaluer les transformations de l'azote *in situ* sont toutefois susceptibles de conduire à des modifications du milieu sol. En effet, l'activité microbienne est régulée par le pH, la température et l'humidité du sol, ainsi que par la quantité et la qualité des substrats et des apports nutritifs. Les méthodes d'incubation *in situ* peuvent notamment agir (ADAMS *et al.*, 1989):

- en modifiant l'humidité et la température,
- en supprimant les apports de carbone et de l'azote issus des pluviollessivats et de l'activité rhizosphérique,
- en fournissant des débris organiques (racines coupées),
- en supprimant la consommation d'azote minéral, ce qui peut modifier le pH et les cinétiques de transformation de l'azote.

Ces perturbations biaisent probablement les flux que l'on cherche à mesurer et quelques points méritent d'être discutés.

a.- Régime hydrique et températures à l'intérieur et à l'extérieur des tubes

Le tableau III.4. montre, à titre d'exemple, que le régime hydrique peut être significativement perturbé par la présence des tubes et que l'humidité du sol diverge de manière assez importante dans ces derniers par rapport au sol environnant. La teneur en eau des tubes couverts tend à être plus faible que celle des tubes ouverts et que celle du sol environnant, du fait de l'absence des apports pluviométriques. Dans les tubes incubés, l'absence de prélèvements d'eau par la végétation tend à augmenter leur humidité. Ces différences de régime hydrique sont susceptibles de fausser plus ou moins fortement les résultats obtenus.

Si l'on considère que l'augmentation de la teneur en eau favorise la minéralisation de l'azote dans la gamme des pF observés dans cette étude (MYERS *et al.*, 1982), on peut en effet penser que la minéralisation est sous estimée dans les tubes couverts (T1) comparativement aux tubes ouverts (T2). Le lessivage est donc susceptible d'être sous estimé. Ceci pourrait expliquer l'existence de résultats "aberrants" (Tableau III.2.), qui indiquent des exportations négatives.

De même, les prélèvements calculés peuvent être surestimés, car l'humidité de T1 est généralement supérieure à celle du sol environnant.

Tableau III.4.- Comparaison des taux d'humidité des trois séries de tubes à la fin de chaque période d'incubation (Station du Haut-Jacques, Année 1988-1989).

Date	Séries	0-20 cm				0-45 cm			
		Humidité (%) [*]	Différences d'humidité entre les séries ^{**}			Humidité (%) [*]	Différences d'humidité entre les séries ^{**}		
			T1 - T2	T1 - T3	T2 - T3		T1 - T2	T1 - T3	T2 - T3
9/5/88	T1	20,25 ± 0,43				18,47 ± 0,60			
	T2	21,71 ± 0,76	- 1,46 ^a	5,64 ^a	7,10 ^a	19,32 ± 0,62	- 0,85 ^b	4,18 ^a	5,03 ^a
	T3	14,61 ± 0,65	(- 0,10)	(0,58)	(0,68)	14,29 ± 0,55	(- 0,08)	(0,41)	(0,49)
7/6/88	T1	22,89 ± 1,34				20,75 ± 0,45			
	T2	28,19 ± 1,27	- 5,30 ^a	0,16 ^d	5,46 ^a	23,45 ± 0,95	- 2,70 ^a	1,89 ^a	4,59 ^a
	T3	22,73 ± 0,85	(- 0,38)	(0,01)	(0,39)	18,86 ± 0,73	(- 0,26)	(0,18)	(0,44)
21/7/88	T1	21,35 ± 2,46				20,12 ± 0,45			
	T2	24,44 ± 1,62	- 3,09 ^b	1,25 ^d	4,34 ^a	20,96 ± 1,31	- 0,84 ^d	1,92 ^b	2,76 ^a
	T3	20,10 ± 0,96	(-0,22)	(0,09)	(0,31)	18,20 ± 0,41	(-0,08)	(0,18)	(0,26)
19/9/88	T1	17,80 ± 1,65				16,72 ± 1,10			
	T2	21,77 ± 1,08	- 3,97 ^a	- 0,78 ^d	3,19 ^a	19,14 ± 0,73	- 2,42 ^a	0,31 ^d	2,73 ^a
	T3	18,58 ± 1,00	(- 0,28)	(0,06)	(0,23)	16,41 ± 0,63	(-0,23)	(0,03)	(0,26)
19/10/88	T1	21,56 ± 2,15				19,35 ± 1,17			
	T2	25,66 ± 1,14	- 4,10 ^a	- 1,45 ^d	2,65 ^a	22,41 ± 1,23	- 3,06 ^a	- 1,00 ^d	2,06 ^a
	T3	23,01 ± 0,51	(- 0,3)	(- 0,1)	(0,19)	20,35 ± 0,54	(- 0,29)	(0,09)	(0,20)
24/11/88	T1	20,90 ± 0,78				18,41 ± 0,44			
	T2	23,42 ± 0,95	- 2,52 ^a	- 1,98 ^b	0,54 ^d	21,20 ± 0,64	- 2,79 ^a	- 1,31 ^b	1,48 ^b
	T3	22,88 ± 1,41	(- 0,18)	(- 0,14)	(0,04)	19,72 ± 1,06	(- 0,26)	(- 0,12)	(0,14)
10/1/89	T1	24,67 ± 1,39				21,06 ± 0,96			
	T2	28,85 ± 1,43	- 4,18 ^a	1,53 ^b	5,71 ^a	23,23 ± 1,09	- 2,17 ^a	1,03 ^d	3,20 ^a
	T3	23,14 ± 0,76	(0,30)	(0,11)	(0,41)	20,03 ± 1,01	(0,21)	(0,10)	(0,30)
13/3/89	T1	23,44 ± 1,68				20,76 ± 0,97			
	T2	27,38 ± 2,64	- 3,94 ^b	- 0,65 ^d	3,29 ^b	22,98 ± 1,44	- 2,22 ^b	1,00 ^c	3,22 ^a
	T3	24,09 ± 1,32	(- 0,28)	(- 0,05)	(0,23)	19,76 ± 0,77	(- 0,21)	(0,09)	(0,31)

* = Moyenne de 6 répétitions ± écart type.

** = variations correspondantes du pF (entre parenthèses).

^a = significatif au seuil de 99 % (test t de Student) ; ^b = significatif au seuil de 95 % ; ^c = significatif au seuil de 90 % ; ^d = non significatif au seuil de 90 %.

Par ailleurs, les mesures de RAISON *et al.* (1987) montrent des différences de température de quelques degrés à 2,5 cm de profondeur, entre les différents tubes et le sol environnant. Ces différences ne sont toutefois pas jugées suffisamment importantes pour avoir une influence significative sur les flux mesurés.

Pour atténuer ces types d'artefacts, ADAMS et ATTIWILL (1986) et ADAMS *et al.* (1989) utilisent des tubes à parois perforées, dont les trous sont destinés à favoriser l'égalisation de l'humidité et de la température à l'intérieur et à l'extérieur des tubes. Ceci est surprenant car les migrations d'eau s'accompagnent sans aucun doute de transferts de nitrates.

En fait, toutes les méthodes destinées à mesurer les flux d'azote minéral *in situ* sont génératrices d'artefacts. Celle qui a été choisie a toutefois été reconnue comme étant la moins perturbante, ce qui justifie son utilisation.

b.- La durée des incubations

Les temps d'incubation utilisés dans cette étude représentent un compromis entre le risque d'artefacts liés à une incubation trop longue et les possibilités matérielles de dosage des échantillons. On peut cependant noter dans la littérature quelques divergences d'opinions sur le temps d'incubation optimum.

D'après RAISON *et al.* (1987), la vitesse de minéralisation nette mesurée *in situ* est à peu près linéaire dans les tubes incubés jusqu'à 131 jours. Ceci suggère que les perturbations liées à l'implantation des tubes et à l'absence de prélèvement d'azote minéral à l'intérieur de ceux-ci sont sans effet sur la vitesse de minéralisation. Cette opinion est renforcée par les résultats de ADAMS et ATTIWILL (1986) qui ont montré qu'il existait, dans quatre forêts d'eucalyptus, une bonne corrélation entre les vitesses de minéralisation observées entre 0 et 30 jours d'incubation et entre 30 et 60 jours pour une même série de tubes.

Cependant, de nouvelles données présentées par ADAMS *et al.* (1989), obtenues sur 17 stations avec la même méthode mais utilisant des temps d'incubations de 1, 2 et 4 semaines, montrent que la corrélation entre la première et la deuxième période d'incubation diminue quand le temps d'incubation augmente. La vitesse de minéralisation est toujours plus faible durant la deuxième période que pendant la première. Cette différence est minimisée lors d'incubations d'une semaine (4 à 28%), mais peut être très importante si l'on utilise des incubations de 4 semaines (52 à 138%). Dans certains cas la minéralisation nette calculée est négative, ce qui indique que l'azote minéral est réorganisé. Inversement, SMETHURST et NAMBIAR (1989), en utilisant la méthode de RAISON *et al.* (1987) n'observent pas de différences significatives en ce

qui concerne la vitesse de minéralisation de l'azote dans des incubations de 4, 8 et 16 semaines, malgré une augmentation de cette vitesse de 15 à 30% dans le premier cas.

c.- Le pH

L'action du pH sur l'activité microbienne, et notamment sur la minéralisation de l'azote et la nitrification, est bien connu (WEBER et GAINEY, 1962). L'intensité de ces deux phénomènes est connue pour diminuer par suite de la diminution du pH, bien que quelques auteurs aient noté des cas où les apports acides étaient sans effet, voire bénéfiques (LIKE et KLEIN, 1985).

Dans les tubes, l'absence de prélèvement de divers éléments et la suppression des apports par les pluviollessivats dans la série T1 est susceptible d'induire des changements de pH et peut donc agir aussi bien sur la nitrification que sur l'équilibre minéralisation-immobilisation. Une comparaison menée par GRAS *et al.* (1988) entre des tubes et des plaques lysimétriques montre en effet des différences de pH au niveau des solutions recueillies de l'ordre de 0,5 unité. Aucune donnée précise n'a toutefois été relevée dans la littérature en ce qui concerne les modifications du pH et leurs conséquences dans ce type de méthodologie.

2.- FLUX DE NITRATES ET FONCTIONNEMENT DES ECOSYSTEMES

L'existence d'une nitrification autotrophe dans les sols acides est actuellement un fait bien établi (DANCER *et al.*, 1973 ; JOSSERAND et BARDIN, 1981 ; BOUDOT et CHONE, 1985) ; elle peut rester significative jusqu'à des pH aussi bas que 3 (VAN BREEMEN *et al.*, 1982, 1987 ; VAN BREEMEN et JORDENS, 1983).

Les prélèvements d'azote minéral par les peuplements forestiers non perturbés se situent généralement entre 30 et 75 kg d'N/ha/an dans le cas des forêts de conifères (à l'exclusion des forêts boréales) (COLE 1981 ; GOSZ, 1981), entre 50 et 100 kg d'N/ha/an dans le cas des forêts feuillues tempérées non fixatrices d'azote (COLE, 1981 ; GOSZ, 1981 ; MELLILO, 1981). Certaines études indiquent cependant des résultats très supérieurs à ces valeurs moyennes : NADELHOFFER *et al.* (1984) enregistrent, dans l'horizon 0-10 cm de plusieurs sols, des prélèvements de 86 kg d'N/ha/an sous résineux et de 114 kg d'N/ha/an sous feuillus. ADAMS et ATTIWILL (1986) ont calculé un prélèvement de 160 kg d'N/ha/an dans l'horizon 0-5 cm d'une forêt d'eucalyptus. Dans les écosystèmes nitrifiants, les prélèvements d'azote minéral par la végétation se font, au moins en partie, sous forme de nitrate, même sous certains résineux. NADELHOFFER *et al.* (1984) ont trouvé que la part de l'azote prélevée sous forme nitrique était de 47 à 100% sous résineux (pour des forêts de pin rouge et d'épicéa, respectivement) et de 71

à 100% sous feuillus (respectivement pour des forêts de bouleau et de chêne). Nos résultats sont donc proches des valeurs moyennes publiées dans la littérature. Pour la station du Haut-Jacques, les prélèvements sont relativement élevés pour une forêt résineuse presque pure (90% de sapin), mais il est probable que la strate herbacée (ronces) intervienne pour une part non négligeable dans ces prélèvements. D'après ces résultats, il ne semble pas que le problème du dépérissement du peuplement soit lié à un problème de carence en azote.

Dans la majorité des écosystèmes non perturbés sur sol acide, la vitesse de nitrification est lente ou modérée (0,5 à 66 kg d'N/ha/an) (HERBAUTS, 1980 ; VAN PRAAG *et al.*, 1974). Les pertes par lixiviation y sont donc généralement assez faibles. Ces pertes paraissent se produire entre la fin de l'automne et le début du printemps (LIKENS *et al.*, 1977) et ne s'élèveraient qu'à 0,1-4 kg d'N/ha/an dans les écosystèmes forestiers tempérés (résineux ou feuillus) (LIKENS *et al.*, 1977 ; HERBAUTS, 1980 ; GOSZ, 1981 ; MELLILO, 1981 ; VAN MIEGROET et COLE, 1985). Seules les stations où existe une fixation symbiotique d'azote sont connues pour donner lieu à de plus fortes exportations de nitrate dans les eaux de drainage (30 à 70 kg d'N/ha/an, VAN MIEGROET et COLE, 1985).

Par contre, dans les écosystèmes fortement perturbés (pollution atmosphérique forte, arbres dépérissants, coupes à blanc, zones incendiées, épandage de fertilisants), les pertes de nitrate par lessivage ont tendance à augmenter et à survenir à n'importe quelle saison (KHANNA, 1981 ; HAYNES, 1986). C'est ainsi que ULRICH *et al.* (1979) ont mesuré des pertes de 7 kg d'N/ha/an sous une forêt de hêtre et de 17 kg d'N/ha/an sous épicéa, sur le plateau du Solling en Allemagne, région soumise à des apports atmosphériques d'azote de 20 à 50 kg/ha/an. La concentration maximale apparaît durant la saison chaude (HUTTERMANN et ULRICH, 1984 ; MATZNER, 1986). Dans une région des Ardennes françaises soumise à des apports atmosphériques de 28 kg d'N/ha/an, NYS (1987) a noté des pertes de 14 kg d'N/ha/an sous hêtre et de 40 kg d'N/ha/an sous épicéa, les valeurs étant maximales en automne et/ou en hiver. En Hollande, sous des forêts soumises à des apports de sulfate d'ammonium très importants (45 à 63 kg d'N/ha/an), MULDER *et al.* (1987), VAN BREEMEN *et al.* (1982, 1987) et VAN BREEMEN et JORDENS (1983) ont observé des pertes en nitrate de 22-28 kg d'N/ha/an durant différentes périodes de l'année, qui se produisent souvent pendant la saison chaude. Dans nos stations, seuls les résultats obtenus en 1988-1989 dans la station du Haut-Jacques peuvent être discutés. En 1989-1990, l'hiver relativement sec et le maintien des prélèvements par la végétation à un niveau important ont conduit à une lixiviation de nitrate pratiquement nulle. On ne peut pas, de ce fait, savoir avec précision s'il y a une différence majeure dans le fonctionnement des deux écosystèmes quand au risque de lixiviation. Toutefois au vu de l'importance de la nitrification hivernale (respectivement 23,4 kg d'N/ha/an et 9,4 kg d'N/ha/an pour les stations du Haut-Jacques et de la Chipotte), il est probable que les risques de pertes en

nitrate par drainage sont nettement plus faibles sous le peuplement sain que sous le peuplement dépérissant. Pour l'année 1988-89, des pertes de 15 à 27 kg d'N/ha/an ont été mesurées sous ce dernier. Ces exportations sont sensiblement du même ordre de grandeur que celles observées dans diverses zones polluées d'Europe. Ces pertes ne sont cependant significatives qu'en hiver, la lixiviation étant faible ou nulle pendant le reste de l'année.

Pendant sa période d'activité, la végétation est donc capable de consommer la totalité des nitrates produits. L'hypothèse d'une nitrification excessive comme cause du dépérissement ne peut donc être raisonnablement retenue du printemps au début de l'automne. Les quantités relativement importantes de nitrate exportées au delà de la zone racinaire durant l'hiver pourraient par contre constituer un argument en faveur de l'hypothèse d'une nitrification anormalement élevée se produisant durant la période où la végétation est inactive. La production de nitrate dans l'horizon 0-20 cm, qui est de 16,3 kg d'N/ha entre le 19/09/88 et le 13/03/89 et de 6,4 kg d'N/ha entre le 24/11/88 et le 13/03/89 est toutefois très proche d'autres valeurs publiées dans la littérature. Les données de VAN PRAAG *et al.* (1974), par exemple, indiquent des quantités de N-NO_3^- produits dans l'horizon 0-15 cm d'un sol brun acide des Ardennes belges de 21 et 11 kg d'N/ha pour les mêmes périodes. La nitrification hivernale observée dans nos localités ne paraît donc pas anormalement élevée et ne peut donc pas être considérée comme constituant un phénomène récent responsable du dépérissement du peuplement. Ce type de sol est par ailleurs connu depuis fort longtemps pour être nitrifiant (DUCHAUFOR *et al.*, 1968) et ceci bien avant que la forêt ne montre de signes de dépérissement.

QUATRIEME PARTIE

EVALUATION DES FLUX DE SULFATES DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

STANDARD FORM NO. 64

REPLACEMENT FOR THE OLD
STANDARD FORM NO. 64

Un important regain d'intérêt pour l'étude du cycle et des flux du soufre dans les écosystèmes est apparu depuis quelques années, du fait de problèmes liés à la fois à l'environnement et à l'agronomie. D'importantes quantités de SO_2 sont en effet présentes dans l'atmosphère. Ce gaz pénètre dans les stomates des feuilles ou se dépose sous forme de dépôts secs ou occultes à la surface du feuillage de la végétation après s'être oxydé en H_2SO_4 [ou en $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ si l'atmosphère contient de l'ammoniac]. Une certaine quantité d'acide sulfurique est également dissoute dans l'eau de pluie. Lors de leur entrée dans les écosystèmes terrestres, les ions SO_4^{2-} jouent un rôle analogue à celui des nitrates, en ce sens qu'ils conduisent à l'acidification du milieu et entraînent la lixiviation des cations s'ils ne sont pas immobilisés dans le sol (JOHNSON *et al.*, 1986 ; NODVIN *et al.*, 1986 ; WAINWRIGHT, 1990). La minéralisation du soufre, qui entre dans la composition de la matière organique des sols, conduit par ailleurs à une production de protons qui s'ajoutent à ceux issus des retombées d'origine atmosphériques et des autres sources internes.

Le cycle du soufre présente de grandes analogies avec celui de l'azote (WAINWRIGHT, 1990). Comme l'azote, le soufre est présent dans les sols essentiellement sous forme organique. Il existe en outre une fraction inorganique plus ou moins importante selon le type de sol. Ces différentes formes subissent des transformations continues : elles peuvent être oxydées, réduites, minéralisées, immobilisées par les microorganismes, prélevées par la végétation ou exportées par lixiviation. Parmi les formes inorganiques, l'ion SO_4^{2-} est dominant dans tous les sols bien aérés. C'est également cette forme qui est prélevée par la végétation ou perdue par lixiviation. Il existe, cependant, quelques différences entre ces deux cycles, qui rendent l'étude de celui du soufre plus complexe. Les sulfates produits peuvent s'adsorber sur les colloïdes du sol, ou conduire à la néoformation de minéraux secondaires.

Dans un premier temps, une présentation des différentes méthodes d'étude des flux de sulfates nous permettra de constater que les méthodes d'incubation *in situ*, du type de celles que nous venons d'utiliser pour les nitrates, n'avaient, semble-t-il, jamais été employées dans le cas des sulfates. Nous avons donc essayé de valider l'utilisation de cette méthode à travers quelques données bibliographiques, puis nous l'avons utilisée dans nos deux stations pour mesurer les flux de sulfates (production lors de la minéralisation, prélèvements par la végétation, pertes par lixiviation) Ceci nous permettra d'avoir des éléments d'information quant à leur origine, leur devenir et leur impact vis-à-vis du pH dans les deux écosystèmes étudiés.

CHAPITRE I

METHODES D'ETUDE DES TRANSFERTS DE SULFATES

METHODES D'ETUDE DES TRANSFERTS DE SULFATES

I.- LES METHODES D'EXTRACTION DES SULFATES

Malgré les nombreuses analogies entre les deux cycles, une différence majeure existe dans les processus gouvernant le transfert des ions nitrates et sulfates dans les sols. Les sulfates peuvent être fortement adsorbés sur les colloïdes minéraux du sol par des liaisons de coordination (adsorption spécifique) (HINGSTON *et al.*, 1972 ; SERNA *et al.*, 1977). Les nitrates, par contre, ne sont impliqués que dans des phénomènes d'adsorption non spécifique (forces électrostatiques). Ils ne s'adsorbent que très faiblement quand ils sont en compétition avec les sulfates (HINGSTON *et al.*, 1972). Ils restent constamment déplaçables vers la solution du sol et sont toujours disponibles. Certains auteurs ont également supposé que les sulfates pouvaient précipiter et conduire à la constitution de minéraux secondaires cristallisés telles que la basaluminite, l'alunite, la jurbanite. Cette hypothèse est entretenue par le fait que les eaux du sol sont parfois sursaturées en sulfates par rapport à ces minéraux. Ils n'ont toutefois jamais été mis directement en évidence dans les sols forestiers recevant beaucoup de SO_2 ou de SO_4^{2-} (MULDER, 1988 ; CURTIN et SYERS, 1990a). Divers facteurs affectent la rétention des sulfates par le sol. Ce sont notamment le contenu en argile et leur type, le pH et la force ionique de la solution du sol (TABATABAI, 1982). Ces équilibres complexes entre la phase soluble et la phase adsorbée rend l'évaluation des différents compartiments de sulfates extrêmement difficile. Deux fractions extraites par des réactifs considérés comme étant sélectifs ont cependant été définies (TABATABAI, 1982) :

- la fraction soluble, extraite par l'eau ou des solutions aqueuses de sels neutres utilisés à concentration modérée. Les solutions les plus couramment utilisées sont le CaCl_2 à 0,15% (= 13,5 mM), LiCl 0,1 M, Mg Cl_2 5 mM. Les solutions salines sont généralement préférées à l'eau pour éviter les problèmes de dispersion.

- la fraction adsorbée sur les colloïdes du sol, qui peut être extraite avec des réactifs tels que NaHCO_3 , CaCO_3 , NH_4OAC 0,5 N + Acide acétique 0,25N, KH_2PO_4 ou $\text{Ca}(\text{H}_2\text{PO}_4)_2$ à 500 ppm de P (= 16 mM). Les solutions contenant du phosphore sont particulièrement bien adaptées car les ions PO_4^{2-} se fixent plus énergiquement que les ions SO_4^{2-} et déplacent les sulfates précédemment adsorbés (PARFITT, 1978 ; TABATABAI, 1982). La sélectivité de ce type d'extraction n'est cependant pas admise par tous les auteurs.

II.- LA MESURE DES FLUX DE SULFATES

Comme pour l'azote, il existe deux sources majeures de SO_4^{2-} : les apports par les retombées atmosphériques et la production endogène lors de la minéralisation de la matière organique du sol. Parallèlement, il existe quatre "modes de disparition" des ions SO_4^{2-} : l'immobilisation microbienne, l'immobilisation par adsorption sur les colloïdes du sol (et éventuellement la précipitation des minéraux secondaires), les prélèvements par la végétation et la lixiviation. Les apports atmosphériques sont mesurés, comme dans le cas de l'azote, à partir des pluviollessivats recueillis sous le couvert végétal. Par contre, la quantification des divers mécanismes intervenant dans les transformations (minéralisation et immobilisation) et les transferts de sulfate (prélèvements par les plantes et lixiviation), est plus délicate que dans le cas des nitrates du fait des phénomènes d'adsorption et de néoformations de minéraux secondaires sulfatés.

1.- LA MINÉRALISATION ET L'IMMOBILISATION DES SULFATES

De nombreuses études sont actuellement menées en vue d'évaluer l'importance de la minéralisation et de l'immobilisation du soufre dans les sols. La plupart d'entre-elles concernent des études d'incubation en conditions contrôlées (VAN PRAAG, 1973 ; KOWALENKO et LOWE, 1975 ; MAYNARD *et al.*, 1983 ; MAC LAREN *et al.*, 1985 ; SCHINDLER et MITCHELL, 1987), très proches quant à leur objectif et leur méthodologie des mesures de potentiel de nitrification. Ces études suggèrent généralement que la minéralisation nette du soufre est extrêmement faible ou nulle. Des expériences d'incubation sur colonnes de sol (TABATABAI et AL-KHAFAJI, 1980 ; MAYNARD *et al.*, 1983) accompagnées de périodes de lixiviation successives par KCl 0,01 N ont par contre mis en évidence la minéralisation de quantités significatives de soufre organique en sulfates. Dans ce cas, on observe généralement une bonne corrélation avec la vitesse de minéralisation nette de l'azote (TABATABAI et AL-KHAFAJI 1980). Ces expériences montrent clairement qu'en système fermé, la minéralisation nette du soufre est réduite ou nulle, car l'immobilisation est sensiblement égale à la minéralisation brute. Ceci a d'ailleurs été confirmé

par les expériences de MAC LAREN *et al.* (1985), qui utilisent du ^{35}S . En système ouvert (percolation sur colonne au laboratoire, prélèvements et/ou lixiviation au champ), par contre, la minéralisation nette est positive. Au laboratoire, les vitesses sont voisines de $0,7-0,8 \mu\text{g SO}_4\text{-S/g de sol/semaine}$ (TABATABAI et AL-KHAFAJI, 1980 ; MAYNARD *et al.*, 1983), mais ceci ne renseigne évidemment pas sur la minéralisation brute, dont l'évaluation nécessite l'utilisation de soufre marqué.

2.- L'ADSORPTION ET LA DESORPTION DES SULFATES

Les processus de transfert des sulfates vers les plantes ou leur exportation hors des sols constituent également un point très important car ils conditionnent en partie l'acidification des sols. Dans ce contexte, la capacité des sols à retenir les ions SO_4^{2-} est considérée comme étant un paramètre majeur. De très nombreuses études ont donc été menées pour mieux comprendre les mécanismes de rétention et de désorption des sulfates dans les sols (WEAVER *et al.*, 1985 ; BOLAN *et al.*, 1986a et b, 1988 ; JOHNSTON *et al.*, 1986 ; NODVIN *et al.*, 1986 ; CURTIN et SYERS, 1990a). Elles montrent que, pour un sol de composition minéralogique donnée, la rétention des sulfates est fortement régulée par le pH (HINGSTON *et al.*, 1972 ; TABATABAI, 1982 ; KORENTAJER *et al.*, 1983 ; NODVIN *et al.*, 1986 ; BOLAN *et al.*, 1988 ; CURTIN et SYERS, 1990a), la force ionique des solutions avec lesquelles le sol est en contact (BOLAN *et al.*, 1986b ; CURTIN et SYERS, 1990b). La capacité d'un sol à adsorber les ions SO_4^{2-} présents dans la solution est ainsi maximale vers pH4 et devient pratiquement nulle au delà de pH6 (HINGSTON *et al.*, 1972 ; BOLAN *et al.*, 1986b ; NODVIN *et al.*, 1986). Les mêmes tendances sont observées pour des expériences de désorption utilisant des solutions de NaCl variant de 0,01 M à 1 M (BOLAN *et al.*, 1986a), ou d'adsorption utilisant des solutions de Na_2SO_4 variant de 0 à $146 \mu\text{M/l}$ (NODVIN *et al.*, 1986). BOLAN *et al.* (1986a) ont par ailleurs montré que pour un pH donné, l'extraction des ions SO_4^{2-} augmentait de façon significative lorsque la concentration de la solution d'extraction passait de 0,01 M à 1 M. De même, CURTIN et SYERS, (1990b) observent qu'avec CaCl_2 et NaCl l'extraction est minimale pour des forces ioniques comprises entre 10^{-3} M/l et 5.10^{-2} M/l . Pour les forces ioniques inférieures, notamment avec l'eau, l'extraction des sulfates est légèrement supérieure et elle augmente très rapidement pour des concentrations situées au delà de 10^{-1} M . Enfin, il est clair que la nature de la solution d'extraction joue également un grand rôle. CURTIN et SYERS (1990b) observent qu'à force ionique constante, l'extraction des sulfates est plus faible avec CaCl_2 qu'avec NaCl, la différence reste néanmoins faible par rapport aux quantités extraites, qui sont principalement déterminées par la force ionique.

3.- LA LIXIVIATION DES SULFATES

Les études précédentes permettent de mieux comprendre l'influence des phénomènes d'adsorption et de désorption sur les transferts de sulfates. Cependant, il y a peu d'études menées directement sur le terrain concernant les flux de ces ions. La plupart des études portant sur les écosystèmes naturels concernent l'établissement de bilans entrées-sorties. Elles utilisent des lysimètres (NYS, 1987 ; NYS *et al.*, 1990) ou des études de bassins-versants (LIKENS *et al.*, 1977 ; LELONG *et al.*, 1989), qui permettent de faire une mesure des exportations en sulfates par lixiviation. En comparant ces résultats aux apports par les pluvioléssivats, on peut savoir si le sol agit comme un accepteur ou un donneur de SO_4^{2-} (LELONG *et al.*, 1989).

4.- EVALUATION DES PRELEVEMENTS DE SULFATES

En dehors de nombreuses études à caractère agronomique, basées sur la mesure directe du soufre dans la plante, très peu de données sont disponibles en ce qui concerne la mesure des prélèvements de sulfates par la végétation. Les besoins en soufre sont régulés par la synthèse des protéines. Il y a donc un rapport relativement constant entre les besoins en azote et en soufre. RUSSEL (1973) et TURNER *et al.* (1980) estiment que le rapport N/S des protéines est proche de 15 pour la plupart des végétaux. Les prélèvements d'azote par les peuplements forestiers se situent entre 30 et 100 kg d'N/ha/an (COLE, 1981 ; GOSZ, 1981 ; MELILLO, 1981). Les besoins correspondants en soufre seraient donc de 2 à 7 kg de S/ha/an. MEIWES et KHANNA (1981) ont mesuré des prélèvements de 10,1 kg de S/ha/an sous hêtraie et de 9,6 kg de S/ha/an sous pessière dans le Solling en Allemagne. Par la mesure du contenu en soufre des différents tissus, TURNER *et al.* (1980) estiment que les prélèvements effectués par le sapin Douglas s'élèvent à 6,8 kg de S/ha/an. NYS (1987) et NYS *et al.* (1990) ont calculé les prélèvements à partir de la comparaison de la lixiviation des sulfates dans des tubes et des plaques lysimétriques. Les résultats obtenus sont de 24,3 et de 28,2 kg de S/ha/an, respectivement sous hêtraie et pessière dans les Ardennes françaises. Des prélèvements de soufre sous forme de SO_4^{2-} ou de SO_2 par le feuillage des arbres peuvent également avoir lieu. Ce mécanisme peut être important dans les zones fortement polluées (TURNER *et al.*, 1980 ; MEIWES et KHANNA, 1981).

Les mesures de terrain restent cependant très fragmentaires. Aucune étude globale du type de celles effectuées sur l'azote (RAISON *et al.* 1987 ; BEQUER *et al.*, 1990) et visant à mesurer simultanément les différents flux n'a été relevée dans la littérature en ce qui concerne les sulfates. Le but de cette partie est donc d'utiliser la méthode employée pour l'étude des flux de nitrates pour l'étude simultanée des flux de sulfates dans les deux écosystèmes considérés.

CHAPITRE II

ETUDE DES FLUX DE SULFATES DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

CHARTER 1

THESE DES FLOU DE L'ÉTAT
DANS LES DEUX HEMISPHERES

ETUDE DES FLUX DE SULFATES DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

I.- MATERIEL ET METHODE

Dans le chapitre précédent, nous avons pu voir qu'il n'y avait pas de méthode standard pour mesurer les différents flux de sulfates dans les sols. Les méthodes d'incubation *in situ*, très largement utilisées dans le cas de l'azote, n'ont pas été appliquées dans le cas du soufre en raison des divers problèmes méthodologiques évoqués précédemment. Cependant, du fait de l'importance des apports en soufre et afin d'avoir des éléments de comparaison entre le comportement des sulfates et des nitrates dans les deux écosystèmes étudiés, il nous a semblé intéressant de tester la méthode d'incubation *in situ* de RAISON *et al.* sur les deux éléments.

Les tubes implantés pour étudier les flux d'azote ont donc également été utilisés pour suivre les flux de sulfates au cours de l'année 1989-90. Le même échantillon de sol a servi à l'extraction simultanée de SO_4^{2-} et de NO_3^- . Cette extraction est effectuée avec du KCl 0,01N dans un rapport sol/ solution de 1/2,5 (20 g de sol frais + 50 ml de KCl N/100) par agitation pendant 1 heure. Après centrifugation et filtration, le dosage des sulfates est effectué simultanément avec celui des nitrates par chromatographie ionique, cette méthode étant parfaitement adaptée au dosage des ions SO_4^{2-} dans la solution saline employée (TABATABAI, 1982). La méthode de calcul des flux est proche de celle utilisée pour les nitrates.

1.- VALIDITE DE LA METHODE D'EXTRACTION

Les problèmes généraux concernant la validité des méthodes d'incubation *in situ* ont été discutés précédemment. La représentativité des sulfates extraits par le KCl 0,01N mérite par contre quelques réflexions. En effet, la rétention des sulfates au niveau du sol rend quelque peu plus complexe la démarche qui pouvait être tenue pour les nitrates. La question posée est la suivante : les sulfates extraits par une solution de KCl 0,01N sont-ils représentatifs des sulfates lixiviables du sol ?

Tableau IV.1.- Caractéristiques chimiques des solutions récoltées au niveau des plaques lysimétriques, et indices de toxicité alumineuse établis à partir de calculs de spéciation effectués par le programme ALCHEMI. Station du Haut-Jacques.

Localité	Lysimètre	Date	pH	[Ca ²⁺] μM/l	[Al] total μM/l	[NO ₃] total μM/l	[SO ₄] total μM/l	[C] org. μM/l	Force ionique mM/l	Index satur. Al amorphe	Index satur. gibbsite	Index satur. jurbanite	[CA]/[Al] sol.	CAB	CAB*	I _{tox}
Haut-Jacques	Plaque 15 cm	24/05/88	4,84	77	34	276	60	246	0,55	-2,88	-0,85	-1,46	2,3	29,0	29,2	31,6
		30/05/88	4,44	109	79	318	28	0	0,87	-2,47	-0,44	-0,71	1,4	21,4	21,6	1,4
		16/06/88	4,38	54	52	3	0	191	0,30	-3,29	-1,26	-46,79	1,0	25,0	25,1	3,1
		04/07/88	4,40	74	51	0	0	167	0,37	-2,91	-0,88	-46,76	1,5	24,4	24,6	3,9
		06/12/88	4,42	59	55	115	82	394	0,55	-3,97	-1,94	-1,20	1,1	27,9	28,1	8,0
		09/01/89	4,31	28	63	61	93	0	0,59	-3,40	-1,37	-0,39	0,5	22,3	22,5	0,5
		28/02/89	4,23	64	131	414	59	0	1,18	-3,32	-1,29	-0,41	0,5	21,4	21,6	0,6
		24/08/89	4,71	67	38	61	91	0	0,58	-1,77	0,26	-0,29	1,7	21,9	22,0	1,9
		20/12/89	4,19	32	61	85	101	0	0,64	-3,78	-1,75	-0,50	0,5	23,0	23,3	0,7
		02/02/90	4,20	31	51	62	89	502	0,53	-4,42	-2,39	-1,31	0,6	27,6	27,8	4,0
		21/03/90	4,51	37	29	22	65	520	0,43	-4,02	-1,99	-1,77	1,2	30	30,2	16,8
		25/04/90	4,20	69	43	377	39	257	0,66	-4,00	-1,97	-1,50	1,6	26,6	26,7	4,9
		25/05/90	4,42	310	30	173	58	0	1,18	-3,04	-1,01	-0,83	10,4	25,3	25,3	10,1
Haut-Jacques	Plaque 30 cm	16/06/88	5,66	214	53	16	0	393	0,74	-1,60	0,43	-47,67	4,1	33,9	34,0	481,0
		06/12/88	4,40	31	70	46	118	0	0,69	-3,09	-1,06	-0,16	0,4	21,8	22,1	0,6
		09/01/89	4,52	23	61	145	129	0	0,68	-2,82	-0,79	-0,09	0,4	21,5	21,9	0,5
		28/02/89	4,64	44	67	45	119	0	0,70	-2,40	-0,37	0,05	0,7	21,4	21,6	0,8
		24/08/89	5,65	372	1	131	138	0	1,36	-1,32	0,71	-1,43	334,8	33,2	33,3	465,0
		20/12/89	4,34	32	75	85	105	0	0,73	-3,25	-1,22	-0,26	0,4	21,9	22,2	0,6
		02/02/90	4,13	32	63	23	132	0	0,69	-3,82	-1,79	-0,43	0,5	23,0	23,3	0,7
		21/03/90	4,60	33	80	32	132	0	0,72	-2,47	-0,44	-0,14	0,4	22	22,3	1
		25/05/90	5,28	692	1	101	98	0	2,15	-2,23	-0,20	-1,47	623,1	32,8	32,9	714,2
Haut-Jacques	Plaque 60 cm	16/06/88	4,56	239	215	21	0	982	0,88	-2,98	-0,94	-46,80	1,1	26,6	26,7	17,6
		04/07/88	4,95	129	17	0	0	100	0,41	-2,40	-0,37	-47,22	7,7	29,1	29,2	54,7
		06/12/88	4,35	142	428	665	93	0	2,71	-2,52	-0,49	0,22	0,3	18,9	19,1	0,4
		09/01/89	4,54	51	81	85	137	0	0,83	-2,63	-0,60	0,07	0,6	21,4	21,7	0,8
		24/08/89	4,73	50	8	106	76	0	0,48	-2,53	-0,50	-0,97	6,1	25,7	25,9	7,2
		20/12/89	4,28	141	550	1003	91	0	3,45	-2,64	-0,61	0,19	0,3	18,6	18,8	0,3
		02/02/90	4,13	134	544	750	88	363	2,76	-3,07	-1,04	-0,05	0,2	19,5	19,8	0,4
		21/03/90	4,34	94	360	674	90	217	1,96	-2,52	-0,49	0,04	0,3	19,4	19,6	0,4
		25/05/90	4,38	73	551	477	82	0	2,91	-2,08	-0,05	0,24	0,1	17,1	17,3	0,2

$$CAB = [2\log[Ca^{2+}]] - [3\log[Al^{3+}] + 2\log[Al(OH)^{2+}] + \log[Al(OH)_2^+]]$$

$$CAB^* = [2\log[Ca^{2+}] + 2\log[Mg^{2+}]] - [3\log[Al^{3+}] + 2\log[Al(OH)^{2+}] + \log[Al(OH)_2^+]]$$

$$I_{tox} = 2[Ca^{2+}] + 2[Mg^{2+}]/3[Al^{3+}] + 2[Al(OH)^{2+}] + [Al(OH)_2^+]$$

Tableau IV.2.- Caractéristiques chimiques des solutions récoltées au niveau des plaques lysimétriques, et indices de toxicité alumineuse établis à partir de calculs de spéciation effectués par le programme ALCHEMI. Station de La Chipotte.

Localité	Lysimètre	Date	pH	[Ca ²⁺] μM/l	[Al] total μM/l	[NO ₃] total μM/l	[SO ₄] total μM/l	[C] org. μM/l	Force ionique mM/l	Index satur. Al amorphe	Index satur. gibbsite	Index satur. jurbanite	[CA]/[Al] sol	CAB	CAB*	I _{tox}
La Chipotte	Plaque 15 cm	25/05/89	5,35	274	4	27	65	1	0,80	-1,59	0,44	-1,05	75,4	28,9	29,0	88,2
		16/06/89	5,95	85	29	34	93	1	0,60	0,00	2,03	-0,67	2,9	27,6	27,8	17,8
		05/07/89	5,79	255	25	1	81	1559	1,73	-2,20	-0,17	-2,89	10,1	40,3	40,4	4414,5
		27/07/89	5,03	95	42	0	85	1864	1,03	-3,11	1,08	-2,30	2,2	34,6	34,7	402,1
		24/08/89	6,04	67	37	0	74	27	0,48	0,00	2,03	-1,25	1,8	29,8	30,0	21,4
		07/11/89	4,41	56	48	1	39	2040	0,77	-4,26	-2,23	-2,36	1,2	31,6	31,8	46,2
		20/12/89	4,47	43	49	3	75	1595	0,71	-4,60	-2,57	-1,97	0,9	32,1	32,3	35,6
		02/02/90	4,32	38	46	1	65	172	0,40	-3,78	-1,75	-1,04	0,8	25,5	25,8	2,5
		21/03/90	4,72	10	10	0	56	210	0,27	-3,77	-1,74	-2,00	1	30,4	31	20
		25/04/90	4,15	33	46	2	41	1677	0,64	-5,00	-2,97	-2,25	0,7	30,8	31	14,4
		25/05/90	4,09	41	70	1	49	0	0,60	-3,61	-1,58	-0,83	0,6	22,3	22,6	0,7
La Chipotte	Plaque 30 cm	25/05/89	7,58	652	1	20	186	1	4,68	-0,85	1,18	-4,38	587,8	56,3	56,3	49906,9
		27/07/89	8,02	1532	1	112	286	839	12,52	-1,64	0,39	-6,30	1380,6	69,1	69,2	1860175,5
		24/08/89	7,57	1309	3	233	170	0	5,80	-0,81	1,22	-4,74	505,3	57,9	58,0	92026,1
		07/11/89	7,17	623	7	108	105	0	2,67	0,00	2,03	-3,24	86,6	46,7	46,8	2898,5
		20/12/89	6,97	348	1	57	115	0	1,81	-0,24	1,79	-2,46	351,1	42,7	42,7	1653,1
		21/03/90	6,97	0,5	1	10	132	0	1,07	-0,34	1,69	-2,74	0,4	38,6	41,9	132,4
		25/05/90	6,80	2	3	57	171	0	1,05	-0,08	1,95	-2,09	0,7	36,1	39,2	154,3

$CAB = [2\log\{Ca^{2+}\}] - [3\log\{Al^{3+}\} + 2\log\{Al(OH)^{2+}\} + \log\{Al(OH)_2^+\}]$
 $CAB^* = [2\log\{Ca^{2+}\} + 2\log\{Mg^{2+}\}] - [3\log\{Al^{3+}\} + 2\log\{Al(OH)^{2+}\} + \log\{Al(OH)_2^+\}]$
 $I_{tox} = 2[Ca^{2+}] + 2[Mg^{2+}]/3[Al^{3+}] + 2[Al(OH)^{2+}] + [Al(OH)_2^+]$

On peut espérer obtenir une extraction représentative par des réactifs qui ne perturbent pas trop les équilibres régulant la mobilité des ions SO_4^{2-} , à savoir le pH et la force ionique. Il est donc nécessaire d'utiliser des sels neutres selon une concentration telle que la force ionique qui en résulte soit la plus proche possible de celle de la solution des sols correspondants. Les forces ioniques des solutions du sol recueillies dans les deux stations grâce aux plaques lysimétriques (Tableaux IV.1. et IV.2.) varient de $0,75 \cdot 10^{-3}$ M à $2 \cdot 10^{-3}$ M pour les différents niveaux de prélèvement. Les travaux de CURTIN et SYERS (1990b et c) montrent que la capacité d'une solution à extraire les sulfates d'un sol passe par un minimum pour des forces ioniques comprises entre 10^{-3} M et 10^{-1} M pour des réactifs tels que KCl, NaCl et CaCl_2 . Le KCl 0,01 N que nous avons employé pour l'extraction des nitrates a donc sensiblement la même efficacité à désorber les sulfates que les solutions percolant à travers les sols étudiés. Ces résultats nous conduisent à penser que cette solution d'extraction donne une bonne image des sulfates présents dans la solution du sol et qui sont susceptibles d'être lixiviés ou prélevés par la végétation.

2.- METHODE DE CALCUL

La méthode de calcul des flux de sulfates est comparable, dans son principe, à celle présentée pour les nitrates. Toutefois, elle a subi quelques modifications afin de prendre en compte les possibilités de néoformation de minéraux secondaires.

Ainsi, si l'on note S-SO₄ le soufre présent sous forme de sulfates, T1f(S-SO₄) et T2f(S-SO₄) le contenu en sulfates des tubes T1 et T2 à la fin d'une période d'incubation donnée, et T3i(S-SO₄) et T3f(S-SO₄) le contenu en sulfate de T3 respectivement au début et à la fin d'une période d'incubation,

on peut écrire les trois équations suivantes :

$$\text{T3f(S-SO}_4\text{)} = \text{T3i(S-SO}_4\text{)} + \text{Minéralisation nette du soufre organique} + \text{S-SO}_4 \text{ des Pluviolessivats} - \text{Prélèvements de S-SO}_4 - \text{Lessivage de S-SO}_4 - \text{S-SO}_4 \text{ des minéraux néoformés à partir du soufre minéralisé net} - \text{S-SO}_4 \text{ des minéraux néoformés à partir du soufre des pluviolessivats.}$$

$$\text{T2f(S-SO}_4\text{)} = \text{T3i(S-SO}_4\text{)} + \text{Minéralisation nette du soufre organique} + \text{S-SO}_4 \text{ des Pluviolessivats} - \text{Lessivage de S-SO}_4 - \text{S-SO}_4 \text{ des minéraux néoformés à partir du soufre minéralisé net} - \text{S-SO}_4 \text{ des minéraux néoformés à partir du soufre des pluviolessivats.}$$

$$\text{T1f(S-SO}_4\text{)} = \text{T3i(S-SO}_4\text{)} + \text{Minéralisation nette du soufre organique} - \text{S-SO}_4 \text{ des minéraux néoformés à partir du soufre minéralisé net}$$

Après simplification, on obtient:

$$\text{Minéralisation nette du soufre organique} = T1f(S-SO_4) - T3i(S-SO_4) \\ + S-SO_4 \text{ des minéraux néoformés à partir du soufre minéralisé net}$$

$$\text{Prélèvements de } S-SO_4 = T2f(S-SO_4) - T3f(S-SO_4)$$

$$\text{Lessivage de } S-SO_4 = T1f(S-SO_4) - T2f(S-SO_4) + S-SO_4 \text{ des pluviolessivats} \\ + S-SO_4 \text{ des minéraux néoformés à partir du soufre des pluviolessivats.}$$

Dans ces équations, il subsiste deux inconnues : le soufre des minéraux néoformés à partir du soufre minéralisé net et celui des minéraux néoformés à partir du soufre des pluviolessivats. Les indices de saturation des solutions du sol par rapport à la jurbanite $[AlSO_4OH, 5H_2O]$, calculés grâce au programme ALCHEMI (programme de calcul d'équilibres géochimiques permettant de connaître les espèces chimiques présentes en solution), ont toujours une valeur négative ou très proche de zéro (Tableaux IV.1. et IV.2.). Ceci indique qu'il n'y a guère de possibilité de néoformation de ce minéral. Les équations précédentes peuvent donc être résolues.

II.- RESULTATS

Les résultats pour les deux stations sont présentés dans le tableau IV.3.

La minéralisation nette du soufre conduit à la formation de 11 à 15 kg de $S-SO_4^{2-}/ha/an$ sous la sapinière déperissante et de -7 à 8 kg de $S-SO_4^{2-}/ha/an$ sous la sapinière saine. Les vitesses de minéralisation varient de -5 à 10 mg de S/m²/jour, avec une minéralisation nette généralement négative (immobilisation dominante) en été et positive en hiver.

Les prélèvements par la végétation s'élèvent respectivement à 9-13 kg de $S-SO_4^{2-}/ha/an$ sous le peuplement déperissant et à 2-6 kg de $S-SO_4^{2-}/ha/an$ sous la sapinière saine. Ces chiffres sont du même ordre de grandeur que ceux calculés pour la minéralisation nette, ce qui signifie que la végétation consomme une quantité de sulfates correspondant de très près à celle qui est produite dans la tranche 0-45 cm du sol par la minéralisation nette. Ces prélèvements paraissent diminuer légèrement au cours de l'automne et de l'hiver, du moins en ce qui concerne la localité déperissante. Sous la sapinière saine, les valeurs sont trop faibles pour que l'on puisse observer ce type de tendance.

Tableau IV.3.- Contenu en $S-SO_4^{2-}$ des différents tubes incubés et calcul des flux correspondants pour les couches 0-10 cm et 0-45 cm. Station du Haut-Jacques, année 1989-1990 (25/05/1989-01/06/1990).

Haut-Jacques 0-20 cm									
Date	Nb de jours	$S-SO_4^{2-}$ apporté par les pluiolessivats	T3i	Tif	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
$\mu g S-SO_4^{2-}$ par tube ⁽¹⁾						$mg S-SO_4^{2-} \cdot m^{-2} \cdot jour^{-1}$			
25/05/89						606 ± 159			
19/06/89	25	31	606 ± 159	863 ± 127	805 ± 199	794 ± 199	6,76	0,29d	2,77
17/08/89	59	154	794 ± 199	1002 ± 240	906 ± 143	568 ± 61	2,32d	3,77a	3,68
28/09/89	42	106	568 ± 61	694 ± 197	866 ± 130	902 ± 194	1,97d	-0,56d	-0,17e
04/12/89	67	251	902 ± 194	993 ± 225	797 ± 152	657 ± 237	0,89d	-1,37d	5,67
12/02/90	70	470	657 ± 237	1149 ± 245	1002 ± 177	1148 ± 344	4,62b	1,37d	8,10
25/04/90	72	497	1148 ± 344	1379 ± 150	1219 ± 327	1005 ± 56	2,11fd	1,96d	8,36
01/06/90	36	123	1005 ± 56	1237 ± 115	834 ± 137	714 ± 68	4,24a	2,19d	10,78
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		16,3					10,8 ⁽²⁾ 4,8 ⁽³⁾	4,2 ⁽²⁾ 2,2 ⁽³⁾	22,2 ⁽²⁾ 22,2 ⁽³⁾

0-45 cm									
Date	Nb de jours	$S-SO_4^{2-}$ apporté par les pluiolessivats	T3i	Tif	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
$\mu g S-SO_4^{2-}$ par tube ⁽¹⁾						$mg S \cdot m^{-2} \cdot jour^{-1}$			
25/05/89						1363 ± 357			
19/06/89	25	31	1363 ± 357	2598 ± 198	3210 ± 366	2953 ± 343	32,50a	6,76d	-14,87e
17/08/89	59	154	2953 ± 343	2435 ± 424	2461 ± 210	1931 ± 322	-5,78c	5,91b	2,32
28/09/89	42	106	1931 ± 332	2166 ± 446	2472 ± 397	2071 ± 309	3,68d	6,28c	-2,27e
04/12/89	67	251	2071 ± 309	2966 ± 167	2730 ± 313	2569 ± 561	8,79a	1,58d	6,06
12/02/90	70	470	2569 ± 561	3288 ± 860	3882 ± 384	3621 ± 474	6,76d	2,45d	1,13
25/04/90	72	497	3621 ± 474	3601 ± 994	3405 ± 430	3440 ± 304	-0,18d	-0,32d	8,69
01/06/90	36	123	3440 ± 304	3150 ± 137	3244 ± 151	2889 ± 220	-5,30d	6,49b	1,70
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		16,3					14,8 ⁽²⁾ 10,6 ⁽³⁾	12,7 ⁽²⁾ 8,5 ⁽³⁾	13,1 ⁽²⁾ 13,1 ⁽³⁾

⁽¹⁾ Moyenne de 6 répétitions ± écart-type - ⁽²⁾ Somme des valeurs significatives et non significatives - ⁽³⁾ Somme des valeurs significatives (non aberrantes)
a = significatif à 99 % (test t de Student) ; b = significatif à 95 % ; c = significatif à 90 % ; d = non significatif ; e = valeurs aberrantes.

Tableau IV.3.- (suite) Station de La Chipotte, année 1989-1990 (25/05/12989-01/06/1990).

La Chipotte 0-20 cm									
Date	Nb de jours	S-SO ₄ ²⁻ apporté par les pluviollessivats	T3i	Tif	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
			µg S-SO ₄ ²⁻ par tube ⁽¹⁾				mg S.m ⁻² .jour ⁻¹		
25/05/89						606 ± 159			
26/06/89	32	94	606 ± 159	656 ± 173	679 ± 201	446 ± 43	1,03	4,79d	2,46d
25/08/89	60	315	446 ± 43	451 ± 95	402 ± 71	339 ± 50	0,05d	0,69d	5,79d
07/11/89	74	310	339 ± 50	655 ± 102	502 ± 58	458 ± 64	2,81a	0,39d	5,55b
12/01/89	66	250	458 ± 64	549 ± 84	604 ± 53	517 ± 71	0,91c	0,87c	3,24d
21/03/90	68	329	517 ± 71	759 ± 141	712 ± 88	664 ± 115	2,34a	0,46d	5,29d
01/06/90	71	327	664 ± 115	613 ± 58	691 ± 75	548 ± 117	-0,47d	1,33b	3,88d
Total (Kg.ha ⁻¹ .an)		16,23					4,3 ⁽²⁾ 4,3 ⁽³⁾	4,1 ⁽²⁾ 1,5 ⁽³⁾	16,9 ⁽²⁾ 16,9 ⁽³⁾

0-45 cm									
Date	Nb de jours	S-SO ₄ ²⁻ apporté par les pluviollessivats	T3i	Tif	T2f	T3f	Minéralisation nette	Prélèvement	Lixiviation
			µg S-SO ₄ ²⁻ par tube ⁽¹⁾				mg S.m ⁻² .jour ⁻¹		
25/05/89						3851 ± 208			
26/06/89	32	94	3851 ± 208	1825 ± 309	1378 ± 405	1424 ± 79	-41,65e	-0,95d	12,13
25/08/89	60	315	1424 ± 79	1197 ± 82	1196 ± 223	1061 ± 174	-2,49a	1,48d	5,26
07/11/89	74	310	1061 ± 174	1680 ± 184	1492 ± 169	1413 ± 208	5,50a	0,70d	5,86
12/01/89	66	250	1413 ± 208	1624 ± 313	1613 ± 117	1384 ± 180	2,10d	2,28	3,90
21/03/90	68	329	1384 ± 180	2446 ± 216	2375 ± 392	1992 ± 284	10,27a	3,71d	5,53
01/06/90	71	327	1992 ± 284	1584 ± 157	1755 ± 233	1623 ± 145	-3,78b	1,22d	3,02
Total (Kg N.ha ⁻¹ .an)		16,2					8,2 ⁽²⁾ 6,9 ⁽³⁾	6,0 ⁽²⁾ 1,5 ⁽³⁾	19,8 ⁽²⁾ 19,8 ⁽³⁾

⁽¹⁾ Moyenne de 6 répétitions ± écart-type - ⁽²⁾ Somme des valeurs significatives et non significatives - ⁽³⁾ Somme des valeurs significatives (non aberrantes)
a = significatif à 99 % (test t de Student) ; b = significatif à 95 % ; c = significatif à 90 % ; d = non significatif ; e = valeurs aberrantes.

Les quantités de sulfates lixiviées au delà de 45 cm sont respectivement de 13 et 20 kg de $S-SO_4^{2-}$ /ha/an au Haut-Jacques et à la Chipotte. Les épisodes de forte pluviométrie (février 1990) sont marqués par des pertes en sulfates particulièrement importantes. La lixiviation est plus prononcée en automne et en hiver qu'au printemps et en été, ce qui semble être dû à des apports en soufre atmosphérique plus importants durant cette période de l'année, ainsi qu'à l'augmentation du drainage climatique. Globalement, les exportations de sulfates sont approximativement identiques aux apports par les pluviollessivats, qui sont voisines de 16 kg de $S-SO_4^{2-}$ /ha/an dans chaque station. Les deux écosystèmes étudiés semblent donc être en équilibre quant à leur richesse en soufre.

Si l'on cherche à comparer ces résultats avec ceux obtenus par le biais des plaques lysimétriques, on obtient des résultats qui présentent des tendances identiques à celles obtenues pour les nitrates (Tableau IV.4.). Les flux enregistrés sont du même ordre de grandeur dans les deux cas à La Chipotte, alors que ceux obtenus par lysimétrie sont 5 fois plus élevés au Haut-Jacques.

Tableau IV.4.- Comparaison des flux de sulfates mesurés par lysimétrie plaque et par incubation *in situ*.

Station du Haut-Jacques Année 1988-1989				Station du Haut-Jacques Année 1989-1990			Station de la Chipotte Année 1989-1990		
Saison	Drainage (mm)	[S-SO ₄ ²⁻] (mg/l)	Quantité de S-SO ₄ ²⁻ (kg/ha)	Drainage (mm)	[S-SO ₄ ²⁻] (mg/l)	Quantité de S-SO ₄ ²⁻ (kg/ha)	Drainage (mm)	[S-SO ₄ ²⁻] (mg/l)	Quantité de S-SO ₄ ²⁻ (kg/ha)
Printemps + Eté	14	3,8	0,5	0	2,5	0	0	11,3	0
Automne + Hiver	491	3,7	18,2	560	11,7	65,7	426	20,2	28,6
Année			18,7			65,7			28,6
Résultats des incubations <i>in situ</i>						13,1			19,8

III.- DISCUSSION

Différentes expériences d'incubation, rapportées dans la littérature, ont été menées au laboratoire en vue de mesurer l'importance de la minéralisation nette du soufre. En système clos (ni prélèvements, ni lixiviation), la minéralisation nette du soufre est faible ou nulle (VAN PRAAG, 1973 ; MAYNARD *et al.*, 1983 ; MAC LAREN *et al.*, 1985). En système ouvert (sur colonne de sol) elle atteint par contre 0,7 à 0,8 μg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{g}$ de sol/semaine (TABATABAI et AL-KHAFAJI 1980 ; MAYNARD *et al.*, 1983). La cinétique de minéralisation nette est donc presque nulle en système fermé et augmente de façon appréciable en système ouvert. En conditions naturelles, les mêmes tendances semblent exister. Ainsi en été, le drainage étant faible ou nul, les valeurs enregistrées dans nos stations pour les horizons 0-45 cm sont généralement nulles, voir négatives. Le soufre minéralisé ou provenant des apports exogènes est totalement réorganisé par les microorganismes du sol ou adsorbé sur les colloïdes minéraux du sol. En hiver, le drainage est plus important et la minéralisation nette est alors plus élevée : de l'ordre de 5 à 10 mg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{m}^2/\text{jour}$ pour les horizons 0-45 cm, soit environ 0,15 μg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{g}$ de sol/semaine. Une partie de ces sulfates est alors exportable au delà de la zone racinaire, et cette tendance est renforcée par la dormance de la végétation, dont la consommation est faible en cette saison.

Les prélèvements de sulfates mesurés dans nos deux stations s'élèvent respectivement à 9-13 kg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{ha}/\text{an}$ sous le peuplement dépérissant et 2-6 kg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{ha}/\text{an}$ sous la sapinière saine. Les besoins théoriques des plantes, estimés à partir des prélèvements d'azote (respectivement de 107 et 50 kg de $\text{N-NO}_3^-/\text{ha}/\text{an}$ en 1989-90) et d'un rapport N/S moyen des protéines de 15, sont respectivement de 7 et 3 kg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{ha}/\text{an}$. Les prélèvements que nous avons mesurés sont donc du même ordre de grandeur que les résultats théoriques, compte tenu de la précision de la méthodologie utilisée. Il sont également très proches de ceux mentionnés dans la littérature par TURNER *et al.* (1980) et par MEIWES et KHANNA (1981), ce dernier cas étant caractérisé par d'importants apports de soufre atmosphérique.

La lixiviation des sulfates constitue le flux prépondérant en ce qui concerne les deux écosystèmes étudiés. L'essentiel des sulfates entraînés en profondeur provient des apports atmosphériques, la contribution du cycle interne du soufre dans le lessivage étant très faible. Si l'on compare les deux localités, on constate toutefois que pour des apports identiques en sulfates (16 kg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{ha}/\text{an}$), la lixiviation présente quelques différences. A la Chipotte, la quantité de sulfates apportés, puis exportés au delà de 20 cm puis 45 cm est identique. Par contre dans le cas de la station dépérissante, la lixiviation au delà de 20 cm est de 22 kg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{ha}/\text{an}$, puis elle chute à 13 kg de $\text{S-SO}_4^{2-}/\text{ha}/\text{an}$ à 45 cm. Ce stockage dans les horizons

profonds observé uniquement dans la station déperissant, se produit surtout en hiver et au début du printemps (Figure IV.1.). Peut-être pourrait-il être dû à l'abaissement du pH des solutions du sol que l'on observe à cette période. L'insuffisance du drainage au cours de l'hiver 1989-90 n'est toutefois pas à exclure pour expliquer ce stockage.

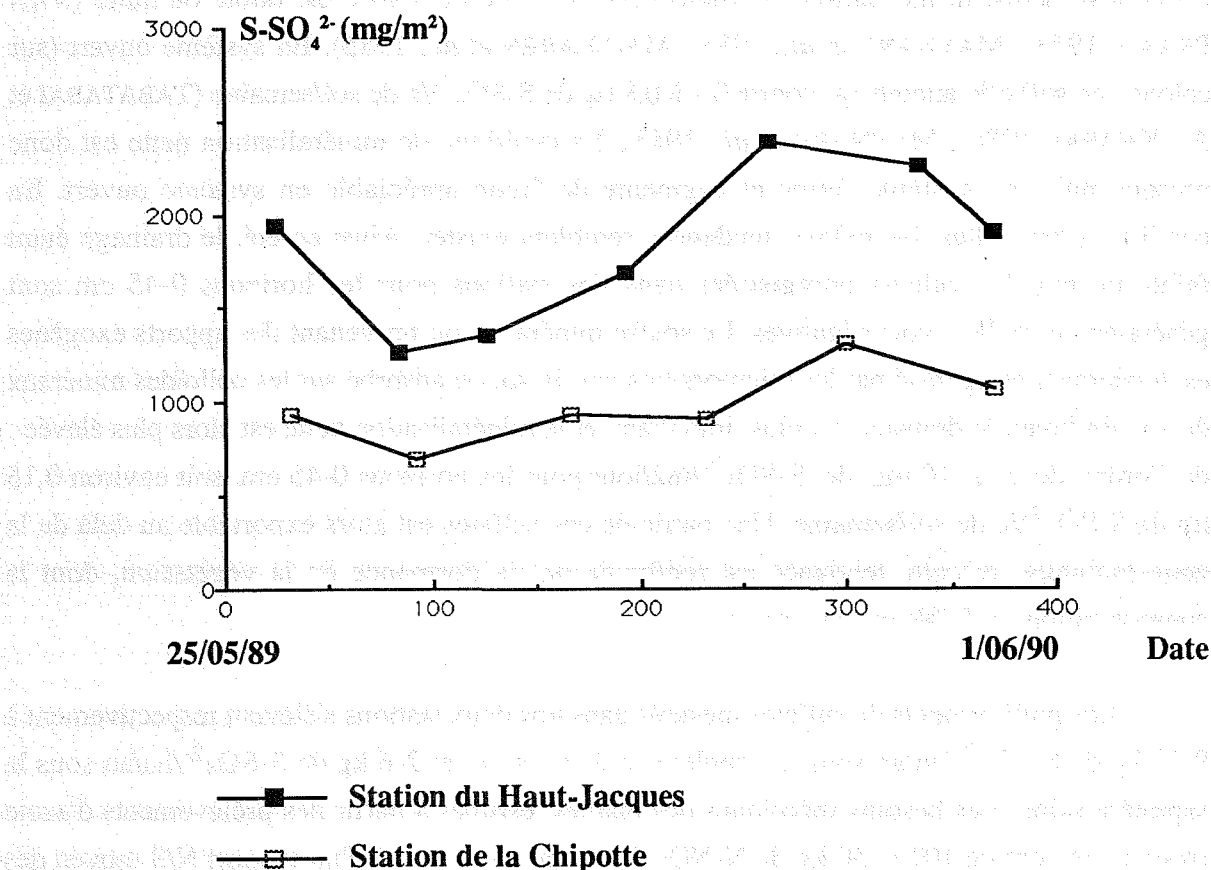


Figure IV.1.- Variations du stock de S-SO_4^{2-} au cours du temps dans la couche 0-45 cm.

Il semble exister un parallèle entre les cycles de l'azote et du soufre. Ils sont marqués par la succession de deux phases :

- durant la période de végétation, la quasi totalité des nitrates et des sulfates produits dans le sol ou apportés par les pluviollessivats sont consommés par la végétation ;
- durant la période hivernale, les prélèvements sont beaucoup plus réduits alors que la minéralisation nette se maintient souvent à un niveau non négligeable (généralement plus élevé que les prélèvements) et que les apports exogènes s'amplifient. Les anions produits et/ou apportés sont généralement perdus par lixiviation durant cette période de fort drainage climatique. Dans le cas des sulfates, on observe toutefois un certain stockage hivernal, qui n'existe pas pour les nitrates (BECQUER *et al.*, 1990).

Cette seconde période est marquée par une nette augmentation de la concentration en aluminium dans les eaux gravitaires du sol, ce qui traduit une acidification du milieu. Dans la dernière partie de ce travail, nous allons donc tenter de préciser les relations existant entre les cycles de l'azote et du soufre et la libération d'aluminium dans les solutions du sol.

CINQUIEME PARTIE

BILANS SAISONNIERS DES PROTONS ET RELATION AVEC LA TOXICITE ALUMINEUSE

CIVILIAN PART

THESE REGULATIONS ARE INTENDED TO BE APPLIED TO THE CIVILIAN PART OF THE ARMY.

L'acidification saisonnière du sol conduit à la solubilisation d'aluminium, qui peut être toxique pour la végétation (SEGALEN 1973 ; KINDRAIDE et PARKER, 1989). Ceci a conduit différents auteurs à attribuer, au moins en partie, le dépérissement forestier à ce type de toxicité (ROST-SIEBERG, 1983 ; HÜTTERMANN et ULRICH, 1984 ; GODBOLD *et al.*, 1988).

Différents indices ont été élaborés, afin de pouvoir quantifier la toxicité due à l'aluminium. L'indice le plus souvent utilisé dans les écosystèmes forestiers est le rapport Ca/Al des solutions du sol. Cet indice ne semble toutefois pas adapté à l'ensemble des conditions rencontrées. Dans un premier temps, une analyse bibliographique des connaissances acquises sur la toxicité alumineuse nous permettra d'élaborer un indice qui prendra en compte l'ensemble des formes minérales, qui jouent un rôle important.

Nous essayerons ensuite de relier la toxicité alumineuse observée dans nos stations d'étude aux bilans des protons calculés à partir des flux d'azote et de soufre précédemment définis.

L'acidification saisonnière du sol conduit à la solubilisation d'aluminium, qui peut être toxique pour la végétation (SEALIN 1973 ; KINORADIN et PARKER 1989). Ceci a conduit différents auteurs à attribuer, au moins en partie, le déclin saisonnier forestier à ce type de toxicité (ROST-SIEBERG 1983 ; HITTENKAMP et FRICK 1984 ; GOSWOLD et al. 1987).

Différents indices ont été élaborés, afin de pouvoir quantifier la toxicité due à l'aluminium. L'indice le plus souvent utilisé dans les études forestières est le rapport Ca/Al des solutions du sol. Cet indice ne rend pas compte de l'ensemble des conditions rencontrées. Dans un premier temps, une analyse bibliographique des connaissances actuelles sur la toxicité aluminium nous permettra d'établir un index qui tienne compte l'ensemble des formes minérales qui jouent un rôle important.

Nous essaierons ensuite de relier la toxicité aluminium causée dans nos régions d'étude aux valeurs des indices calculés à partir des flux d'ions et de nous proposer

des

CHAPITRE I

LES PHENOMENES DE TOXICITE ALUMINEUSE VIS-A-VIS DES VEGETAUX

CHAPITRE I

LES PHÉNOMÈNES DE TOXICITÉ ALIMENTAIRE
VIT-A-LIS DES VÉGÉTAUX

LES PHENOMENES DE TOXICITE ALUMINEUSE VIS-A-VIS DES VEGETAUX

I.- LES FORMES DE L'ALUMINIUM ET LEUR TOXICITE

L'aluminium est un constituant majeur des sols, où il est présent sous forme d'aluminosilicates. En conditions acides, ces minéraux tendent à être solubilisés et l'aluminium est libéré dans la solution du sol. Il peut alors être présent sous forme de différentes espèces chimiques. Les espèces possibles peuvent être rassemblées en quatre ou cinq grands groupes :

- l'aluminium monomérique qui regroupe Al^{3+} , $\text{Al}(\text{OH})^{++}$, $\text{Al}(\text{OH})_2^+$, $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ (présent en quantités significatives uniquement à pH alcalin), AlSO_4^+ , $\text{Al}(\text{SO}_4)_2^-$, AlF^{2+} , AlF_2^+ , AlF_3 , AlF_4^- , AlF_5^{2-} , AlF_6^{3-} , AlPO_4^+ (négligeable à l'état dissous);

- l'aluminium organique (complexé aux composés organiques de la solution du sol) ;

- l'aluminium polymérique constitué de polymères de différentes tailles, parmi lesquels le polymère Al_{13} s'individualise par une structure très particulière ;

- l'aluminium colloïdal ($\text{Al}(\text{OH})_3$ amorphe dispersé dans la solution du sol) ;

- il faut sans doute concevoir également l'existence d'associations Al-Si monomériques et polymériques. La démonstration de leur existence dans les eaux gravitaires des sols reste néanmoins à établir.

Dans les sols acides, l'aluminium semble être un facteur majeur de toxicité vis à vis des plantes. L'acidité en tant que telle paraît en effet être beaucoup moins néfaste aux végétaux que l'aluminium (SEGALEN, 1973). En particulier, les protons ne semblent être toxiques vis à vis des conifères qu'en dessous de pH 3 ou 4 (RYAN *et al.*, 1986a). La toxicité due au manganèse peut également s'ajouter à celle de l'aluminium, notamment dans les sols en voie d'acidification (HOYT et NYBORG 1971; KAZDA et ZVACEK, 1989).

La phytotoxicité de l'aluminium dans les sols drainés, connue depuis plus de soixante dix ans (HARTWELL et PEMBER, 1918 *in* KINRAIDE et PARKER, 1989), est actuellement le sujet de nombreux travaux qui cherchent à évaluer la toxicité relative des différentes espèces.

Un consensus assez large a été établi pour affirmer que Al^{3+} est toxique (PAVAN *et al.*, 1982 ; CAMERON *et al.*, 1986 ; HUE *et al.*, 1986 ; TANAKA *et al.*, 1987 ; WRIGHT *et al.*, 1987 ; PARKER *et al.*, 1988). $Al(OH)^{2+}$ et $Al(OH)_2^+$ sont également considérés comme toxiques, alors que les complexes Al-F, Al-SO₄, Al-PO₄ et probablement Al-Si ne le sont pas ou ne le sont que très peu (PAVAN *et al.*, 1982 ; CAMERON *et al.*, 1986 ; KINRAIDE et PARKER 1987a ; TANAKA *et al.*, 1987 ; NOBLE *et al.*, 1988a et b). L'unanimité n'est toutefois pas faite sur cette question. Ainsi, il est possible que les monocotylédones ne soient pas sensibles à $Al(OH)_n$ mais le soient à Al^{3+} , et l'inverse pourrait être vrai dans le cas des dicotylédones (KINRAIDE et PARKER, 1989a, 1990). Al-SO₄ est par ailleurs considéré comme toxique par de rares auteurs, bien que les arguments avancés ne soient pas probants (JOSLIN et WOLFE, 1988).

L'Aluminium organique est généralement considéré comme n'étant pas toxique (MATTSON et HESTER, 1933 ; BROGAN, 1964 ; BARLETT et RIEGO, 1972a ; HOYT et TURNER, 1975 ; ROST-SIEBERT, 1983 ; HUE *et al.*, 1986 ; TAN et BINGER, 1986). Les acides organiques les plus complexants lèvent en outre une toxicité alumineuse préexistante pourvu qu'une concentration suffisante en calcium ait empêché l'aluminium de trop pénétrer dans les racines (OWNBY et POPHAM, 1989). Il convient toutefois de souligner que la complexation favorise l'absorption et que l'aluminium soluble complexé est aussi facilement absorbé par les racines, ou même davantage, que l' Al^{3+} (Mc LEAN et GILBERT, 1927 ; VAN PRAAG et WEISSEN, 1985 ; HARGROVE, 1986 ; GOH *et al.*, 1986 ; JOSLIN et WOLFE, 1989 ; ARP et STRUCCEL, 1989). Selon ARP et OUMET (1986), l'aluminium organique complexé à des acides organiques non colloïdaux (acides citriques, oxaliques,.... etc) est absorbé par les racines, alors que celui associé aux acides organiques colloïdaux (acides fulviques, acides humiques) ne l'est pas. Cet aluminium organique ainsi absorbé par les racines est considéré comme toxique vis à vis de certaines espèces culturales comme le maïs (Mc LEAN et GILBERT, 1927 ; HARGROVE, 1986), mais ne paraît pas l'être vis à vis du chêne rouge, du hêtre et de l'épicéa (VAN PRAAG et WEISSEN, 1985 ; VAN PRAAG *et al.*, 1985 ; JOSLIN et WOLFE, 1989).

En ce qui concerne l'aluminium polymérique, il y a encore peu de données précises quand à son existence réelle dans les solutions des sols. Le problème est d'importance car certains polymères ne sont pas toxiques alors que d'autres le sont. L' Al_{13} paraît être le seul polymère toxique. Il paraît pénétrer préférentiellement et s'accumuler dans les racines (BARLETT et RIEGO, 1972b ; WAGATSUMA et EZOE, 1985 ; WAGATSUMA et KANEKO, 1987 ; PARKER *et al.*, 1988a, 1989), inhiberait leur croissance en détruisant le plasmalemmes des cellules et serait plus toxique que les monomères. Les espèces tolérantes à l'aluminium monomérique ne sont pas tolérantes à l' Al_{13} (PARKER *et al.*, 1989). Il n'est en fait pas certain que des polymères alumineux soient présents dans les solutions du sol, car il sont susceptibles de s'adsorber sur les sites anioniques (BROWN et NEWMAN, 1973; BACHE et SHARP, 1976) des argiles et de la matière organique, mais également sur ceux des racines (PARKER *et al.*, 1988a; ZELAZNY et JARDINE, 1989). Il se pourrait encore qu'il existe une phase de polymères solubles en équilibre avec une phase adsorbée

En ce qui concerne plus particulièrement l' Al_{13} , son existence dans les sols est improbable car :

- il semble s'agir d'un artefact de synthèse trop rapide (BERTSH, 1987) ;
- l' Al_{13} est un polymère instable qui disparaît progressivement au cours du vieillissement des solutions au profit de polymères plus gros (DENNEY et HSU, 1986) ou de bayerite (BOTTERO *et al.*, 1987 ; BOTTERO et BERSILLON, 1989) ;
- les ions SO_4^{2-} inhibent la formation d' Al_{13} (FEDOTOV *et al.*, 1977) ;
- les ions PO_4^{2-} précipitent les polymères alumineux (BARLETT et RIEGO, 1972b) et en particulier l' Al_{13} (PARKER *et al.*, 1989) ;
- plus généralement, les polymères s'adsorbent facilement sur les surfaces négatives des colloïdes des sols.

II.- LES EFFETS DE L'ALUMINIUM SUR LA VEGETATION

1.- MECANISMES D'ACTION ET CONSEQUENCES DE LA TOXICITE ALUMINEUSE

Divers mécanismes interviennent dans les phénomènes de toxicité liés à l'aluminium, que l'on peut regrouper en deux grands groupes :

- un premier groupe englobe des dérèglements physiologiques multiples, qui provoquent une inhibition de la division des cellules méristématiques des racines et induisent une diminution ou un arrêt de l'élongation et de la ramification de ces dernières. Divers mécanismes sont impliqués à ce niveau. Des liaisons se forment entre l'aluminium et l'ADN, inhibent la réplication de celui-ci et par conséquent perturbent les mitoses cellulaires (MATSUMOTO *et al.*, 1977 ; SCHAEDELE *et al.*, 1989). L'aluminium inhibe également la synthèse des cytokinines par l'apex des racines principales et leur translocation vers les racines secondaires. Une application de cytokinines supprime la toxicité alumineuse (PAN *et al.*, 1989). Ces interactions provoquent des nécroses cellulaires et limitent les possibilités d'exploration du sol par le système racinaire pour prélever les éléments nutritifs et l'eau (PAN *et al.*, 1989; GRIMME et LINDAUER, 1989; ARP et STRUCCEL, 1989).

- un second groupe est constitué des phénomènes d'interaction existant entre l'absorption des éléments minéraux essentiels et l'aluminium, qui conduisent à une diminution du prélèvement des nutriments. L'aluminium inhibe l'absorption du calcium et du magnésium (REHFEUSS, 1987; JOSLIN *et al.*, 1988; PAN *et al.*, 1989; GRIMME et LINDAUER, 1989; ARP et STRUCCEL, 1989) en raison d'une compétition entre Al, Ca et Mg pour les sites d'échange des parois cellulaires concernées. Seules certaines formes sont actives (Al^{3+} , $AlOH^{2+}$, $Al(OH)_2^{+}$). Il ne semble pas que l'absorption du potassium soit inhibée par les formes toxiques de l'aluminium, bien que des contradictions existent à ce sujet (ROY *et al.*, 1988; PETTERSSON et STRID, 1989). Des problèmes de ce type ont également été mentionnés pour certains oligo-éléments tels que le cuivre, le zinc, ou le fer (ROY *et al.*, 1988). Une inhibition de l'utilisation des anions par les plantes peut également avoir lieu. L'accumulation d'aluminium dans les racines provoque aussi la précipitation des phosphates dans celles-ci ce qui peut conduire à des carences au niveau des parties aériennes (SCHAEDELE *et al.*, 1989).

In situ, des concentrations en aluminium insuffisantes pour inhiber la croissance des racines sont néanmoins capables d'inhiber l'absorption de Ca et Mg si ces éléments sont en

faible concentration dans les solutions du sol, et de provoquer des carences au niveau des feuilles (jaunissement).

2.- LA TOLERANCE DES VEGETAUX VIS-A-VIS DE L'ALUMINIUM

La réponse de la végétation à la présence d'aluminium peut être très variable en fonction des conditions du milieu et de la physiologie des espèces :

- la composition chimique et le pH de la solution du sol a un rôle très important. Ca^{2+} et Mg^{2+} , et accessoirement K^+ et Na^+ , combattent la toxicité de l'aluminium chez toutes les espèces étudiées sous cet angle ($\text{Ca}^{2+} \geq \text{Mg}^{2+} \gg \text{K}^+ = \text{Na}^+$), du fait d'une meilleure nutrition minérale des végétaux et d'une décroissance de l'activité de Al^{3+} (RHUE et GROGAN, 1977 ; HECHT-BUCHHOLZ, 1983 ; TANAKA *et al.*, 1987 ; KINRAIDE et PARKER, 1987b ; HECHT-BUCHHOLZ et SCHUSTER, 1987 ; HECHT-BUCHHOLZ *et al.*, 1987). Les anions, tels que SO_4^{2-} , PO_4^{2-} et F^- contribuent par ailleurs à faire baisser la toxicité alumineuse en favorisant la formation d'espèces solubles peu ou pas toxiques ($\text{Al}(\text{SO}_4)_n$ ($n = 1$ ou 2), phosphates d'aluminium peu ou pas solubles, AlF_n ($n = 1$ à 6)) au détriment des espèces les plus toxiques. La matière organique a également un rôle important. L'aluminium organique est en effet considéré comme peu toxique, même dans les cas où il pénètre dans les racines et s'accumule dans le cortex racinaire. Dans ce contexte, on soulignera l'action protectrice des exsudats racinaires, qui complexent l'aluminium et l'empêchent d'atteindre les méristèmes (HORST *et al.*, 1982). Ce mécanisme est l'un de ceux par lesquels une espèce peut devenir résistante à l'aluminium. Enfin une élévation du pH favorise la formation de polymères alumineux, souvent peu toxiques.

- pour une composition chimique analogue, la réponse de la végétation à la présence d'aluminium peut être très variable selon les espèces (SCHAEDELE *et al.*, 1989). Moins de $1\mu\text{M/l}$ peut-être toxique pour certaines plantes sensibles alors qu'il faut $800\text{-}1200\mu\text{M/l}$ d'aluminium, en solution nutritive, pour inhiber la croissance de jeunes pousses d'épicéa (*Picea abies* L.) à plus de 90% (GODBOLD *et al.*, 1988). Les cultivars ou l'âge des plantes peuvent également avoir un rôle important. Cette variabilité de la tolérance peut s'expliquer par l'existence de mécanismes physiologiques permettant de limiter l'action de l'aluminium. Certains cultivars tolérant de blé, d'orge ou de maïs augmentent le pH de la solution nutritive et, de ce fait, font diminuer la solubilité et la toxicité de l'aluminium (FOY *et al.*, 1978, *in* ROY *et al.*, 1988). Cette différence de pH au niveau de la rhizosphère peut-être attribuée à la différence d'absorption des cations et des anions (ROY *et al.*, 1988). La capacité de certaines espèces à absorber l'azote sous forme nitrique plutôt que sous forme ammoniacale augmente par exemple leur résistance vis à vis de l'aluminium (ROY *et al.*, 1988 ; NEITZKE, 1990). Certaines espèces sont capables

de ne pas absorber l'aluminium (cas de certains cultivars de blé, orge, soja...). D'autres sont capables de le stocker sous des formes non toxiques (polymères, complexes organo-alumineux ou phospho-alumineux) soit dans les racines (azalée, riz...), soit dans les parties aériennes (thé, pin...). Cet aluminium s'accumule alors dans des inclusions cellulaires où il n'est pas nuisible à la plante.

III.- EVALUATION DE LA TOXICITE - LES INDICES DE TOXICITE

La mesure des teneurs en aluminium dans les racines ou les parties souterraines des végétaux n'est pas suffisante pour évaluer le risque de toxicité dû à cet élément. En effet, bien que les quantités d'aluminium totales présentes dans les racines fines des horizons B soient bien corrélées aux quantités d'aluminium total ou monomérique présentes dans les solutions du sol, ainsi qu'à l'aluminium extractible du sol par SrCl_2 0,01 M (JOSLIN *et al.*, 1988), une forte proportion de l'aluminium des racines provient de processus non métaboliques (liaisons avec les parois des tissus, précipitation avec les phosphates), n'est pas échangeable, s'accumule au niveau des cellules corticales des racines et n'est pas toxique. Seul l'aluminium qui s'adsorbe ou pénètre au niveau du méristème exerce une action toxique (McCORMICK et BORDEN, 1972 ; WAGATSUMA, 1983). De ce fait la toxicité alumineuse n'est pas corrélée à la teneur des racines en aluminium total.

La mesure de l'aluminium du sol n'est pas davantage utilisable, car la partie active est contenue dans la phase aqueuse du sol.

Différents indices, plus ou moins élaborés, ont été proposés afin de rendre compte des problèmes de toxicité. Ils sont généralement étalonnés sur les modifications affectant la longueur des racines ou la productivité racinaire, la réduction de la biomasse foliaire n'étant qu'une réponse secondaire pas toujours très nette à la toxicité alumineuse.

1.- LA COMPARAISON DE LA SENSIBILITE DES ESPECES VEGETALES A L'ALUMINIUM.

Une première façon d'appréhender la toxicité due à l'aluminium consiste à classer les espèces végétales en fonction de leur sensibilité à des doses croissantes en cet élément (SCHAEDLE *et al.*, 1989). On distingue ainsi :

- des espèces dites sensibles à l'aluminium, qui sont celles qui ont une croissance modifiée par des teneurs en aluminium $\leq 150 \mu\text{M/l}$ dans les solutions nutritives ou dans les eaux des sols. Les feuilles et les racines sont endommagées, l'apex des racines vire au brun et est boursoufflé, le méristème n'est plus fonctionnel et la croissance des racines est inhibée, les feuilles sont carencées en Ca et Mg. Chez ces espèces, les "pics" de concentration en aluminium inhibent durablement la croissance des racines, car il faut attendre la reconstitution de nouvelles zones de croissance. C'est le cas de l'épicéa d'Europe et de l'épicéa blanc.

- les espèces intermédiaires sont celles qui ont une croissance modifiée par des teneurs en aluminium comprises entre 150 et $800 \mu\text{M/l}$. Les racines ne paraissent pas endommagées, et l'aluminium n'affecte que la longueur des racines et/ou des parties aériennes. Chez ces espèces, les "pics" de concentration en aluminium n'affectent que temporairement la croissance de la plante, car les zones responsables de la croissance des racines ne sont pas détruites mais simplement inactivées. C'est le cas des épicéas rouges et noirs, du hêtre et de l'érable à sucre.

- Les espèces dites tolérantes à l'aluminium sont celles qui ont une croissance modifiée par des teneurs en aluminium $\geq 800 \mu\text{M/l}$ (pin weymouth, pin sylvestre, épicéa sitka, sapin douglas, sapin baumier, chêne rouge, hêtre américain, bouleau blanc).

Cette classification est sans doute vraie pour des milieux très pauvres en nutriments. Une espèce donnée est cependant plus ou moins tolérante à l'aluminium en fonction du pH et de la richesse du milieu en nutriments, notamment en Ca et Mg. La notion de seuil de tolérance basée uniquement sur l'aluminium n'a en fait pas de sens pour la plupart des espèces étudiées jusqu'ici [sauf pour l'épicéa rouge (HUTCHINSON *et al.*, 1986 ; THORNTON *et al.*, 1987 ; JOSLIN *et al.*, 1988)].

2. LE RAPPORT Ca/Al

Certains auteurs ont donc préféré élaborer des indices de toxicité se référant à la composition chimique de la solution du sol plutôt que sur le seul aluminium. Pour ROST-SIEBERT (1983), HÜTTERMANN et ULRICH (1984) et MURACH (1984), le meilleur indice de toxicité est le rapport Ca/Al des solutions du sol, du moins en ce qui concerne la croissance des racines. Dans le cas de l'épicéa d'Europe, l'aluminium soluble serait toxique pour des valeurs de ce rapport inférieures à 2-4 (ROST-SIEBERT, 1983 ; HÜTTERMANN et ULRICH, 1984 ; MURACH, 1984 ; ASP *et al.*, 1988). Les dégâts sont implicitement considérés comme restant tolérables pour des rapports Ca/Al > 1 . Une importante mortalité des racines se produit lorsque le rapport Ca/Al devient inférieur à 0,2. Il est toutefois indispensable de tenir compte du magnésium (HECHT-BUCHHOLZ *et al.*, 1987), dont l'effet bénéfique est pratiquement égal à

celui du calcium. Les données présentées par ROST-SIEBERT (1983), HUTTERMANN et ULRICH (1984) montrent par ailleurs que le rapport Ca/Al n'est utilisable que vers pH 4 et en absence d'aluminium organique. Pour des pH voisins de 5 ou en présence de matière organique complexante, il n'y a pas de toxicité alumineuse quel que soit le rapport Ca/Al. Il est donc évident qu'il est nécessaire de ne prendre en compte les formes sous lesquelles cet aluminium est présent, afin de ne prendre en compte que les formes toxiques. La force ionique des solutions du sol ou des milieux de culture agit également sur les seuils d'aluminium tolérables (ADAMS et MOORE, 1983 ; ADAMS et HATHCOCK, 1984). Plus la force ionique d'une solution sera élevée, plus l'activité des ions sera faible et moins une concentration donnée d'aluminium sera toxique, ce qui suggère que c'est plus l'activité des ions que leur concentration qui régule leur toxicité. Les corrélations observées entre la composition des solutions et la croissance racinaire sont en fait toujours meilleures lorsqu'elles prennent en compte la première de ces deux grandeurs plutôt que la seconde (PAVAN et BINGHAM, 1982 ; PAVAN et al., 1982 ; ADAMS et LUND, 1966 ; THORNTON et al., 1987 ; BRENES et PEARSON, 1973 ; KINRAIDE et PARKER, 1989).

3. LE CAB (CALCIUM-ALUMINIUM BALANCE)

Le CAB (NOBLE *et al.*, 1988a ; NOBLE et SUMNER, 1988) constitue l'indice de toxicité le plus élaboré à l'heure actuelle :

$$\text{CAB} = (2\log\{\text{Ca}^{2+}\}) - (3\log\{\text{Al}^{3+}\} + 2\log\{\text{Al}(\text{OH})^{2+}\} + \log\{\text{Al}(\text{OH})_2^+\})$$

Il est fondé sur la croissance racinaire et utilise les activités en moles/l des différentes espèces de l'aluminium monomérique soluble. Il reste toutefois encore imparfait car il n'envisage ni le rôle compensateur de Mg^{2+} , ni la toxicité des polymères Al_{13} , dont la toxicité est extrêmement prononcée. En l'absence de polymères Al_{13} , nous proposons de lui substituer un indice amélioré :

$$\text{CAB}^* = (2\log\{\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}\}) - (3\log\{\text{Al}^{3+}\} + 2\log\{\text{Al}(\text{OH})^{2+}\} + \log\{\text{Al}(\text{OH})_2^+\})$$

Dans l'échelle établie par NOBLE et al. (1988b) et NOBLE et SUMNER (1988) pour le soja, plante particulièrement sensible à l'aluminium, à une valeur du CAB $\leq 18-19$ correspond une inhibition de 100% de la croissance racinaire, à une valeur de 22 une inhibition de 80%, à une valeur de 24,7 une inhibition de 50% et à des valeurs voisines ou supérieures à 29 une bonne croissance racinaire. Cet indice n'est toutefois pas étalonné pour d'autres espèces. En l'état des connaissances et d'après les données de HECHT-BUCHHOLZ (1987) il est inapplicable à la croissance racinaire chez l'épicéa, qui est beaucoup moins sensible à l'aluminium que le soja.

4. PROPOSITION D'UN INDICE DE TOXICITE ADAPTE AUX ECOSYSTEMES FORESTIERS TEMPERES

En l'état actuel des connaissances, une manière acceptable de se rapprocher des données obtenues avec les résineux consiste à modifier l'indice Ca/Al de façon i) à ne prendre en compte que les formes toxiques de l'aluminium, ii) à prendre en considération l'effet du magnésium, et iii) à utiliser les activités à la place des concentrations. On peut en outre chercher à attribuer à chacune des espèces toxiques ou bénéfiques un coefficient, fondé sur sa charge, susceptible de rendre compte de l'intensité de l'effet qu'elle développe (BENNET *et al.*, 1987 ; NOBLE *et al.*, 1988a, 1988b ; NOBLE et SUMNER, 1988). Si l'on admet l'absence de polymères Al_{13} dans les eaux analysées, on obtient l'expression suivante :

$$I_{tox} = \frac{2\{Ca^{2+}\} + 2\{Mg^{2+}\}}{(3\{Al^{3+}\} + 2\{Al(OH)^{2+}\} + \{Al(OH)_2^+\})}$$

où { } dénote l'activité des ions (voire Annexe II, pour la méthode de calcul).

C'est cet indice que nous utiliserons.

Comme pour le rapport Ca/Al, la valeur 1 peut-être prise comme une valeur seuil pour I_{tox} (la valeur 1 est égale au seuil d'acceptation des dégâts pour l'épicéa).

CHAPITRE II

EVALUATION DE LA TOXICITE ALUMINEUSE DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

CHAPTER II

EVALUATION DE LA TOXICITE ALUMINIQUE DANS LES PEUX REACTIVITES HUMAINES

EVALUATION DE LA TOXICITE ALUMINEUSE DANS LES DEUX ECOSYSTEMES FORESTIERS

I. METHODOLOGIE

A partir des concentrations des percolats recueillis par les plaques lysimétriques, pour chaque date et aux différentes profondeurs de prélèvement, nous avons calculé l'indice de toxicité (I_{tox}) proposé ci-dessus. Les concentrations des différents éléments ont été mesurées par les techniques présentées dans la deuxième partie de ce travail. Le calcul des concentrations des différentes espèces d'aluminium a été effectué par l'utilisation du programme ALCHEMI (SCHECHER et DRISCOLL, 1987).

Les calculs portent sur les teneurs totales de chacun des ions présents dans les solutions du sol. En toute rigueur, la teneur en aluminium à prendre en compte n'aurait dû être que l'aluminium monomérique. La présence d' Al_{13} est peu probable en raison des fortes concentrations en sulfates des solutions. Nous avons également vérifié occasionnellement qu'il n'était pas détectable par R.M.N. de l'aluminium 27 sur quelques échantillons. Nous admettons donc l'absence de ce polymère dans la totalité des eaux analysées. De plus, l'indice de saturation des eaux analysées par rapport à $Al(OH)_3$ amorphe étant toujours négatif ou nul (Tableau IV.1. et IV.2.), on peut admettre que ces eaux sont dépourvues de polymères d'aluminium. Dans le cas des solutions riches en matière organique, les constantes d'équilibre utilisée par défaut par le programme ALCHEMI peuvent ne pas être représentatives de celles de la matière organique hydrosoluble des sols. La proportion de carbone engagée dans des fonctions complexantes est en outre fixée à 43 % du carbone total, ce qui peut ne pas être applicable à la matière organique des eaux gravitaires de nos sols. Il est donc possible que le programme ALCHEMI surestime l'aluminium organique. Les solutions de nos deux stations sont toutefois généralement pauvre en carbone organique, notamment en profondeur, ce qui limite ce problème.

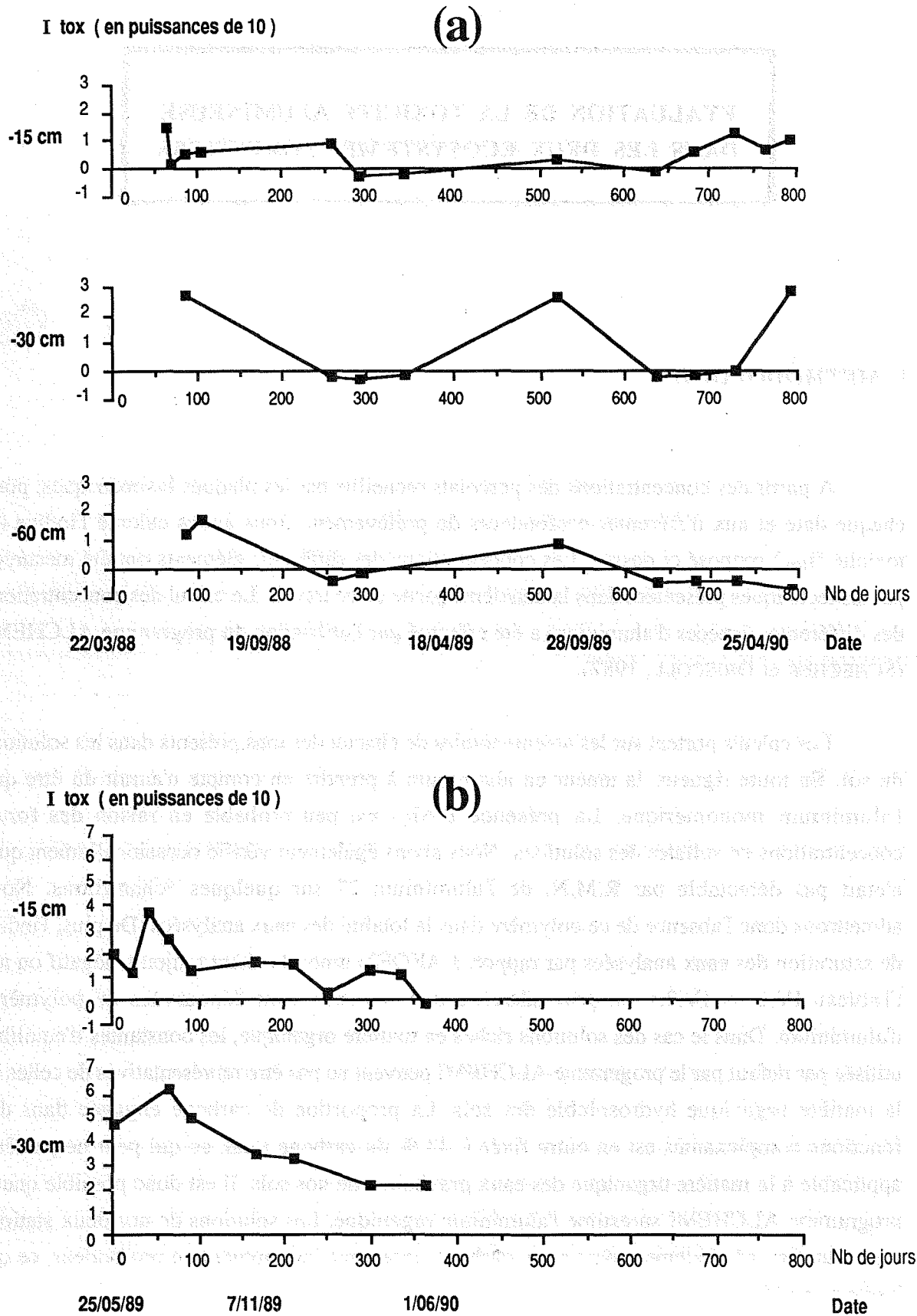


Figure V.1.- Variations de l'indice de toxicité (Itox) au cours du temps et à différentes profondeurs dans les stations du Haut-jacques (a) et de La Chipotte (b).

II.- RESULTATS

Les résultats de cette étude sont présentés dans les tableaux IV.1. et IV.2. et la figure V.1.

Dans le cas de la sapinière saine, les valeurs prises par cet indice sont toujours élevées ($I_{tox} < 1$ uniquement le 25/05/90 à -15 cm), ce qui indique qu'il n'y a pratiquement jamais de risques de toxicité alumineuse dans cette station. Il faut toutefois considérer ces résultats avec précaution, car il semble exister un artefact au niveau du pH. Le pH des premières solutions récoltées paraît en effet anormalement élevé (de l'ordre de 7 à 8), compte tenu des caractéristiques physico-chimiques du sol (pH 4 pour l'horizon A₁). Il diminue ensuite progressivement au cours du temps, pour atteindre des valeurs de l'ordre de 4 à 4,5 à 15 cm de profondeur à la fin de la période d'étude. A cette occasion, I_{tox} est également petit ($I_{tox} = 0,7$).

Dans la sapinière déperissante par contre, les valeurs sont très généralement inférieures à 1 au cours des deux hivers sur lesquels cette étude a porté, sauf lorsque les eaux sont riches en carbone (ce qui est rare). Le risque de toxicité est donc important en hiver dans cette localité. On pourrait penser que cette toxicité n'affecte pas la végétation, car celle-ci est normalement en sommeil à cette époque. On doit cependant songer que les plantes se réveillent au printemps dans une ambiance peu favorable susceptible de provoquer des dommages.

Pendant la période d'activité de la végétation, les valeurs prises par cet indice sont toujours supérieures à 1 et varient de 1,4 à 714. On peut en déduire qu'à cette période la toxicité alumineuse est faible ou nulle.

III.-DISCUSSION

1.- COMPARAISON AVEC LE CAB* ET LE Ca/Al

Les indices CAB* et I_{tox} utilisant les mêmes données, les résultats obtenus avec ces deux indices sont bien corrélés entre eux, suivant un modèle exponentiel ($r^2 = 0,86$ et $0,92$ respectivement pour les données du Haut-Jacques seules et pour l'ensemble des deux stations). Il n'existe pas, par contre, de corrélation significative entre le rapport Ca/Al, qui n'utilise que des données imparfaites, et I_{tox} , qui cherche à prendre en compte la totalité des facteurs

importants ($r^2 = 0,74$ avec un modèle linéaire pour la station du Haut-Jacques et $0,67$ pour l'ensemble des deux stations ; avec un modèle exponentiel, $r^2 = 0,35$ et $0,54$).

Ces résultats montrent qu'un index CAB amélioré par la prise en compte du magnésium (CAB*) peut-être utilisé indifféremment avec notre propre indice pour évaluer la toxicité alumineuse des solutions du sol. Le seuil de toxicité pour le CAB* correspondant à $I_{tox} = 1$ est égal à $20,89$ d'après notre équation de corrélation. Cette valeur est proche de celle provoquant environ 80 à 100% d'inhibition de la croissance des racines de soja avec le CAB (NOBLE *et al.* 1988b ; NOBLE et SUMNER, 1988). Le rapport Ca/Al, par contre, donne des résultats notablement différents, notamment en présence de carbone organique, et ne peut donc pas être validé.

2. CAUSES DE LA TOXICITE ALUMINEUSE

Un indice de toxicité inférieur à 1 a été observé dans la station dépérissante, au cours des deux hivers successifs. Ceci met en évidence l'existence de phases hivernales d'acidification, marquées par la libération d'aluminium soluble et/ou par le passage de formes d'aluminium non toxiques vers des formes toxiques. Ces épisodes saisonniers d'acidification peuvent provenir soit d'une augmentation des apports atmosphériques acides, soit d'une modification des flux internes de l'azote et du soufre.

Pour chaque période de mesure par incubation *in situ* des flux de nitrates et de sulfates, nous avons établi un bilan partiel de protons suivant la méthodologie suivante (Tableau V.I.) :

- les apports par les pluviollessivats ont été calculés en multipliant la concentration moyenne en protons de la période considérée par le volume des pluviollessivats (qui est égale au volume des précipitations diminué d'une interception de 20% en automne et en hiver, de 30% au printemps et en été),
- les exportations par lixiviation ont été calculées de la même façon, en multipliant la concentration en protons par le drainage théorique (calculé à partir de la formule $D = P - ETP$),
- la production de protons par les cycles internes du soufre et de l'azote a été obtenue à partir de la différence entre la production de NO_3^- ou de SO_4^{2-} (processus acidifiant) et la consommation par la végétation (processus alcalinisant), et en multipliant ce terme par la valence de l'ion considéré. Dans le cas de SO_4^{2-} , son adsorption sur les surfaces négatives du sol est également un processus alcalinisant.

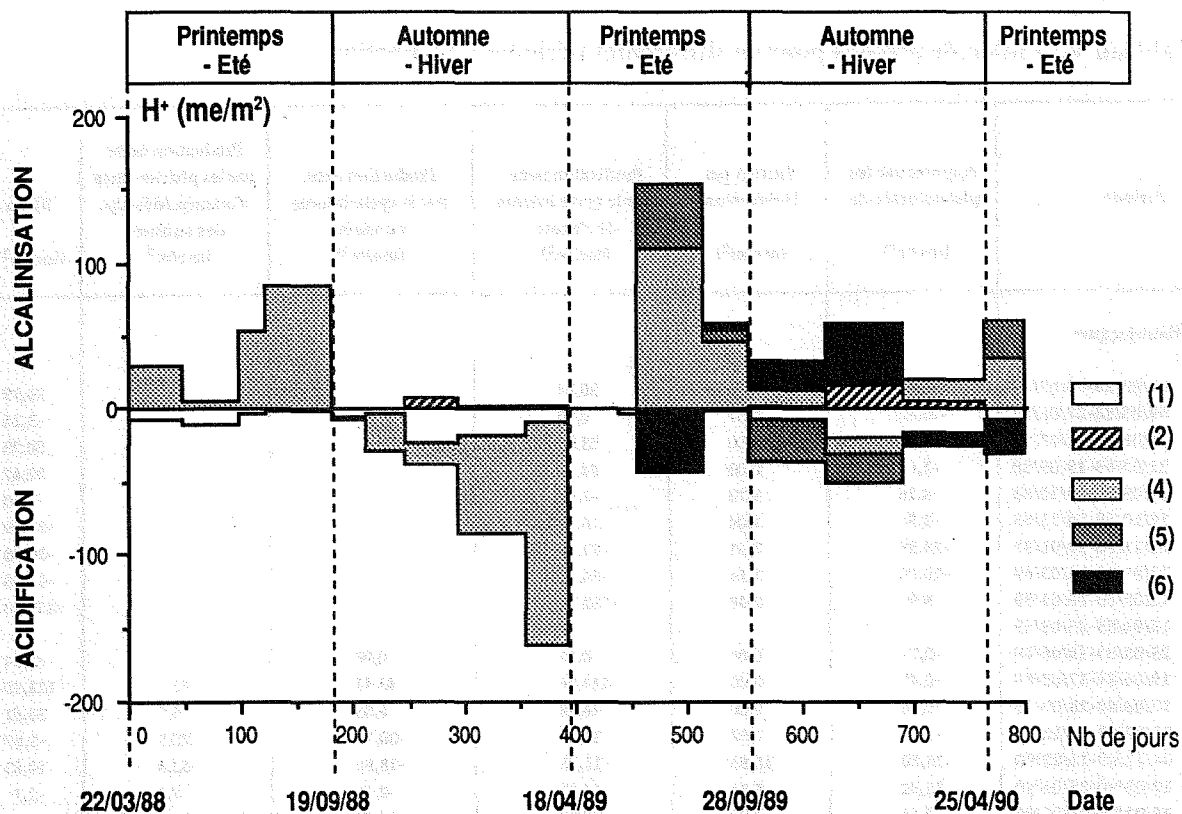
Chaque terme a été affecté d'un signe positif (alcalinisation nette) ou négatif (acidification nette).

Tableau V.I.- Bilan de protons pour les différentes périodes d'incubation.

Période	Apports par les pluiolessivats (me/m ²)	Sorties par lixiviation (me/m ²)	Production nette par le cycle interne de l'azote (me/m ²)	Production nette par le cycle interne du soufre (me/m ²)	Production nette par les phénomènes d'adsorp./désorp. des sulfates (me/m ²)	Bilan (me/m ²)
Haut-Jacques						
22/03/88-09/05/88	-6,09	0,74	30,14			24,79
09/05/88-27/06/88	-10,40	0,37	6,79			-3,24
21/06/88-21/07/88	-3,51	0,00	53,76			50,25
21/07/88-19/09/88	-1,62	0,00	84,09			82,47
19/09/88-19/10/88	-4,16	1,70	-2,64			-5,10
19/10/88-24/11/88	-2,58	1,04	-26,05			-27,59
24/11/88-10/01/89	-23,19	7,31	-14,50			-30,38
10/01/89-13/03/89	-18,05	3,16	-66,69			-81,58
13/03/89-18/04/89	-8,92	2,40	-153,28			-159,80
18/04/89-25/05/89						
25/05/89-19/06/89	-2,77	0,00	0,43	0,00		-2,34
19/06/89-17/08/89	-0,47	0,00	111,26	43,11	- 42	111,90
17/08/89-28/09/89	-0,16	0,00	46,14	6,83	5,7	58,51
28/09/89-04/12/89	-6,03	2,57	11,49	-30,19	20,5	-1,67
04/12/89-12/02/90	-18,80	16,93	-11,95	-18,86	43,3	10,63
12/02/90-25/04/90	-15,92	6,34	14,91	-0,63	7,4	-2,7
25/04/90-01/06/90	-6,66	0,00	35,28	26,53	-22,7	32,45
La Chipotte						
25/05/89-26/06/89	-0,04	0,00				
26/06/89-25/08/89	-11,33	0,00	8,91	14,89	-14,9	-2,43
25/08/89-07/11/89	-12,30	0,00	34,24	-22,2	14,5	14,24
07/11/89-12/01/90	-2,24	0,01	22,89	0,74	-1,2	20,29
12/01/90-21/03/90	-5,11	0,02	-7,97	-27,06	25	-15,94
21/03/90-01/06/90	-11,08	0,00	-4,81	22,19	-15,2	-8,9

L'analyse des différentes composantes du bilan (Figures V.2. et V.3.) montre que les apports atmosphériques de protons sont continus tout au long de l'année sur les deux écosystèmes. Ces apports sont toutefois beaucoup plus importants en hiver et au printemps qu'en été et en automne, du fait d'une pluviométrie généralement plus élevée et d'une concentration en protons également plus importante.

La lixiviation des protons est, par contre, pratiquement nulle. En été, l'absence de drainage climatique rend impossible toute lixiviation. En hiver, malgré un drainage important, les protons sont échangés au cours de leur transit contre les éléments échangeables du sol (Ca, Mg, K, Al, Mn), ce qui fait que leur exportation reste très faible.



	ÉTÉ	HIVER	ÉTÉ	HIVER	ÉTÉ
(1) : Apports par les pluviollessivats (en me/m²)	-21,6	-56,9	-3,4	-40,8	-6,7
(2) : Sorties par lixiviation	1,1	15,6	0	25,8	0
Différence entrées - sorties	-20,5	-41,3	-3,4	-15	-6,7
(3) : Production nette par le cycle interne de l'azote	174,8	-263,2	157,8	14,5	35,3
(4) : Production nette par le cycle interne du soufre			49,9	-49,7	26,5
(5) : Production nette par adsorption-désorption des sulfates			-42	56,4	-22,7
Total des productions internes	174,8	-263,2	165,7	21,2	39,1
Bilans saisonniers	154,3	-221,9	162,3	6,2	32,4
Bilan annuel	-67,6		200,9		

Figure V.2.- Evaluation quantitative des différentes sources de protons dans la station du Haut-Jacques. Bilans saisonniers et annuels.

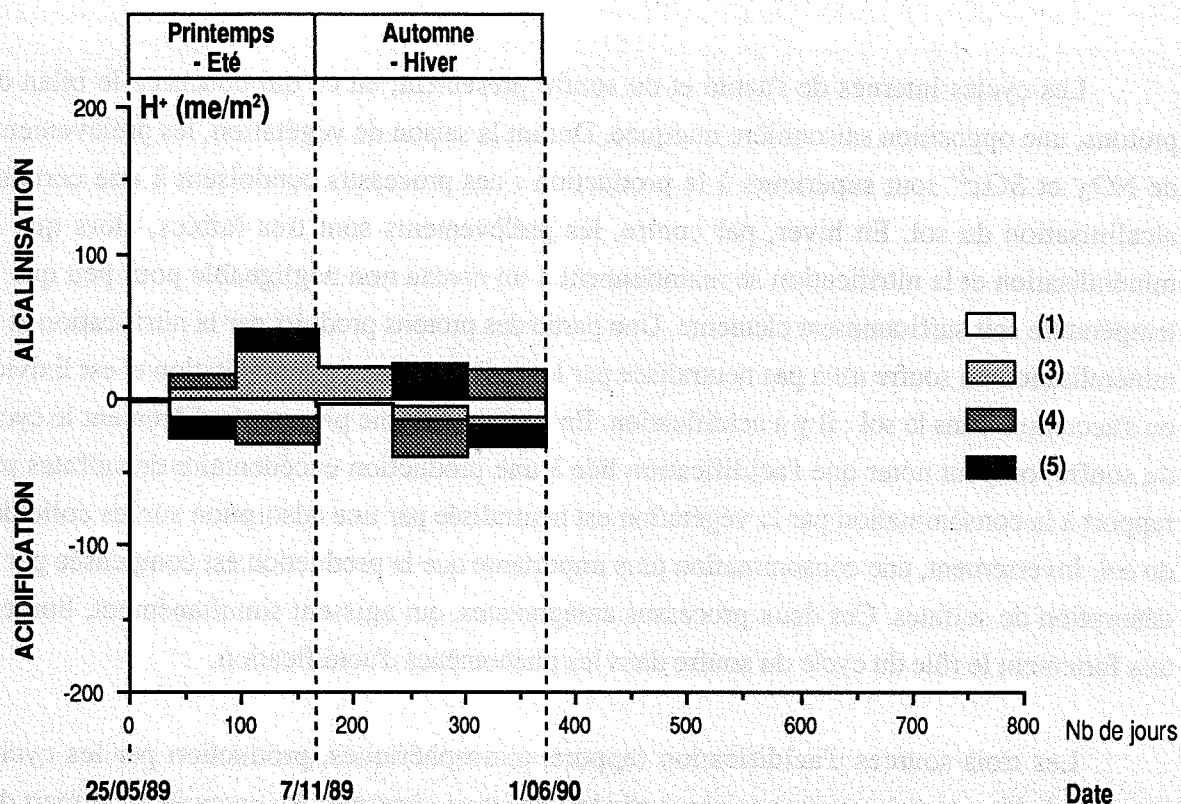
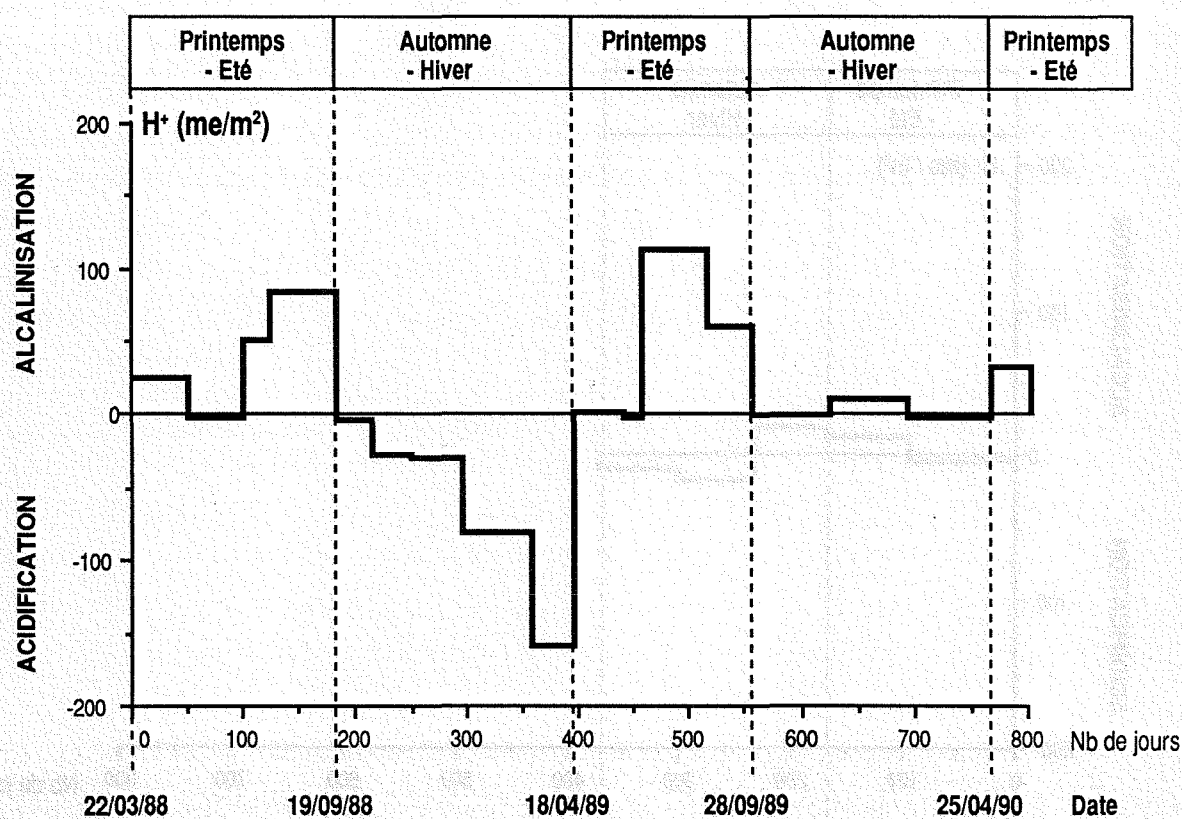


Figure V.3.- Evaluation quantitative des différentes sources de protons dans la station du Haut-Jacques. Bilans saisonniers et annuels.

Les cycles internes de l'azote et du soufre présentent, en ce qui concerne le bilan de protons, une opposition saisonnière marquée. Durant la saison de végétation, les prélèvements de NO_3^- et SO_4^{2-} sont supérieurs à la production : ces processus conduisent à une certaine alcalinisation du sol. En hiver, par contre, les prélèvements sont très faibles, alors que la minéralisation et la nitrification se maintiennent à un niveau non négligeable pour peu que la température soit suffisamment clémente. Une partie des protons produits par la nitrification et la minéralisation du soufre n'est pas neutralisée par les prélèvements de la végétation et est lixiviée ou s'accumule dans le sol : il y a acidification. En ce qui concerne plus particulièrement le cycle du soufre, on peut noter que l'acidification liée à une production excédentaire de sulfates par rapport à la consommation par la végétation est neutralisée par une adsorption sur les colloïdes du sol. Inversement, une consommation plus importante que la production est compensée par la désorption de sulfates. Ces deux processus antagonistes, qui agissent simultanément, limitent très fortement le rôle du cycle du soufre dans les phénomènes d'acidification.

Les trois sources d'acidification (apports atmosphériques, production par les cycles internes de l'azote et du soufre) agissent généralement en synergie. Au cours de la plupart des hivers, lorsque les apports externes sont maximum, les cycles internes de l'azote et du soufre tendent à induire une certaine acidification du milieu. En été, les apports atmosphériques sont réduits et les cycles internes de l'azote et du soufre tendent à provoquer une alcalinisation du milieu. Le bilan qui résulte de la variation de ces trois pools de protons présente donc une alternance d'alcalinisation (phase estivale) et d'acidification (phase hivernale).

Si l'on confronte les résultats du bilan de protons avec ceux de l'indice de toxicité (I_{tox}) (Figures V.4. et V.5.), on observe un parallélisme remarquable de leurs variations respectives au cours du temps : aux phases d'alcalinisation correspond un indice élevé, alors qu'aux phases d'acidification correspond généralement un indice de toxicité inférieur à 1. La diminution de la toxicité alumineuse que l'on observe en été peut être attribuée i) au déplacement des formes les plus toxiques de l'aluminium vers des formes plus hydroxylées, ceci étant contrôlé par le bilan de protons exposé précédemment ; ii) à la plus forte concentration en calcium, que l'on observe fréquemment en été. L'inverse se produit en hiver et le risque de toxicité est alors très important. Nos résultats soulignent donc l'importance primordiale des cycles internes, et notamment de celui de l'azote, dans l'apparition saisonnière d'une toxicité liée à l'aluminium, qui peut être très préjudiciable à la santé des peuplements forestiers. Les apports atmosphériques ajoutent leurs effets à celui des cycles internes.



I_{tox} (en puissances de 10)

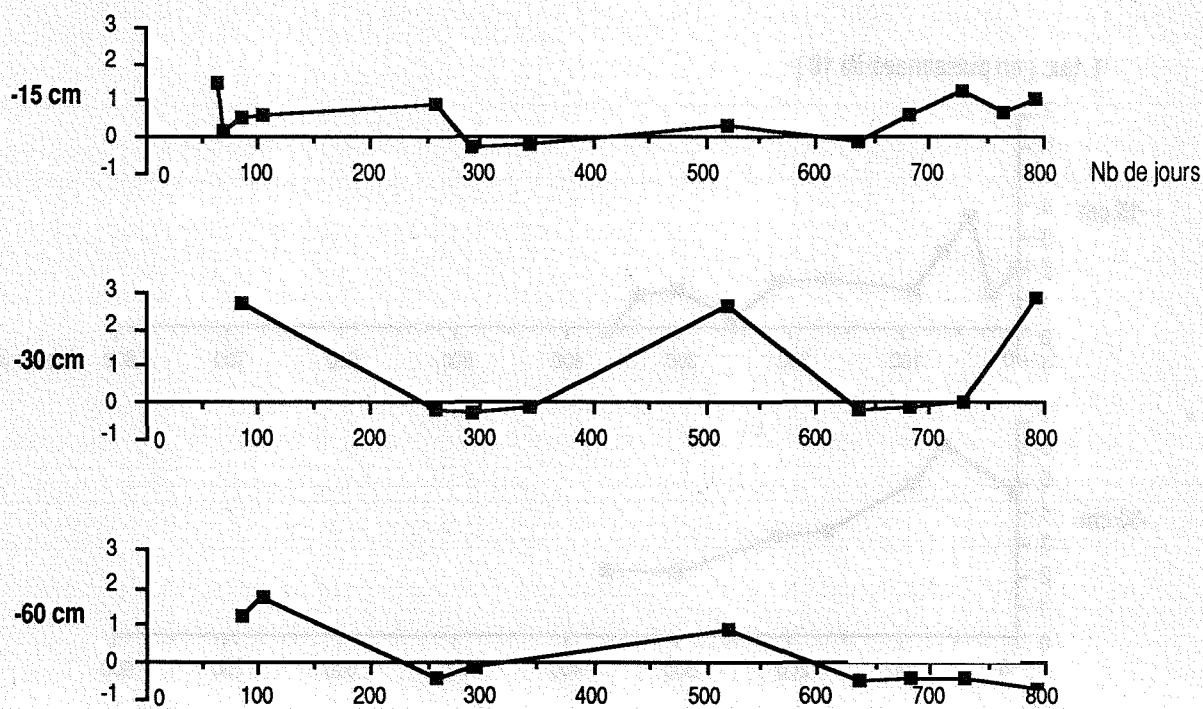


Figure V.4. - Variations du bilan des protons et de l'indice de toxicité (I_{tox}) au cours du temps.

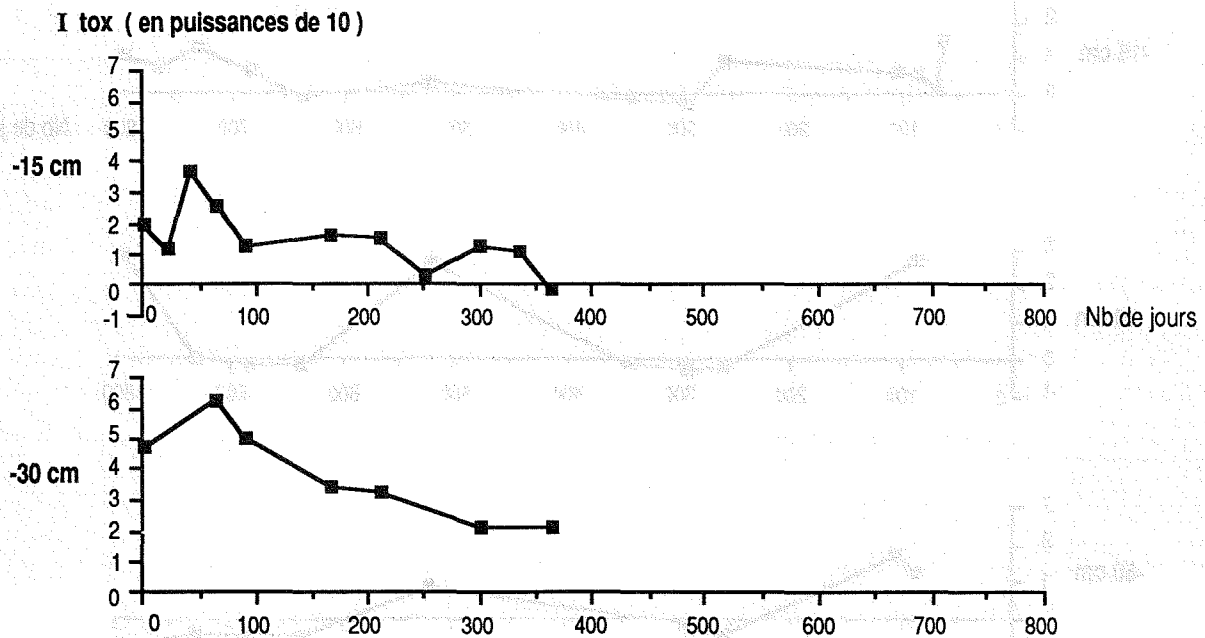
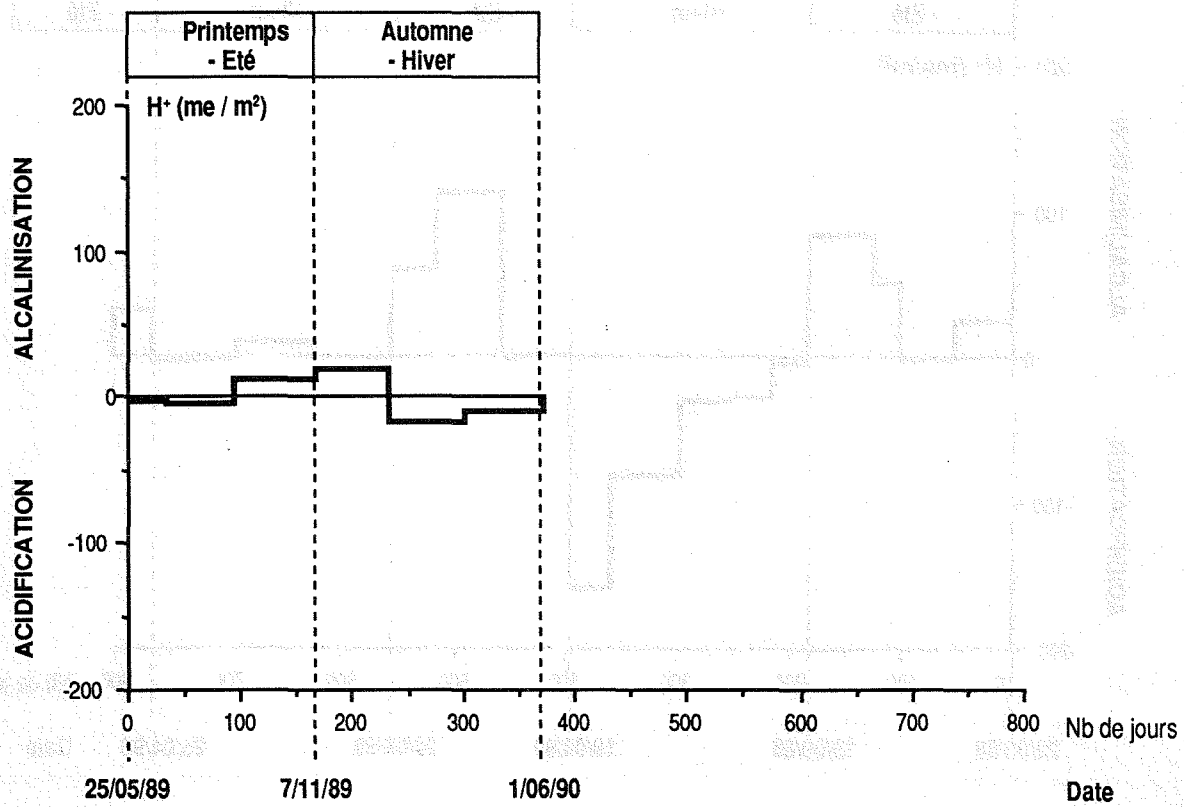


Figure V.5.- Variations du bilan des protons et de l'indice de toxicité (I_{tox}) au cours du temps.

En ce qui concerne le bilan annuel, l'acidification hivernale due aux cycles internes de l'azote et du soufre est équilibrée par l'alcalinisation estivale. De ce fait, le bilan des protons lié à ces processus est peu important. Il a été légèrement positif en 1988-1989 dans la station déperissante, en raison d'une lixiviation importante des nitrates. En 1989-1990, il a été négatif en raison d'une lixiviation très faible, qui a permis un meilleur prélèvement hivernal. L'acidification du sol est donc due à 50 % aux apports externes et à 50 % à la production interne en 1988-1989, et à 100 % aux apports externes en 1989-1990. Ces résultats sont donc tout à fait conformes à ceux relevés dans la littérature (BREDEMEIER *et al.*, 1990), qui attribuent un rôle majeur à la pollution atmosphérique dans l'acidification des sols, du moins si on la considère à une échelle annuelle.

3.- ESTIMATION DU BILAN DE PROTONS TOTAL : FLUX DE PROTONS LIES AUX CYCLES DES CATIONS ET DU CARBONE

Le bilan partiel de protons que nous venons de présenter ne prend en compte, au niveau interne au sol, que les flux de protons liés aux cycles de l'azote et du soufre. Les flux d'acidité liés au cycle du carbone et au bilan production - consommation des cations (Ca, Mg, K, NH_4^+) n'ont pas été quantifiés.

Le cycle du carbone ne joue un rôle significatif que dans l'acidification des horizons de surface. La minéralisation de la matière organique conduit à sa disparition rapide en profondeur. Les quantités de matière organique exportées au-delà de 30 cm de profondeur par les eaux gravitaires sont négligeables (Tableau IV.1.), ce qui limite fortement son rôle au niveau des horizons profonds.

En l'absence de mesures concernant les prélèvements biologiques de cations, il est néanmoins possible d'estimer grossièrement les flux de protons qui leur sont liés. Ceux-ci se déduisent en effet de la différence existant entre la minéralisation des cations (consommatrice d' H^+) et leur prélèvement par la végétation (source d' H^+). On peut établir les équations suivantes :

$$(1) \text{Prélév}_{\text{cat}} = \text{Min } r_{\text{cat}} + \text{Immob}_{\text{cat}} \quad \text{où}$$

$\text{Prélév}_{\text{cat}}$ est le prélèvement des cations,

$\text{Min } r_{\text{cat}}$ est égal à la quantité de cations contenue dans les retombées biologiques

$\text{Immob}_{\text{cat}}$ est égal à l'immobilisation des cations dans la biomasse perenne.

$$(2) \text{ Min tot}_{\text{cat}} = \text{Min } r_{\text{cat}} + \text{Sur min}_{\text{cat}} \quad \text{où}$$

$\text{Min tot}_{\text{cat}}$ est la minéralisation totale des cations,

$\text{Min } r_{\text{cat}}$ est la minéralisation des cations présents dans les retombées des litières (nous supposons que celles-ci se reminéralisent immédiatement et entotalité), et les pluviolessivats

$\text{Sur min}_{\text{cat}}$ est la minéralisation des cations de la matière organique humifiée du sol (excluant celle des retombées de litières et des pluviolessivats). Dans un système à l'équilibre, $\text{Sur min}_{\text{cat}}$ est égal à 0.

$$(3) \text{ Min tot}_{\text{cat}} + \text{Entrées}_{\text{cat}} + \text{Altér.}_{\text{cat}} + \text{Désatur.}_{\text{cat}} = \text{Prélèvements}_{\text{cat}} + \text{Sorties}_{\text{cat}}$$

Des équations du même type peuvent être établies pour l'azote :

$$(4) \text{ Prélèvements}_{\text{N}} = \text{Min } r_{\text{N}} + \text{Immobil}_{\text{N}}$$

$$(5) \text{ Min tot}_{\text{N}} = \text{Min } r_{\text{N}} + \text{Sur min}_{\text{N}}$$

$$(6) \text{ Min tot}_{\text{N}} + \text{Entrées}_{\text{N}} = \text{Prélèvements}_{\text{N}} + \text{Sorties}_{\text{N}}$$

• Nous admettons en outre que la minéralisation des cations peut -être déduite de celle de l'azote, moyennant un facteur x de proportionnalité. Celui-ci sera considéré comme étant égal au rapport des teneurs en cations et en N de feuilles de hêtre et d'aiguilles d'épicéa, données par VAN PRAAG et WEISSEN (1991) :

$$\text{Min tot}_{\text{cat}} = K_x \cdot \text{Min tot}_{\text{N}}$$

$$\text{Sur min}_{\text{cat}} = K_x \cdot \text{Sur min}_{\text{N}}$$

$$\text{avec } K_{\text{Ca}} = \frac{\text{teneur en Ca}}{\text{teneur en N}} = 0,24$$

$$K_{\text{Mg}} = 0,07$$

$$K_{\text{K}} = 0,35$$

• L'immobilisation est estimée à partir des mesures de DAMBRINE et PREVOSTO (1989), effectuées dans un peuplement dépérissant du massif vosgien. La répartition saisonnière de cette immobilisation est faite à partir de celle de la consommation d'azote (83 % au printemps-été et 17 % en automne-hiver).

D'après ces équations, on peut calculer Sur min :

$$(7) \text{ Sur min}_{\text{N}} = \text{Immobil}_{\text{N}} + \text{Sorties}_{\text{N}} - \text{Entrées}_{\text{N}}$$

$$(8) \text{ Sur min}_{\text{cat}} = \text{Sur min}_{\text{N}} \cdot K$$

Tableau V.2.- Evaluation du flux de protons lié à l'équilibre minéralisation-prélèvement des cations.

Station du Haut-Jacques					(année 1988-1989)			
	Printemps-Eté				Automne-Hiver			
(en kg/ha)	N	Ca	Mg	K	N	Ca	Mg	K
Immob.	5,6	4,7	0,8	3	1,1	1	0,2	0,6
Sorties	0				26,6			
Entrées	9,2				7,5			
Sur min	- 3,6	- 0,9	- 0,3	- 1,3	20,2	4,8	1,4	7,1
Min r	45,1	10,9	3,2	15,8	8,5	2,1	0,6	2,9
Min tot	41,5	10	2,9	14,5	28,7	6,9	2	10
Prélèv.	66	15,6	4	18,8	8	3,1	0,8	3,5
Flux de H ⁺ (en eq/ha)	1,75	- 0,28	- 0,09	- 0,11	- 1,48	0,19	0,1	0,17
Total flux de H ⁺	1,75	- 0,48			- 1,48	0,46		
Station du Haut-Jacques					(année 1989-1990)			
	Printemps-Eté				Automne-Hiver			
(en kg/ha)	N	Ca	Mg	K	N	Ca	Mg	K
Immob.	5,6	4,7	0,8	3	1,1	1	0,2	0,6
Sorties	0				4,8			
Entrées	3,5				8,6			
Sur min	2,1	0,5	0,1	0,7	- 2,7	- 0,6	- 0,2	- 0,9
Min r	46	11	3,3	16,1	36,3	8,7	2,6	12,7
Min tot	48,1	11,5	3,4	16,8	33,6	8,1	2,4	11,8
Prélèv.	75,2	15,7	4,1	19,1	35,6	9,7	2,8	13,3
Flux de H ⁺ (en eq/ha)	1,94	- 0,21	- 0,06	- 0,06	0,14	- 0,08	- 0,03	- 0,04
Total flux de H ⁺ (eq/ha)	1,94	- 0,33				0,15		

Tableau V.2.- (suite)

Station de La Chipotte (année 1989-1990)								
	Printemps-Eté				Automne-Hiver			
(en kg/ha)	N	Ca	Mg	K	N	Ca	Mg	K
Immob.	5,6	4,7	0,8	3	1,1	1	0,2	0,6
Sorties	0				6,5			
Entrées	2,3				3,3			
Sur min	3,3	0,8	0,2	1,2	4,3	1	0,3	1,5
Min r	25,4	6,1	1,8	8,8	11,6	2,8	0,8	4,1
Min tot	28,7	6,9	2	10	15,9	3,8	1,1	5,6
Prélèv.	37,9	10,8	2,6	11,8	12,4	3,8	1	4,7
Flux de H ⁺ (en eq/ha)	0,66	- 0,20	- 0,05	- 0,05	- 0,25	0	0,01	0,02
Total flux de H ⁺ (eq/ha)	0,66	0,30			- 0,25	0,03		

Connaissant la minéralisation totale et le prélèvement d'azote, on peut calculer :

$$(9) \text{ Min tot}_{\text{cat}} = \text{Min tot}_N \cdot K$$

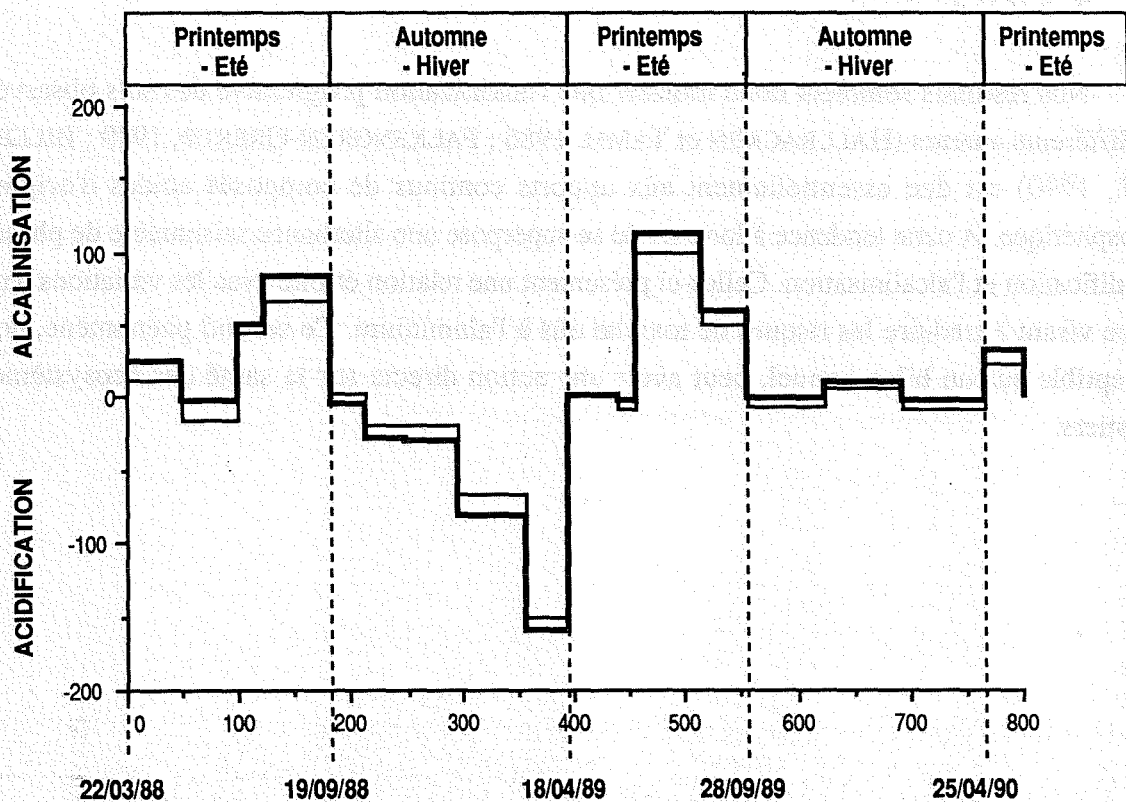
$$(10) \text{ Min r}_N = \text{Min tot}_N - \text{Sur min}_N$$

$$(11) \text{ Min r}_{\text{cat}} = \text{Min tot}_{\text{cat}} - \text{Sur min}_{\text{cat}}$$

Les résultats de ces calculs sont présentés dans le tableau V.2 et la figure V.6.

Le flux de protons lié à l'équilibre production-consommation des cations se traduit par une légère acidification du milieu au printemps et en été, par une légère alcalinisation en automne et en hiver. Le cycle des cations a donc tendance à atténuer légèrement les variations d'acidité liées aux cycles de l'azote et du soufre. L'intensité relativement réduite du phénomène conduit toutefois au maintien de l'opposition saisonnière précédemment observée.

(a)



(b)

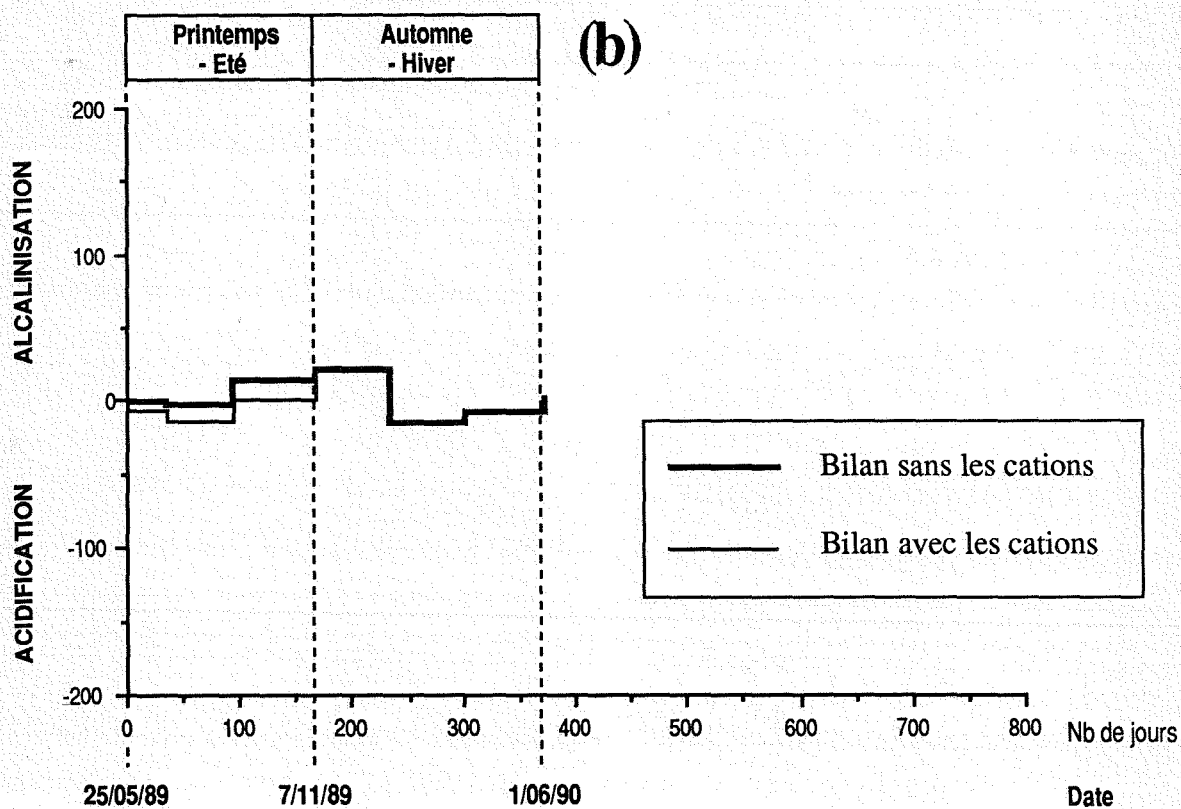


Figure V.6.-Comparaison du bilan de protons avec et sans prise en compte de la production nette par le cycle minéralisation-prélèvement des cations dans les stations du Haut-Jacques (a) et de la Chipotte (b).

4. CONCLUSION

Nos résultats semblent donc montrer que l'acidification progressive des sols observée par différents auteurs (HALLBACKEN et TAMM, 1986 ; FALKENGREN-GRERUP, 1989 ; BILLET *et al.*, 1990) est due essentiellement aux apports continus de composés acides d'origine atmosphérique. A cette tendance à long terme se superpose une alternance saisonnière de phases d'acidification et l'alcalinisation. Celles-ci présentent une relation étroite avec les variations d'un indice visant à traduire les risques de toxicité dûs à l'aluminium. Ce second phénomène, non perceptible sur un bilan annuel, peut avoir une action directe sur la santé des écosystèmes forestiers.

CONCLUSIONS GENERALES

CONCLUSIONS

CONCLUSIONS GENERALES

De très nombreuses hypothèses ont été émises pour expliquer le dépérissement forestier. En ce qui concerne l'anéantissement de vastes surfaces boisées en Europe Centrale, il paraît légitime d'incriminer le rôle direct du SO₂ gazeux et des retombées d'acide sulfurique à proximité des points d'émission. Par contre, on note, dans l'Ouest et le Nord de l'Europe, un dépérissement chronique, qui ne se traduit pas par la mort des forêts, mais se manifeste plutôt par des phases temporaires de défoliation et de jaunissement, alternant avec des phases de rémission. Cet état de fait paraît trouver sa source dans deux grandes causes, l'une étant d'ordre climatique, l'autre d'ordre nutritionnel. Chacune pourrait être responsable de près de la moitié du dépérissement observé dans cette région.

En ce qui concerne les causes climatiques, il est actuellement acquis que la défoliation de certains conifères indigènes en Europe Occidentale provient essentiellement de déficits hydriques répétés, dont l'impact se trouve être renforcé par celles des pratiques sylvicoles, qui augmentent la demande en eau.

Les causes nutritionnelles du dépérissement trouvent, quant à elles, naissance dans i) les situations de trop forte croissance des peuplements, qui sont susceptibles d'entraîner une trop forte demande en nutriments et de conduire, en conjonction avec d'autres facteurs, à l'apparition de carences minérales et au jaunissement ; ii) l'action probable de l'ozone, qui fragilise les arbres et favorise les phénomènes de récréation ; iii) l'acidification des écosystèmes par les pluies, aussi bien que par les dépôts secs et occultes qui se concentrent sur les parties aériennes de la végétation.

Nous nous sommes intéressés plus particulièrement à ce dernier point. Cette acidification est en effet susceptible de provoquer l'appauvrissement des sols en nutriments et d'induire l'apparition, au moins momentanée, d'une certaine toxicité alumineuse, deux phénomènes très préjudiciables à la santé des peuplements.

Les apports de sulfates et de nitrates par les pluviollessivats contribuent, dans une large mesure, à l'acidification des sols. Celle-ci favorise la lixiviation des éléments minéraux du sol quand les anions correspondants (SO_4^{2-} et NO_3^-) ne sont pas prélevés par la végétation ou adsorbés sur les colloïdes du sol. Les apports atmosphériques sont par ailleurs susceptibles d'agir en synergie avec ceux des processus biologiques internes au sol, qui sont générateurs d'acidité, et de provoquer la solubilisation d'aluminium dans des sols où ces ions seraient normalement retenus sur les sites d'échange. Ceci pourrait provoquer l'apparition d'une certaine toxicité alumineuse.

Parmi les processus endogènes, la minéralisation et la nitrification de l'azote et du soufre organique sont des processus majeurs dans nos conditions d'étude. Nos stations sont situées sur des sols acides, à mull actif, où la dissociation du CO_2 est négligeable, et où la décomposition des acides organiques est rapide. Le cycle du carbone, qui est une source majeure de composés acides dans de nombreux sols, joue donc un rôle négligeable dans notre cas. Ce sont essentiellement les équilibres minéralisation-nitrification-prélèvements par la végétation des nitrates et minéralisation-adsorption-désorption-prélèvements par la végétation de sulfates, qui régulent le bilan interne des protons.

Afin de préciser les rôles respectifs des apports atmosphériques et des cycles biologiques internes du sol dans l'acidification des sols, les flux d'azote et de soufre (apport par les pluviollessivats, production par la minéralisation et/ou la nitrification, prélèvement par la végétation, lixiviation) ont été suivis grâce à une méthode d'incubation *in situ* dans deux stations forestières des Vosges, l'une saine, l'autre dépérissante. Les résultats font apparaître que les peuplements sont capables de prélever la totalité des nitrates et des sulfates durant la saison de végétation et que des pertes par lixiviation n'ont réellement lieu qu'en automne et en hiver. En ce qui concerne plus spécifiquement le cycle de l'azote, le maintien de la nitrification à un niveau appréciable durant les hivers les plus doux ne semble pas anormale, compte tenu des résultats de certains travaux effectués sur des sols analogues, à une époque antérieure à la manifestation des symptômes de dépérissement. L'hypothèse de ULRICH *et al.* (1980 et ULRICH (1983), selon laquelle le dépérissement forestier serait à mettre en relation avec des perturbations du cycle de l'azote, et notamment de la nitrification est donc à rejeter dans notre cas. Les quantités de nitrates et de sulfates lixiviées sont par ailleurs sensiblement du même ordre de grandeur que les quantités entrant dans les écosystèmes étudiés par le biais des apports atmosphériques, ce qui indique une certaine stabilité des teneurs du sol en ces deux éléments.

A partir des résultats acquis sur les flux d'azote et du soufre, nous avons établi un bilan de protons pour les deux stations étudiées dans ce mémoire. Ces données montrent que, durant la saison de végétation, les prélèvements en nitrates et en sulfates par la végétation (processus alcalinisant) sont plus importants que la production par la minéralisation et la nitrification (processus acidifiant) : en terme de bilan d'acidité, les cycles internes de ces deux éléments se traduisent par une phase d'alcalinisation nette. Au cours de l'automne et de l'hiver, par contre, les phénomènes sont inversés : la production de protons est plus élevée que la neutralisation, ce qui se traduit par l'existence, à cette époque, d'une phase d'acidification nette. Les apports atmosphériques de protons, qui sont maxima en hiver, agissent en synergie avec ces bilans internes pour conduire à une forte acidification hivernale.

Cette alternance de phases d'acidification et d'alcalinisation a des répercussions très importantes au niveau des conditions de vie offertes à la végétation. La phase d'acidification hivernale induit en effet l'apparition d'une toxicité alumineuse susceptible d'être préjudiciable à la végétation lors de son réveil printanier.

A une échelle annuelle, la phase hivernale d'acidification est équilibrée par la phase estivale d'alcalinisation. L'influence des cycles internes de l'azote et du soufre sur l'acidification du sol est alors peu importante. L'acidification et l'appauvrissement des sols rapportés par de nombreux auteurs au cours des dernières décennies paraissent devoir être attribués pour l'essentiel aux dépôts acides d'origine atmosphérique.

BIBLIOGRAPHIE

BIBLIOGRAPHIE

- ABRAHAMSEN G., SEIP H.M. et SEMB A., 1989 - Long term acidic precipitation studies *In Norway. Acidic precipitation Vol I : Case studies*. D.C. Adriano et H. Havas (Eds). Springer-Verlag. 37-179.
- ADAMS F et HATHCOCK, 1984 - Aluminium toxicity and calcium deficiency in acid subsoil horizons of two coastal plains soil series. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **48**, 1305-1309.
- ADAMS F. et LUND Z.F., 1966 - Effect of chemical activity of soil solution aluminium on cotton root penetration of acid subsoils. **Soil Science**, **101**, 193-198.
- ADAMS F. et MOORE B.L., 1983 - Chemical factors affecting root growth in subsoil horizons of coastal plain soils. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **47**, 99-102.
- ADAMS M.A. et ATTIWILL P.M., 1986 - Nutrient cycling and nitrogen mineralization in eucalyptus forest of south-eastern Australia. II. Indices of nitrogen mineralization. **Plant and Soil**, **92**, 341-362.
- ADAMS M.A., POLGLASE P.J., ATTIWILL P.M. et WESTON C.J., 1989 - *In situ* studies of nitrogen mineralization and uptake in forest soils : Some comments on methodology. **Soil Biol. Biochem.**, **21**, 423-429.
- ADAMS W.A., ALI A.Y. et LEWIS P.J., 1990 - Release of cationic aluminium from acidic soils into drainage water and relationships with land use. **Journal of soil science**, **41**, 255-268.
- ADDISCOTT T.M., 1990 - Measurement of nitrate leaching : a review of methods. *In : Nitrates, Agriculture, Eau*. R. Calvet (Ed), Paris, 7-8 novembre 1990.
- ALEXANDER M. et CLARK F.E., 1965 - Nitrifying bacteria, *In Methods of soil analysis*, C.A. Black *et al.* (eds.), Am. Soc. Agron., Madison, Wis., 1477-1486.
- ARP P.A. et OUMET R., 1986 - Uptake of aluminium species in acid forest soil solutions on the basis of Al:F reaction kinetics. 2. An example at the Solling area. **Soil Science**, **142**, 13-19.
- ARP P.A. et STRUCEL I., 1989 - Water uptake by black spruce seedlings from rooting media (solution, sand, peat) treated with inorganic and oxalated aluminium. **Water, Air and Soil Pollution**, **44**, 57-70.

- ASP H., BENGTSSON B. et JENSEN P., 1988 - Growth and cation uptake in spruce (*Picea abies* Karst.) grown in sand culture with various aluminium contents. **Plant and Soil**, **111**, 127-133.
- BACHE B.W. et SHARP G.S., 1976 - Soluble polymeric hydroxy-aluminium ions in acid soils. **J. Soil Science**, **27**, 167-174.
- BARBEE G.C. et BROWN K.W., 1986 - Comparison between suction and free-drainage soil solution samplers. **Soil Science**, **14**, 149-154.
- BARLETT R.J. et RIEGO D.C., 1972a - Effect of chelation on the toxicity of aluminium. **Plant and Soil**, **37**, 419-423.
- BARLETT R.J. et RIEGO D.C., 1972b - Toxicity of hydroxy aluminium in relation to pH and phosphorus. **Soil Science**, **114**, 194-200.
- BECKER M., 1987a - Bilan de santé actuel et rétrospectif du sapin (*Abies alba* Mill.) dans les Vosges. Etude écologique et dendrochronologique. **Ann. Sci. For.**, **44**, 379-402.
- BECKER M., 1987b - Santé de la forêt : le sapin témoigne. **La Recherche**, **191**, 1096-1098.
- BECKER M., 1989 - The role of climate on present and past vitality of silver fir forests in the Vosges mountains of northeastern France. **Can. J. For. Res.**, **19**, 1110-1117.
- BECKER M., LANDMANN G. et LEVY G., 1989 - Importance des facteurs climatiques, sylvicoles et stationnels dans le dépérissement du sapin dans le massif vosgien (N.E. France). **Air pollution and forest decline**. J.B. Bucher et I. Bucher-Vallin (Eds.). Proc. 14 th Int. Meeting for specialists in air pollution effects on forest ecosystems, IUFRO P2.05, Interlaken, Switzerland, 2-8 oct. 1988. Birmensdorf, 1989, p.277-282.
- BECKER M., BRÄKER O.U., KENK G., SCHNEIDER O. et SCHWEINGRUBER F.H., 1990 - Aspect des houppiers et croissance des arbres au cours des dernières décennies dans les régions frontalières d'Allemagne, de France et de Suisse. **Rev. For. Fr.**, **XLII**, 284-300.
- BECQUER T., MERLET D., BOUDOT J.P., ROUILLER J. et GRAS F., 1990 - Nitrification and nitrate uptake : leaching balance in a declined forest ecosystem in eastern France. **Plant and Soil**, **125**, 95-107.
- BEIER C., BUTTS M., VON FREIESLEBEN N.E., JENSEN K.H. et RASMUSSEN L., 1989 - Monitoring of soil water chemistry and ion fluxes in forests. *In* : **Methods for integrated monitoring in the nordic countries**. Nordic Council of Ministers, Copenhagen.
- BELSER L.W., 1979 - Population ecology of nitrifying bacteria. **Ann. Rev. Microbiol.**, **33**, 309-333.

- BENNET R.J., BREEN C.M. et FEY M.V., 1987 - The effect of aluminium on root cap function and root development in *Zea mays* L.. **Environmental and Experimental Botany**, **27**, 91-104.
- BERTHELIN J., BONNE M., BELGY G. et WEDRAOGO F.X., 1985 - A major role for nitrification in the weathering of minerals of brown acid forest soils. **Geomicrobiology J.**, **4**, 175-190.
- BERTHELOT P., 1859 - **Répertoire de chimie pure et appliquée**, **1**, 284.
- BERTSH P.M., 1987 - Conditions for Al_{13} polymer formation in partially neutralized aluminium solutions. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **50**, 825-830.
- BILLET M.F., PARKER-JERVIS F., FITZPATRICK E.A. et CRESSER M.S., 1990 - Forest soil chemical changes between 1949/50 and 1987. **J. Soil Science**, **41**, 133-145.
- BOLAN N.S., SCOTTER D.R., SYERS J.K. et TILLMAN R.W., 1986a - The effect of adsorption on sulfate leaching. **Soil Sci. Soc. Am. J.**, **50**, 1419-1424.
- BOLAN N.S., SYERS J.K. et TILLMAN R.W., 1986b - Ionic strength effects on surface charge and adsorption of phosphate and sulfate by soils. **J. Soil Science**, **37**, 379-388.
- BOLAN N.S., SYERS J.K., TILLMAN R.W. et SCOTTER D.R., 1988 - Effect of liming and phosphate additions on sulphate leaching in soils. **J. Soil Science**, **39**, 493-504.
- BONNEAU M., 1987a - Incidence des conditions écologiques sur le dépérissement. In : **Les recherches en France sur le dépérissement des forêts**. Programme DEFORPA, 1er rapport, pp 34-42, ENGREF, Nancy.
- BONNEAU M., 1987b - Effects de la pollution acide sur le sol. In : **Les recherches en France sur le dépérissement des forêts**. Programme DEFORPA, 1er rapport, pp. 64-70, ENGREF, Nancy.
- BONNEAU M., 1989 - Que sait-on maintenant des causes du "dépérissement" des forêts? **Rev. For. Fr.**, **XLI(5)**, 367-385.
- BONNEAU M., DAMBRINE E., NYS C. et RANGER J., 1987 - L'acidification des sols. **Bull. Ecol.**, **18**, 127-136.
- BOTTERO J.Y., AXELOS M., TCHOUBAR D., CASES J.M., FRIPIAT J.J. et FIESSINGER F., 1987 - Mechanism of formation of aluminium trihydroxide from kegin Al_{13} polymers. **J. Colloid and Interface Science**, **117**, 47-57.
- BOTTERO J.Y. et BERSILLON J.L., 1989 - Aluminum and iron (III) chemistry. Some implications for organic substance removal. In : I.J. Suffet et P. Mac Carthy (Eds), **"Aquatic humic substances. Influence on fate and treatment of pollutants"**. Advances in Chemistry Series 219. Am. Chem. Soc., Washington.

BOUDOT J.P., 1982 - **Relations entre l'altération minérale et le cycle de l'azote sur matériel chloriteux du massif schisto-grauwacheux vosgien**. Thèse de doctorat d'état ès Sciences Naturelles, Université de Nancy I, 168p.

BOUDOT J.P. et CHONE Th., 1985 - International nitrogen cycling in two humic-rich acidic soils. **Soil Biol. Biochem.**, **17**, 135-142.

BOUVAREL P., 1990 - Notes complémentaires sur "l'effet de serre", conséquences sur les forêts. **Rev. For. Fr.**, **XLII**, 317-321.

BREDEMEIER M., MATZNER E. et ULRICH B., 1990 - Internal and external proton load to forest soils in northern Germany. **J. Environ. Qual.**, **19**, 469-477.

BREMNER J. M. et EDWARDS A.P., 1965 - Détermination and isotope-ratio analysis of different forms of nitrogen in soils. I. Apparatus and procedure for distillation and determination of ammonium. **Soil Sc. Soc. Amer. Proc.** **29**, 504-507.

BREMNER J.M. et HAUCK R.D., 1982 - Advances in methodology for reasearch on nitrogen transformations in soils. *In* : **Nitrogen in agricultural soils**, F.S. Stevenson (Ed.), Agronomy n° 22, Madison, Wisc., 467-502.

BREMNER J. M. et KEENEY D.R., 1966 - Détermination and isotope-ratio analysis of different forms of nitrogen in soils. III. Exchangeable ammonium, nitrate and nitrite by extraction-distillation methods. **Soil Sc. Soc. Amer. Proc.** , **30**, 577-582.

BRENES E. et PEARSON R.W., 1973 - Root responses of three gramineae species to soil acidity in an oxisol and an ultisol. **Soil Science**, **116**, 295-302.

BROGAN J.C., 1964 - The effect of humic acid on aluminium toxicity. *In* : **Trans. 8th Int. Cong. of Soil Science, Bucarest**, **3**, 227-234.

BROWN G. et NEWMAN A.C.D., 1973 - The reaction of soluble aluminium with montmorillonite. **J. Soil Science**, **24**, 339-354.

BROWN B.A., DRISCOLL C.T. et Mc COLL J.G., 1990 - Aluminium speciation using morin . II. Principles and procedures. **J. Environ. Quality**, **19**, 73-82.

BUFFET M., 1986 - Le réseau de surveillance sanitaire des forêts. Description, problématique. **Programme DEFORPA**, Etat des recherches à la fin de l'année 1986, Vol. 1, 7-15.

CACHAN P., 1974 - Etude bioclimatique du massif vosgien. **Bull. de l'Ecole Nationale Supérieure d'Agronomie et des Industries Alimentaires**, **16**, 3-48.

CAMERON R.S., RITCHIE G.S.P. et ROBSON A.D., 1986 - Relative toxicities of inorganic aluminium complexes to barley. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **50**, 1231-1236.

CASSMAN K.G. et MUNNS D.N., 1980 - Nitrogen mineralization as affected by soil moisture, temperature and depth. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **44**, 1233-1237.

COLE D. W., 1981 - Nitrogen uptake and translocation by forest ecosystems. *In* : **Terrestrial nitrogen cycles**, F.E. Clark et T. Rosswall (Eds), Ecol. Bull., Stockholm, 33, 219-233.

CURTIN D. et SYERS J.K., 1990a - Mechanism of sulfate adsorption by two tropical soils. **J. Soil Science**, **41**, 295-304.

CURTIN D. et SYERS J.K., 1990b - Extractability and adsorption of sulphate in soils. **J. Soil Science**, **41**, 305-312.

CURTIN D. et SYERS J.K., 1990c - Influence of nitrate and Chloride on the adsorption and transport of sulphate in soils. **J. Soil Science**, **41**, 433-442.

DAMBRINE E. et PREVOSTO B., 1989 - Flux des éléments minéraux dans un écosystème forestier d'altitude soumis à la pollution atmosphérique : relation avec le dépérissement. *In* : Journées de travail DEFORPA, 23 fév. et 2-3 mars 1989, Nancy, Vol. 4, pp 8.2.1-8.2.42.

DANCER W.S., PETERSON L.A. et CHESTERS G., 1973 - Ammonification and nitrification of N as influenced by soil pH and previous N treatments. **Soil Sc. Soc. Amer. Proc.**, **37**, 67-69.

DENNEY D.Z. et HSU P.A., 1986 - ²⁷Al nuclear magnetic resonance and ferron kinetic studies of partially neutralized AlCl₃ solutions. **Clays and Clay Minerals**, **34**, 604-607.

DAVIES C.W., 1962 - **Ion association**. Butterworths, London.

DUCHAUFOR P., 1955 - Les sols des forêts résineuses des Basses-Vosges. **Rev. For. Fr.**

DUCHAUFOR P., VEDY J.C. et BRUCKERT S., 1968 - Contribution à l'étude expérimentale "*in situ*" de l'évolution chimique et de l'altération d'un grès et d'un granite vosgien sous l'influence de deux types de litières : Evolution du carbone et de l'azote au cours du premier cycle de végétation. **Science du sol**, **1**, 5-18.

EMMER I.M. et TIETEMA A., 1990 - Temperature-dependent nitrogen transformations in acid oak-beech forest litter in the Netherlands. **Plant and Soil**, **122**, 193-196.

FALKENGREN-GRERUP, 1989 - Soil acidification and its impact on ground vegetation. **Ambio**, **18**, 179-183.

FEDOTOV M.A., KRIVORUCHKU O.P. et BUYANOV A., 1977 - **Izv. Akad. Nauk., SSSR Sér. Khim.**, **12**, 2647-2651.

FREIESLEBEN N.E., RIDDER C. et RASMUSSEN L., 1986 - Patterns of acid deposition to a danish spruce forest. **Water Air and Soil Pollution**, **30**, 135-141.

FRITZ B., 1981 - Etude thermodynamique et modélisation des réactions hydrothermales et diagénétiques. **Sciences Géol., Mém. n° 65**, 188 p.

GALLOWAY J.N., 1989 - Atmospheric acidification : projections for the future. **Ambio**, **18**, 161-166.

GARRELS R.M. et CHRIST C.L., 1965 - Solutions, minerals and equilibria. Harper's Geoscience Series. Harper and Row, New York, 450 p.

GODBOLD D.L., FRITZ E. et HÜTTERMAN A., 1988 - Aluminium toxicity and forest decline. **Proc. Nat. Acad. Sci. USA**, **85**, 3888-3892.

GOH T.B., HUANG P.M. et RENNIE D.A., 1986 - Communications in Soil Sciences and Plant Analysis, **17**, 515-.

GOSZ J.R., 1981 - Nitrogen cycling in coniferous ecosystems. *In* : **Terrestrial nitrogen cycles**, F.E. Clark et T. Rosswall (Eds), Ecol. Bull., Stockholm, **33**, 405-426.

GRAS F., MERLET D. et ROUILLER J., 1987 - Apports atmosphériques et acidification des solutions de sol dans une forêt dépérissante des Vosges (Est de la France). *In* : **Air pollution and ecosystems**. P. Mathy (Ed), 18-22 mai 1987, Grenoble, France,

GRAS F., ROUILLER J., MERLET D. et BECQUER T., 1988a - Etude de l'aluminium dans les solutions de deux sols forestiers du massif vosgien. Journées de travail DEFORPA, Nancy, 24-26 février 1988.

GRAS F., MERLET D., ROUILLER J., BECQUER T., BARTOLI F., 1988b - Effet des apports acides sur la libération de l'aluminium dans les sols forestiers vosgiens. Rapport Ministère de l'Environnement, 40p.

GRAS F., BOUDOT J.P., BECQUER T., MERLET D., ROUILLER J., 1989 - Rapport d'activité au 30 nov. 1988. Convention INRA/CEE/CNRS n°EV 4V 0014F. "Dépérissement des forêts et pollution atmosphérique", Vol. 4, DEFORPA/Ministère de l'Environnement, 18p.

GRENNFELT P., LARSSON S., LEYTON P. et OLSSON B., 1983 - Atmospheric deposition in the lake Gardsjon area. **Ecological Bulletin**, **37**.

GRIMME H. et LINDAUER M.G., 1989 - The effect of Al and Mg on the transpiration rate of young maize plants. **Z. Planzenern. Bodenkde**, **151**, 453-454.

HAINES B.L., WAIDE J.B. et TODD R.L., 1982 - Soil solution nutrient concentrations sampled with tension and zero tension lysimeters : report of discrepancies. **Soil Sci. Soc. Am. J.**, **46**, 658-661.

HALLBÄCKEN L. et TAMM C.O., 1986 - Changes in soil acidity from 1927 to 1982-1984 in a forest area of south-west Sweden. **Scand. J. For. Res.**, **1**, 219-232.

HARGROVE W.L., 1986 - The solubility of aluminium-organic matter and its implication in plant uptake of aluminium. **Soil Science**, **142**, 179-180.

- HAYNES R.S., 1986 - **Mineral nitrogen in the plant-soil system**. Academic Press, London, 483p.
- HECHT-BUCHHOLZ C., 1983 - Light and electron microscopic investigations of the reactions of various genotypes to nutritional disorders. **Plant and Soil**, **72**, 151-165.
- HECHT-BUCHHOLZ C., JORNS C.A. et KEIL P., 1987 - Effect of excess aluminum and manganese on Norway spruce seedlings as related to magnesium nutrition. **J. Plant Nutr.**, **10**, 1103-1110.
- HECHT-BUCHHOLZ C. et SCHUSTER J., 1987 - Responses of Al-tolerant Dayton and Al-sensitive Kearney barley cultivars to calcium and magnesium during Al stress. **Plant and Soil**, **99**, 57-64.
- HENNEQUIN C., 1987 - Caractérisation de la pollution en milieu forestier. In : **Les recherches en France sur le dépérissement des forêts**. Programme DEFORPA, 1er rapport, pp 34-42, ENGREF, Nancy.
- HERBAUTS J., 1980 - Disponibilité azotée et lessivage de l'azote dans un mull et un moder forestiers. **Ann. Sci. For.**, **37**, 189-199.
- HINGSTON F.J., POSNER A.M. et QUIRK J.P., 1972 - Anion adsorption by goethite and gibbsite. I. The role of the proton in determining adsorption envelopes. **J. Soil Science**, **23**, 177-192.
- HINRICHSSEN D., 1986 - Multiple pollutants and forest decline. **Ambio**, **15**, 258-265.
- HORNUNG M., 1989 - Soil solution sampling and lysimetry. In : **Tropical soil biology and fertility : a handbook of methods**, J.M. Anderson et J.S. Ingram (Eds.), p131-143.
- HORST W.J., WAGNER A. et MARSCHNER H., 1982 - Mucilage protects root meristems from aluminium injury. **Zeitsch. Pflanzenphysiol.**, **105**, 435-444.
- HOYT P.B. et NYBORG M., 1971 - Toxic metals in acid soil : I. Estimation of plant-available aluminium. **Soil Sci. Soc. Am. Proc.**, **35**, 236-240.
- HOYT P.B. et TURNER C., 1975 - Effects of organic materials added to very acid soils on pH, aluminum, exchangeable NH₄ and crop yield. **Soil Science**, **119**, 227-237.
- HUE N.V., CRADDOCK G.R. et ADAMS F., 1986 - Effect of organic acids on aluminum toxicity in subsoils. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **50**, 28-34.
- HUTCHINSON T.C., BOZIC L. et MUNOZ-VEGA G., 1986 - Response of five species of conifer seedlings to aluminum stress. **Water, Air and Soil Pollution**, **31**, 353-368.
- HÜTTERMANN A. et ULRICH B., 1984 - Solid phase-solution-root interactions in soils subjected to acid deposition. **Phil. Trans. Roy. Soc. Lond.**, **B 305**, 353-368.

- JANSEN A.E., 1988 - Air pollutant effects on ectomycorrhizal fungi. *In* : "Scientific basis of forest decline symptomatology". J.N. Cape. et P. Mathy (eds), Edinburgh, 21-24 March 1988, 182-189.
- JOHNSON D.W., COLE D.W., VAN MIGROET H. et HORNG F.W., 1986 - Factors affecting anion movement and retention in four forest soils. **Soil Sci. Soc. Am. J.**, **50**, 776-783.
- JOHNSON D.W. et LINDBERG S.E., 1989 - Acidic deposition on Walker Branch Watershed. **Acidic precipitation. Vol I : Case studies**. D.C. Adriano et H. Havas (Eds). Springer-Verlag, 1-38.
- JOHNSON D.W., SICCAMI T.G., SILVER W.L. et BATTLES J.J., 1989 - Decline of red spruce in high elevation forests of New-York and New-England. **Acidic precipitation Vol I : Case studies**. D.C. Adriano et H. Havas (Eds). Springer-Verlag, 85-114.
- JONES P.D., 1990 - Le climat des mille dernières années. **La Recherche**, **219**, 304-312.
- JOSLIN J.D., KELLY J.M., WOLFE M.H. et RUSTAD L.E., 1988 - Elemental patterns in roots and foliage of mature spruce across a gradient of soil aluminium. **Water, Air and Soil Pollution**, **40**, 375-390.
- JOSLIN J.D. et WOLFE M.H., 1988 - Responses of red spruce seedling to changes in soil aluminum in six amended forest soil horizons. **Can. J. For. Res.**, **18**, 1614-1623.
- JOSSERAND A. et BARDIN R., 1981 - Nitrification en sol acide. I : Mise en évidence de germes autotrophes nitrifiants (genre *Nitrobacter*) dans un sol forestier sous résineux. **Rev. Ecol. Biol. Sol**, **18**, 435-445.
- KAUPENJOHANN M., SCHNEIDER B. U., HANDSCHEL R., ZECH W. et HORN R., 1988 - Sulfuric acid rain treatment of *Picea abies* (Karst. L): Effects on nutrient solution, throughfall chemistry, and tree nutrition. **Z. Pflanzenernähr. Bodenkde**, **151**, 123-126.
- KAZDA M. et ZVACEK L., 1989 - Aluminium and Manganese and their relation to calcium in soil solution and needles in three Norway spruce (*Picea abies*, L. Karst.) stands of Upper Austria. **Plant and Soil**, **114**, 257-267.
- KEENEY D.R., 1982 - Availability indices. *In* : **Methods of soil analysis**, Part 2, 2nd ed., A.L. Page *et al.* (eds). Soil Sci. Soc. of Am., Madison, WI, 501-538
- KHANNA P.K., 1981 - Leaching of nitrogen from terrestrial ecosystems : Patterns, mechanisms and ecosystem responses. *In* : **Terrestrial nitrogen cycles**. F.E. Clark et T. Rosswall (Eds). Ecol. Bull., Stockholm, **33**, 343-352.
- KIELLAND J., 1937 - Individual activity coefficients of ions in aqueous solutions. **J. Amer. Chem. Soc.**, **59**, 1675-1678.

- KINRAIDE T.B. et PARKER D.R., 1987a - Non-phytotoxicity of the aluminium sulfate ion, AlSO_4^+ . **Physiologia Plantarum**, **71**, 207-212.
- KINRAIDE T.B. et PARKER D.R., 1987b - Cation amelioration of aluminium toxicity in wheat. **Plant Physiol.**, **83**, 546-551.
- KINRAIDE T.B. et PARKER D.R., 1989 - Assessing the phytotoxicity of mononuclear hydroxy-aluminum. **Plant, Cell and Environment**, **12**, 479-487.
- KINRAIDE T.B. et PARKER D.R., 1990 - Apparent phytotoxicity of mononuclear hydroxy-aluminum to four dicotyledonous species. **Plant Cell and Environment**, **12**,
- KORENTAJER L., BYRNES B.H. et HELLUMS D.T., 1983 - The effect of liming and leaching on the sulfur supplying capacity of soils. **Soil Sci. Soc. Am. J.**, **47**, 525-530.
- KOWALENKO C.G. et LOWE L.E., 1975 - Evaluation of several extraction methods and of a closed incubation method for soil sulphur mineralization. **Can. J. Soil Sci.**, **55**, 1-8.
- LABROUE L. et LASCOMBES G., 1971 - Minéralisation de l'azote organique dans les sols alpins du pic du midi de Bigorre. **Oecol. Plant.**, **6**, 247-270.
- LANDMANN G., 1987 - Les recherches sur le dépérissement des forêts en France : structure et principaux résultats du programme DEFORPA. *In* : **Air pollution and ecosystems**, P. Mathy (Ed), 18-22 mai 1987, Grenoble, France, 261-281.
- LANDMANN G., 1988 - Comment apprécier la vitalité d'un arbre ou d'un peuplement forestier? **Rev. For. Fr.**, **XL**, 265-284.
- LANDMANN G., BONNEAU M. et ADRIAN M., 1987 - Le dépérissement du sapin pectiné et de l'épicéa commun dans le massif vosgien est-il en relation avec l'état nutritionnel des peuplements ? **Rev. For. Fr.**, **34**, 5-11.
- LAST F.T., 1989 - Acidic deposition : case study Scotland. **Acidic precipitation. Vol I : Case studies**. D.C. Adriano et H. Havas (Eds). Springer-Verlag, 237-274.
- LEGG J.O. et MEISINGER J.J., 1982 - Advances in methodology for research on nitrogen transformations in soils. *In* : **Nitrogen in agricultural soils**, F.S. Stevenson (Ed.), Agronomy n° 22, Madison, Wisc., 503-566.
- LELONG F., DURAND P. et DIDON-LESCOT J.F., 1989 - Bilan des transferts d'eau et de solutés dans les bassins versants comparatifs du Mont-Lozère et à l'intérieur des écosystèmes forestiers (1981-88). *In* : Journées de travail DEFORPA, 23 fév. et 2-3 mars 1989, Nancy, Vol. 4, pp 8.5.1-8.5.30.
- LEMEE G., 1967 - Investigations sur la minéralisation de l'azote et son évolution annuelle dans les humus forestiers *in situ*. **Oecol. Plant.**, **2**, 285-324.

LENSI R., GOURBIERE F. et JOSSERAND A., 1985 - Measurement of small amounts of nitrate in acid soil by N₂O production. **Soil Biol. Biochem.**, **17**, 733-734.

LENSI R., MAZURIER S., GOURBIERE F. et JOSSERAND A., 1986 - Rapid determination of the nitrification potential of an acid forest soil and assesement of its variability. **Soil Biol. Biochem.**, **18**, 239-240.

LE TACON F., 1988 - Aspects microbiologiques du dépérissement du sapin pectiné (*Abies alba* Mill.) et de l'épicéa commun (*Picea excelsa* Link.) dans les Vosges. Journées de travail DEFORPA, Nancy, 24-26 février 1988.

LEVY G. et BECKER M., 1987 - Le dépérissement du sapin dans les Vosges : rôle primordial de déficits d'alimentation en eau. **Ann. Sci. For.**, **44**, 403-416.

LIKE D.E. et KLEIN R.M., 1985 - The effect of simulated acid rain on nitrate and ammonium production in soils from three ecosystems of Camels Hump Mountain, Vermont. **Soil Science**, **140**, 352-355.

LIKENS G.E., BORMAN F.H., PIERCE R.S., EATON J.S. et JOHNSON N.M., 1977 - **Biogeochemistry of a forested ecosystem**. Springer-Verlag, New-York, Inc., 146p.

LINDBERG S.E. et JOHNSON D.W. (Eds), 1989 - **Annual report of the integrated forest study**. Environmental Sciences Division, Publication n° 3339.

LINDSAY W.L., PEECH M. et CLARK, 1959 - Determination of aluminium ion activity in soil extracts. **Soil Sci. Soc. Am. Proc.**, **23**, 266-269.

LÖVBLAD G. et WESTLING O., 1989 - Methods for determination of atmospheric deposition. *In* : **Methods for integrated monitoring in the nordic countries**. Nordic Council of Ministers, Copenhagen, 19-62.

MAC LAREN R.G., KEER J.I. et SWIFT R.S., 1985 - Sulfur transformations in soils using sulfur-35 labelling. **Soil Biol. Biochem.**, **17**, 73-79.

MAC LEAN F.T. et GILBERT B.E., 1927 - The relative aluminum tolerance of crop plants. **Soil Science**, **24**, 163-174.

MATSUMOTO H., HIRASAWA F., MORIMURA S. et TAKAHASHI E., 1977 - **Plant Cell Physiol.**, **18**, 325-335.

MATTSON S. et HESTER J.B., 1933 - The laws of colloidal behavior. XII. The amphoteric nature of soils in relation to aluminum toxicity. **Soil Science**, **36**, 229-244.

MATZNER E., 1986 - Seasonal variation of chemical soil solution in forest soil. Transactions of XIII ème congress of the international society of soil science. Hambourg, 13-20/08/1986.

- MAYNARD D.G., STEWART J.W. et BETTANY J.R., 1983 - Sulfur and nitrogen mineralization in soils compared using two incubation techniques. **Soil Biol. Biochem.**, **19**, 251-256.
- MEHRA O.P. et JACKSON M.L., 1960 - Iron-oxide removal from soils and clays by a dithionite-citrate system buffered with sodium bicarbonate. **Clays Clay Miner.**, **7**, 317-327.
- MEIWES K.J. et KHANNA P.K., 1981 - Distribution and cycling of sulphur in the vegetation of two forest ecosystems in an acid rain environment. **Plant and Soil**, **60**, 369-375.
- MEIWES K.J., KHANNA P.K. et ULRICH B., 1980 - Retention of sulphate by an acid brown earth and its relationship with the atmospheric input of sulphur to forest vegetation. **Z. Pflanzenern. Bodenkd.**, **143**, 402-411.
- MELILLO J.M., 1981 - Nitrogen cycling in deciduous ecosystems. *In* : **Terrestrial nitrogen cycles**, F.E. Clark et T. Rosswall (Eds), Ecol. Bull., Stockholm, **33**, 427-442.
- MILLER H.G. et MILLER J.D., 1980 - Collection and retention of atmospheric pollutants by vegetation. Proc. Int. Conf. Ecol. impact acid precip., Norway, SNSF project.
- MULDER J., 1988 - **Impact of acid atmospheric deposition on field monitoring and aluminium chemistry**. Doctoral thesis. Agricultural University, Wageningen, The Netherlands, 164p.
- MULDER J., VAN GRINSVEN J.J.M., VAN BREEMEN N., 1987 - Impacts of acid atmospheric deposition on woodlands soils in the Netherlands. III. Aluminium chemistry. **Soil Sci. Soc. Am. J.** **51**, 1640-1646.
- MURACH D., 1984 - Die Reaktion der Feinwurzeln von Fichten (*Picea abies* L. Karst.) auf zunehmende Bodenversauerung. **Gött. Bodk. Ber.**, **77**, 1-126.
- MYERS R.J.K., CAMBELL C.A. et WEIER K.L., 1982 - Quantitative relationship between net nitrogen mineralization and moisture content of soils. **Can. J. Soil Sci.**, **62**, 111-124.
- MYERS R.G., SWALLOW C.W., KISSEL D.E., 1989 - A method to secure, leach and incubate undisturbed soil cores. **Soil Sci. Soc. Am. J.**, **53**, 467-471.
- NADELHOFFER K.J., ABER J.D. et MELILLO J.M., 1984 - Seasonal patterns of ammonium and nitrate uptake in nine temperate forest ecosystems. **Plant and Soil**, **80**, 321-335.
- NADELHOFFER K.J., ABER J.D. et MELILLO J.M., 1985 - Fine roots, net primary production and soil nitrogen availability : a new hypothesis. **Ecology**, **66**, 1377-1390.
- NEAL C., 1988 - Aluminium solubility relationships in acid waters. A practical example of the need for a radical reappraisal. **J. Hydrol.**, **104**, 141-159.

- NEITZKE M., 1990 - Stickstoffernährung und Al-Toxizität bei Buchenjungepflanzen. II. Mineralstoffgehalte junger Buchen in Abhängigkeit von der Form der Stickstoffernährung und dem Al-Gehalt der Nährlösung. **Z. Pflanzenern. Bodenkde**, **153**, 229-234.
- NILSON J., 1986 - **Critical loads for nitrogen and sulphur**. Nordic Council of Ministers. Report 86 : 11, 232p.
- NOBLE A.D., FEY M.V. et SUMNER M.E., 1988a - Calcium-aluminum balance and the growth of soybean roots in nutrient solutions. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **52**, 1651-1656.
- NOBLE A.D., SUMNER M.E. et ALVA A.K., 1988b - The pH dependency of aluminum phytotoxicity alleviation by calcium sulfate. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **52**, 1398-1402.
- NOBLE A.D. et SUMNER M.E., 1988 - Calcium and Al interactions and soybean growth in nutrient solutions. **Communications in Soil Science and Plant Analysis**, **19**, 1119-1131.
- NORDSTROM D.K. et MAY H.M., 1989 - Aqueous equilibrium data for mononuclear aluminium species. *In* : "**Environmental chemistry of aluminium**". G. Sposito (ed.), CRS Press.
- NOVDIN S.C., DRISCOLL C.T. et LIKENS G.E., 1986 - The effect of pH on sulphate adsorption by a forest soil. **Soil Science**, **142**, 69-75.
- NYS C., 1987 - **Fonctionnement du sol d'un écosystème forestier : étude des modifications dues à la substitution d'une plantation d'Epicéa commun (*Picea abies*) à une forêt feuillue mélangée des Ardennes**. Thèse de doctorat d'état ès Sciences Naturelles, Université de Nancy I, 207pp.
- NYS C., 1989 - Fertilisation, dépérissement et production de l'épicéa commun dans les Ardennes. **Rev. For. Fr.**, **41**, 336-347.
- NYS C., STEVENS P. et RANGER J., 1990 - Sulphur nutrition of forest examined using a sulphur budget approach. *In* : **Nutrient cycling in terrestrial ecosystems**, A.F. Harrison, P. Ineson et O.W. Heal (Eds), Elsevier Applied Science, p 356-372.
- OWNBY J.D. et POPHAM H.R., 1989 - Citrate reverses the inhibition of wheat root growth caused by aluminium. **J. of Plant Physiol.**, **135**, 581-582.
- PACES T., 1985 - Sources of acidification in Central Europe estimated from elemental budget in small basins. **Nature**, **315**, 31-36.
- PAN W.L., HOPKINS A.G. et JACKSON W.A., 1989 - Aluminum inhibition of shoot lateral branches of Glycine max and reversal by exogenous cytokinin. **Plant and Soil**, **120**, 1-9.
- PARFITT R.L., 1978 - Anion adsorption by soils and soil materials. **Advances in Agronomy**, **30**, 1-50.

- PARKER D.R., KINRAIDE T.B. et ZELAZNY L.W., 1988a - Aluminum speciation and phytotoxicity in dilute hydroxy-aluminum solutions. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **52**, 438-444.
- PARKER D.R., KINRAIDE T.B. et ZELAZNY L.W., 1989 - On the phytotoxicity of polynuclear hydroxy-aluminum species. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **53**, 789-796.
- PAVAN M.A. et BINGHAM F.T., 1982 - Toxicity of aluminium to coffee seedlings grown in nutrient solution. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **46**, 993-997.
- PAVAN M.A. BINGHAM F.T. et PRATT P.F., 1982 - Toxicity of aluminum to coffee in ultisols and oxisols amended with CaCO_3 and $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ in solution. **Soil Sc. Soc. Amer. J.**, **46**, 1201-1207.
- PETTERSON S. et STRID H., 1989 - Effects of aluminium on growth and kinetics of K^+ (^{86}Rb) uptake in two cultivars of wheat (*Triticum aestivum*) with different sensitivity to aluminium. **Physiologia Plantarum**, **76**, 255-261.
- PROBST A. et DAMBRINE E., 1988 - Fonctionnement et bilans hydrogéochimiques comparés des bassins versants d'Aubure (Vosges) et du Mont-Lozère (Massif-Central). Journées de travail DEFORPA, Nancy, 24-26 février 1988.
- RAISON R.J., CONNELL M.J. et KHANNA P.K., 1987 - Methodology for studying fluxes of soil mineral-N *in situ*. **Soil Biol. Biochem.**, **19**, 521-530.
- REITER H., ALCUBILLA M. et REHFUESS K.E., 1983 - Standortskundliche studien zum tannensterben : ausbildung und mineralstoffgehalt der wurzeln von gesundheitszustand und boden. **Allg. Forst. Jagd. Zeit.**, **154**, 82-92.
- REHFUESS K.E., 1987 - Perceptions on forest diseases in Central Europe. **Frestry**, **60**, 1-11.
- REUSS J.O. et JOHNSON D.W., 1986 - **Acid deposition and the acidification of soils and waters**. Ecological studies n° 59, Springer-Verlag, New-York, 119p.
- RHUE R.D. et GROGAN, 1977 - Screening corn for Al tolerance using different Ca and Mg concentrations. **Agron. J.**, **69**, 755-760.
- ROST-SIEBERG K., 1983 - Aluminium toxität und toleranz an keimpflanzen von fichte (*Picea abies* Karst.) und buche (*Fagus silvatica* L.). **Allg. Forstzshr.**, **38**, 686-689.
- ROUILLER J., GUILLET B. et BRUCKERT S., 1980 - Cations acides échangeables et acidités de surface : approche analytique et incidences pédogénétiques. **Science du Sol**, **2**, 161-175.
- ROY A.K., SHARMA A. et TALUKDER G., 1988 - Some aspects of aluminium toxicity in plants. **The Botanical Review**, **54**, 145-178.

- RUSSEL E. W., 1973 - The nitrogen cycle in the soil, *in Soil conditions and plant growth* - 10th Edit., Longman Group Limited Publisher, New-York, 849p.
- RYAN P.S., GESSEL S.P. et ZASOSKI R.J., 1986a - Acid tolerance of Pacific North West conifers in solution culture. I. Effect of high aluminum concentration and solution acidity. *Plant and Soil*, **96**, 239-257.
- SAFFIGNA P.G., 1987 - ^{15}N methodology in the field. *In : Advances in nitrogen cycling in agricultural ecosystems*. J.R. Wilson (Ed), Brisbane, Australia..
- SCHAEDLE M., THORNTON F.C., RAYNAL D.J. et TEPPER H.B., 1989 - Response of tree seedlings to aluminum. *Tree Physiology*, **5**, 337-356.
- SCHECHER W.D. et DRISCOLL C.T., 1987 - An evaluation of uncertainty associated with aluminum equilibrium calculations. *Water Resources Research*, **23**, 525-534.
- SCHINDLER S.C. et MITCHELL M.J., 1987 - Dynamics of ^{35}S in horizons and leachates from a hardwood forest spodosol. *Soil Biol. Biochem.*, **19**, 531-538.
- SCHMIDT E.L., 1973 - Fluorescent antibody techniques for the study of microbial ecology. *Bull. Ecol. Res. Commun. (Stockholm)* **17**, 67-76.
- SCHMIDT E.L., 1982 - Nitrification in soil, *in Nitrogen in agricultural soils*, : F.S. Stevenson (ed.), Agronomy monograph n° 22, 940p.
- SCHULZE E.D., 1989 - Air pollution and forest decline in a spruce (*Picea abies*) forest. *Science*, **244**, 776-783.
- SCHWERTMANN U., 1964 - Differenzierung der eisenoxide des bodens durch extraktion mit ammoniumoxalat-lösung. *Z. Pflanzenern. Bodenkde*, **105**, 195-202.
- Secrétariat d'état à l'environnement et à la qualité de la vie, 1984. - **Livre Blanc sur les pluies acides : première approche scientifique du problème en France.**
- SEGALEN, 1973 - **L'aluminium dans les sols**. Initiation-documentations techniques n° 22, ORSTOM, 281p.
- SERNA C.J., WHITE J.L. et HEM S.L., 1977 - Anion aluminium hydroxide gel interactions. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **41**, 1009-1013.
- SHAMSI F. , 1968 - **Les climats de la France de l'est**. Thèse de 3ème cycle, Fac. de Lettres et Sciences Humaines, Strasbourg.
- SHILOVA Y.E., 1955 - Method of obtaining a soil solution under natural conditions. *Pochvovedeniye*, n° 11.
- SMETHURST P.J. et NAMBIAR E.K.S., 1989 - An appraisal of the *in situ* soil-core technique for measuring nitrogen uptake by a young pinus radiata plantation. *Soil Biol. Biochem.*, **21**, 939-942.

STANFORD G., FRERE M.H. et SCHWANINGER D.H., 1973 - Temperature coefficient of soil nitrogen mineralization. **Soil Science**, **115**, 321-323.

STANFORD G. et SMITH S.J., 1972 - Nitrogen mineralization potential in soils. **Soil Sc. Soc. Amer. Proc.**, **36**, 465-472.

STEVENSON F. J., KIDDER G. et TILO S.N., 1967 - Extraction of organic nitrogen and ammonium from soil with hydrofluoric acid. **Soil Sci. Soc. Am. Proc.**, **31**, 71-76.

STUMM W. et MORGAN J.J., 1981 - **Aquatic chemistry**. John Wiley and sons, New York, 780 p.

SWAIN J.S., 1956 - **Chemistry and Industry**, 418.

TABATABAI M.A., 1982 - Sulphur. *In* : **Methods of soil analysis**, Part 2, 2nd edn., A.L. Page *et al.* (eds), Soil Sci. Soc. of Am., Madison, WI, 501-538.

TABATABAI M.A. et AL-KHAFABI A.A., 1980 - Comparison of nitrogen and sulfur mineralization in soils. **Soil Sci. Soc. Am. J.**, **44**, 1000-1006.

TAN K.H. et BINGER A., 1986 - Effect of humic acid on aluminum toxicity in corn plants. **Soil Science**, **141**, 20-25.

TANAKA A., TADANO T., YAMAMOTO K. et KANAMURA N., 1987 - Comparison of toxicity to plants among Al^{3+} , $AlSO_4^+$ and $Al-F$ complex ions. **Soil Sci. Plant Nutr.**, **33**, 43-55.

THOMPSON G.W. et MEDVE R.J., 1984 - Effects of aluminium and manganese on the growth of ectomycorrhizal fungi. **Appl. Environm; Microbiol.**, **48**, 556-560.

THORNTON F.C., SCHAEDELE M. et RAYNAL D.J. , 1987 - Effects of aluminum on red spruce seedlings in solution culture. **Environmental and Experimental Botany**, **27**, 489-498.

TIETEMA A. et VERSTRATEN J.M., 1988 - The nitrogen budget of an oak-beech forest ecosystem in the Netherlands in relation to atmospheric deposition. Dutch Priority Programme on Acidification. Report n° 04-01, 55p.

TIETEMA A., DUYSINGS J.J.H.M., VERSTRATEN J.M. et WESTERVELD J.W., 1990 - Estimation of actual nitrification rates in an acid forest soil. *In* : **Nutrient cycling in terrestrial ecosystems**, A.F. Harrison, P. Ineson et O.W. Heal (Eds), Elsevier Applied Science, 190-197.

TURNER J., JOHNSON D.W. et LAMBERT M.S., 1980 - Sulphur cycling in a douglas-fir forest and its modification by nitrogen applications. **Acta Oecologica, Oecol. Plant.**, **1**, 27-35.

UGOLINI F.C., DAHLGREN R., SHOJI S. et ITO T., 1988 - An exemple of andosolization and podzolization as revealed by soil solution studies, Southern Hakkoda, Northeastern Japan. **Soil Science**, **145**, 111-125.

ANNEXE 1a

SOL BRUN ACIDE DU HAUT-JACQUES

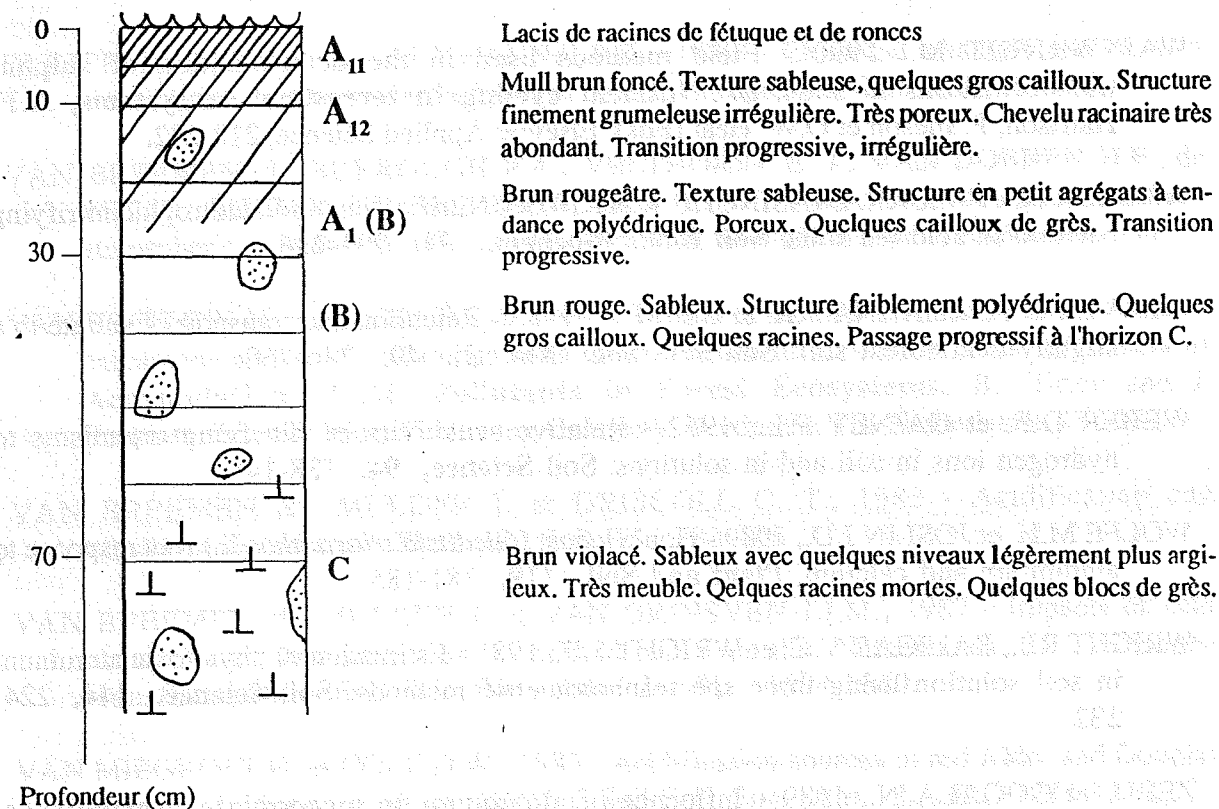
I.G.N. 1/25 000 - SAINT-DIE 5-6 - Col du Haut-Jacques (88) - E : 6°51' - N : 48° 17' - Altitude 600 m.

Topographie : Plateau - Pente faible vers le nord-ouest.

Roche-mère : Grès intermédiaire.

Végétation : Sapinière à hêtre. Tapis herbacé du mull acide : *Festuca silvatica*, *Rubus sp.*

Profil :



Analyses de caractérisation :

Horizons	pH H2O	CEC pH _{sol}	Ca	Mg	K	Na	Mn	Al éch.	Bases	SG	SF	LG	LF	A	C	N	Fe (1)	Al (1)	Fe (2)	Al (2)
			me/100g (a)						% CEC		% sol			%		% _∞ sol				
A11 (0-5 cm)	4,1	4,5	0,63	0,13	0,2	0,03	0,89	2,1	22,2	49	20	3	7	6	5,3	0,29	1,3	0,9	3,8	0,7
A12 (5-15)	4,3	4,2	0,27	0,09	0,16	0,05	0,85	2,3	13,6	50	24	4	9	8	2	0,12	1,3	0,9	3,5	0,8
A1(B) (15-30)	4,6	2,6	0,1	0,04	0,1	0,03	0,52	1,5	10,5	52	24	4	8	8	0,6	0,04	1,2	1,2	3,7	1,3
(B) (30-40)	4,8	2,1	0,1	0,03	0,1	0,02	0,25	1,3	12	54	24	4	8	8	0,3	0,02	1,1	1,2	3,3	1,2
C (80-100)	4,6	3,4	0,09	0,03	0,16	0,08	0,06	2,7	10,5	51	17	6	11	13			1,3	1,1	6,7	1,1

(1)Extraction par le tampon oxalate (Schwertmann, 1964)

(2)Extraction par le tampon citrate-bicarbonate-dithionite de sodium (Mehra et Jackson, 1960)

(a)Rouiller et al. (1980).

ANNEXE 1b

SOL BRUN ACIDE DE LA CHIPOTTE

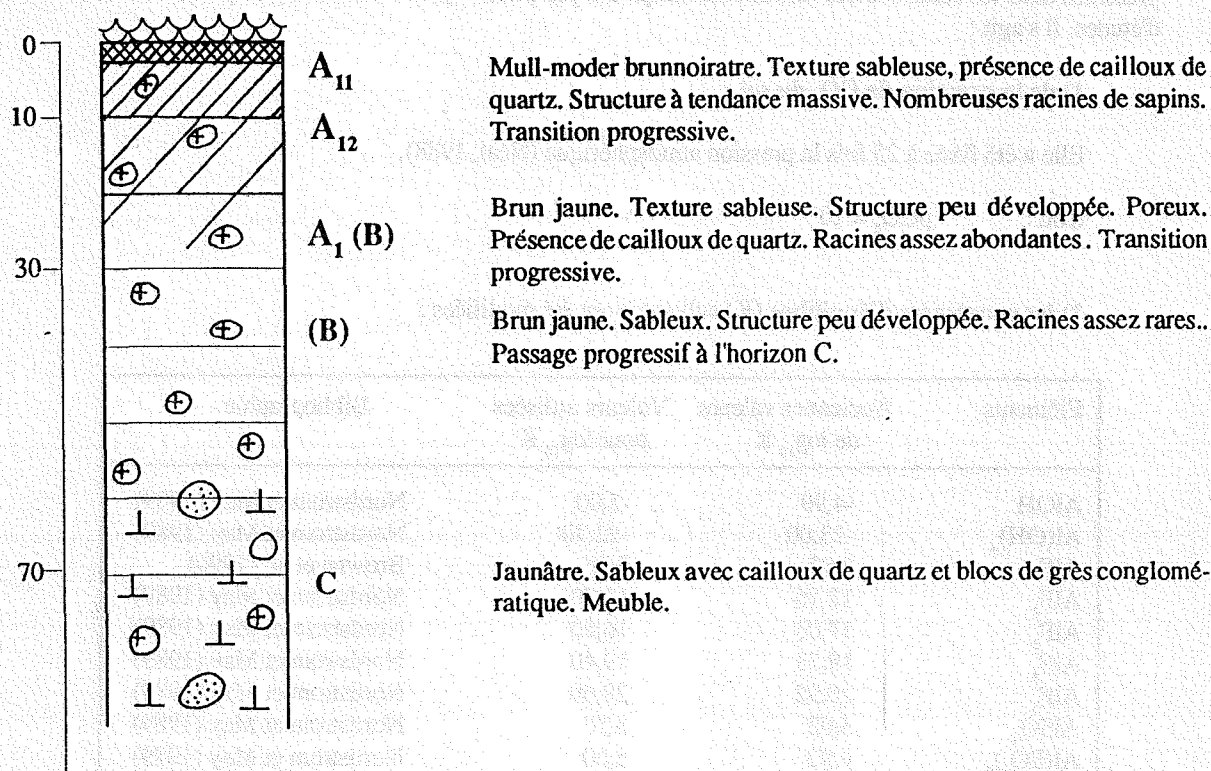
I.G.N. 1/50 000 - RAMBERVILLERS - Saint Benoît la Chipotte (88) - E : 6°46' - N : 48° 22' - Altitude 460 m.

Topographie : Plateau.

Roche-mère : Grès vosgien.

Végétation : Sapinière. Tapis herbacé du mull-moder : *Rubus sp*, *Deschampsia flexuosa*, mousses.

Profil :



Profondeur (cm)

Analyses de caractérisation :

Horizons	pH H2O	CEC pH _{sol}	Ca	Mg	K	Na	Mn	Al éch.	Bases SG	SF	LG	LF	A	C	N	Fe (1)	Al (1)	Fe (2)	Al (2)	
			me/100g (a)							% CEC	% sol				%	% _∞ sol				
A11 (0-5 cm)	3,9	4,7	0,23	0,09	0,27	0,03	0,1	3,6	15,3	58	10	5	14	12	5,8	0,30	1,7	1,1	3,6	0,8
A12 (5-15)	4,1	4,0	0,04	0,03	0,05	0,05	0,01	3,4	7,2	61	7	6	13	12	2,2	0,08	2,3	2,1	4,2	0,6
A1(B) (15-30)	4,2	2,4	0,05	0,02	0,04	0,03	0	2,1	7,9	60	7	6	15	12	1,1	2	2,3	4	1,8	
(B) (30-60)	4,3	2,1	0,03	0,02	0,04	0,02	0	1,8	7,6	59	8	6	15	13	0,6	1,8	2	4,2	1,6	
C (100-130)	4,4	3,4	0,1	0,04	0,08	0,08	0	3,0	7,6	59	12	5	13	11	0,1	1,7	1,1	4	1	

(1)Extraction par le tampon oxalate (Schwertmann, 1964)

(2)Extraction par le tampon citrate-bicarbonate-dithionite de sodium (Mehra et Jackson, 1960)

(a)Rouiller et al. (1980).

ANNEXE 2

CALCUL DES ACTIVITES IONIQUES ET DE DIFFERENTS INDICES PAR LE PROGRAMME ALCHEMI.

• Divers paramètres utilisés par défaut par ALCHEMI pour calculer les différentes espèces chimiques présentes dans les solutions des sols ont été remplacés par d'autres plus récents ou plus proche des conditions d'études. Il s'agit :

1) de la pression de CO₂ du sol :

Elle a été fixée à 25 fois la pression atmosphérique (Neal, 1988),

d'où : $p\text{CO}_2 = 10^{-2,1}$

2) les constantes d'équilibre (K) suivantes ont été modifiées :

Eléments	Anciennes valeurs de log ₁₀ K	Valeurs utilisées pour log ₁₀ K	Bibliographie
AlOH	-4,99	-5,00	Nordstrom et May (1989)
Al(OH) ₄	-23,00	-22,70	Nordstrom et May (1989)
AlF	7,02	6,75	Browne et al. (1990)
AlF ₂	12,76	12,70	Nordstrom et May (1989)
AlF ₃	17,03	16,80	Nordstrom et May (1989)
AlF ₄	19,73	19,40	Nordstrom et May (1989)
AlF ₅	20,92	20,60	Nordstrom et May (1989)
AlSO ₄	3,02	3,50	Nordstrom et May (1989)
Al(SO ₄) ₂	4,92	5,00	Nordstrom et May (1989)

• L'activité des ions est calculée par la formule de Debye-Hückel :

$$\{\text{activité}\} = [\text{concentration en moles/l}] \cdot \text{coefficient d'activité}$$

$$\text{où coefficient d'activité} = 10^{\left(-\frac{A \cdot Z^2 \cdot I^{0,5}}{1 + (B \cdot a \cdot I^{0,5})}\right)}$$

avec : I = force ionique en moles/l ; Z = charge ionique de l'ion ; a = diamètre de l'ion hydraté en Angström x 10⁸ ; A et B = constantes.

A = 0,4883 et B= 0,3241 à 0 °C		a = 8 pour Mg ²⁺		a = 5,4 pour AlF ⁻	
0,4921	0,3249	5 °C	6 pour Ca ²⁺	5,4 pour AlF ²⁺	
0,4960	0,3258	10 °C	9 pour Al ³⁺	4,5 pour AlF ₂ ⁺	
0,5000	0,3265	15 °C	7 pour Al(OH) ²⁺	4,5 pour AlF ₄ ⁻	
0,5042	0,3273	20 °C	4,5 pour Al(OH) ₂ ⁺	4,5 pour AlSO ₄ ⁺	
0,5085	0,3281	25 °C	3,5 pour Al(OH) ₄ ⁻	4,5 pour Al(SO ₄) ₂ ⁻	
(des interpolations linéaires ont été faites pour les températures intermédiaires).					

(Kielland, 1937 ; Lindsay et al., 1959 ; Davies, 1962 ; Garrels et Christ, 1965 ; Fritz, 1981 ; Stumm et Morgan, 1981).

UNIVERSITE DE NANCY I

NOM DE L'ETUDIANT : BECQUER THIERRY

NATURE DE LA THESE : DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE NANCY I
EN PEDOLOGIE

VU, APPROUVE ET PERMIS D'IMPRIMER

NANCY, le - 4 MARS 1991 ~ 92

LE PRESIDENT DE L'UNIVERSITE DE NANCY I



THESE DE DOCTORAT D'UNIVERSITE

Université de Nancy I - UFR-STMP

Année 1991

DISCIPLINE : Sciences de la Terre - Pédologie

Auteur : Thierry BEQUER

Centre de Pédologie Biologique, C.N.R.S.

B.P. 5, 54501 VANDOEUVRE-LES-NANCY Cedex

RESUME

Cette thèse prend place dans le contexte des études effectuées sur le phénomène des "pluies acides". Les flux de sulfates et de nitrates ont été mesurés dans deux écosystèmes forestiers, l'un dépérissant, l'autre sain, afin de mettre en évidence les relations existant entre ces flux, l'acidification et la toxicité alumineuse.

Malgré un pH compris entre 4 et 5, la nitrification est importante dans les deux écosystèmes étudiés. La végétation consomme la totalité des nitrates présents durant sa saison d'activité, même dans le peuplement dépérissant. Ceci est tout à fait original et informe un certain nombre d'idées parfois exposées dans la littérature, qui attribuent le dépérissement forestier à une production de nitrates excédentaire par rapport aux possibilités de consommation de la végétation. Le lessivage des nitrates ne se produit, en réalité, que lorsque la végétation est en sommeil, et n'est donc effectif qu'en hiver. Ceci détermine l'existence d'une phase d'acidification due à la non neutralisation des protons issus de la nitrification.

Cette acidification saisonnière issue des processus biologiques normaux internes au sol est renforcée par le rythme des apports exogènes en sulfates. Leur adsorption au cours de l'hiver limite fortement leur rôle dans l'acidification hivernale.

Les bilans saisonniers de protons, calculés à partir des différentes composantes des cycles de l'azote et du soufre, indiquent l'existence d'une phase d'acidification nette hivernale, qui se trouve être en majeure partie compensée, à l'échelle annuelle, par l'apparition d'une phase d'alcalinisation estivale. L'établissement d'un indice de toxicité, calculé à partir de la composition chimique des eaux de gravité du sol, montre qu'à la phase hivernale d'acidification correspond, dans l'écosystème dépérissant, une toxicité alumineuse importante. Cette situation est susceptible d'expliquer en partie les symptômes de dépérissement observés.

Mots-clés : *Dépérissement forestier, Pollution atmosphérique, Nitrates, Sulfates, Bilans de protons, Acidification, Toxicité alumineuse.*

