

Dynamique d'éléments traces dans les précipitations sous le couvert de 2 pessières peu polluées de Suisse romande

O Atteia ¹, É Dambrine ²

¹ IATE-Pédologie, École polytechnique fédérale de Lausanne, Ecublens, 1015 Lausanne, Suisse ;

² CFR-INRA, laboratoire des sols forestiers, 54280 Champenoux, France

(Reçu le 16 décembre 1992; accepté 26 février 1993)

Résumé — Ce travail présente la composition des précipitations hors et sous couvert dans 2 pessières de Suisse romande situées dans des environnements très distincts. Le calcul de la différence entre les flux d'éléments déposés sous couvert et hors couvert permet de séparer les éléments dont les flux augmentent fortement lors de leur traversée des houppiers (Mn et Rb), des éléments légèrement enrichis (Sr et Ba), des éléments peu influencés par ce phénomène (V, Cr, Ni, Zn et Pb) et des éléments retenus par les aiguilles (B et Fe). L'analyse de la structure chimique des solutions montre que le passage dans les houppiers induit de très nettes corrélations entre les éléments dans les solutions. Cet effet est attribué aux apports acidifiants et à l'équilibre chimique des solutions à la surface des aiguilles. Il est donc difficile de différencier la part des apports par les dépôts secs et par la récréation grâce à cette technique. Néanmoins, sur ces sites peu pollués, il est clair que les concentrations de la plupart des métaux lourds dans les pluiolessivats sont peu influencées par les dépôts secs. Ceci est attribué à la faible pollution des sites. À l'inverse l'enrichissement en Rb est principalement dû au recyclage biologique et les concentrations de Mn et Ba sont fortement influencées par ce phénomène. Sr, comme Ca, semble être concentré par les deux phénomènes : dépôts secs et récréation. Nous avons constaté la rétention de B et Fe sur les houppiers.

traces / éléments minéraux / précipitation / pluiolessivats / dépôt atmosphérique / épicéa / Suisse

Summary — Trace element dynamics in throughfall of 2 spruce forests of French Switzerland, with low pollution levels. The chemical composition of rainfall and throughfall of 2 sites located in very different environments in Switzerland are compared. Calculation of the flux ratios from rainfall and throughfall leads to a differentiation between elements which are highly concentrated when passing through the tree crowns (Mn and Rb), slightly enriched elements (Sr and Ba), elements unaffected by this phenomenon (V, Cr, Ni, Zn and Pb) and element retained by the needles (B and Fe). Analysis of the multielemental chemical structure of solution shows that tree crown induces clear correlations between element concentrations. This effect is attributed to the input of acidifying anions and to the existence of a chemical equilibrium on the needle surface. It is therefore difficult to differentiate between dry deposition input and recreation. Nevertheless it is evident that the concen-

trations of most of the heavy metals are not influenced by dry deposition. This could be due to the low pollution level at these sites. Conversely, Rb enrichment is mainly due to biological cycling and Mn and Ba concentrations are highly modified by this phenomenon. Sr, like Ca, seems to be enriched by 2 different phenomena: dry deposition and recreation. We found some retention of Fe and B on the tree crowns.

trace elements / mineral elements / precipitation / throughfall / atmospheric deposition / spruce / Switzerland

INTRODUCTION

De nombreuses études portant sur le dépôt d'éléments minéraux hors et sous couvert forestier ont été développées au cours de la dernière décennie, dans le but de quantifier l'importance de ces apports, sur le plan nutritif (Ellis *et al*, 1983) comme sur celui de la pollution (Canter, 1986). Dans ces deux domaines, il est apparu que ces apports variaient considérablement sur le plan spatial (Kostelnik *et al*, 1989) et que leur importance était souvent primordiale pour l'évolution de la fertilité des sols forestiers (Marschner, 1986). Cependant, d'une part, la quantification de ces apports s'est avérée difficile, tout particulièrement pour ceux déposés sous forme occulte, et, d'autre part, les investigations ont essentiellement porté sur les éléments majeurs et peu sur les éléments traces. Si les dépôts humides présentent peu de difficultés de mesure, les dépôts secs ou occultes sont difficiles à quantifier car on ne dispose pas de capteurs présentant les caractères aérodynamiques et les propriétés de surface d'un couvert forestier (Ibrahim *et al*, 1983). Par ailleurs la modélisation de ces dépôts nécessite la mesure de nombreux paramètres, dont les valeurs sont variables en fonction du site d'étude (Greenfelt *et al*, 1978). La difficulté a été contournée par plusieurs auteurs qui ont utilisé les flux d'éléments sous couvert comme indicateur du dépôt atmosphérique

total. En fait ce flux est la résultante de plusieurs phénomènes.

i) Dépôt humide. Une partie des précipitations, temporairement stockée sur les aiguilles ou les feuilles, s'évapore ; ce phénomène est l'interception. La pluie suivante sera ainsi enrichie des éléments minéraux restés sur le feuillage (Veen et Dolman, 1989). L'interception a donc une action directe sur les teneurs en éléments minéraux des précipitations sous couvert par concentration relative. Elle ne modifie pas les flux d'éléments déposés.

ii) Lessivage par les précipitations humides de dépôts secs ou occultes accumulés à la surface des feuilles (Garland, 1979 ; Ivens *et al*, 1989). La surface et la rugosité du couvert forestier entraînent l'impaction et l'adsorption sur les feuilles de substances présentes dans l'air sous forme d'aérosol, de particule ou de gaz. Sur les sites pollués, ces dépôts peuvent composer la majorité du dépôt total (Godt *et al*, 1986).

iii) Absorption d'éléments d'origine atmosphérique par les arbres (Hoffmann *et al*, 1980). Les possibilités d'absorption dépendent de l'élément et des besoins de la plante en l'élément considéré (Swank, 1984).

iv) Rétention physique de particules, ou rétention chimique d'ions par les cires cuticulaires ; ce phénomène est mal connu jusqu'à présent (Grosch, 1986).

v) Lessivage de produits récrétés par les houppiers naturellement ou sous l'action des dépôts atmosphériques (Tukey et Witt-

ner, 1957). Ce lessivage est soumis aux équilibres chimiques advenant dans la fine couche d'eau présente à la surface des aiguilles (Ulrich, 1983 ; Cronan et Reiners, 1983).

La contribution relative de chacun de ces phénomènes au dépôt sous couvert est approximativement connue pour certains éléments. Ainsi Na, Cl, SO₄ et NO₃ ne sont pas absorbés par l'arbre, ni retenus à la surface des feuilles, ni récrétés (Lindberg *et al*, 1982 ; Garten *et al*, 1988), de sorte que le flux sous couvert totalise le dépôt humide et les dépôts secs et occultes. À l'inverse K est intensément récrété tandis que les métaux lourds comme Pb, Cu ou Cr s'accumulent à la surface des feuilles. L'acidité de la solution au contact des feuilles favorise la récrétion de Ca et Mg (Horntvedt *et al*, 1980), cependant des dépôts secs substantiels de ces éléments ont été mesurés ou calculés (Lindberg *et al*, 1982 ; Bredemeier, 1988). Ces travaux ont principalement concerné les éléments majeurs, le comportement des éléments traces a été très peu étudié excepté celui des métaux lourds comme Ni, Zn, Pb, Cu et Cd (Heinrichs et Mayer, 1980), largement émis dans l'atmosphère par de nombreuses activités humaines.

Cet article présente les dynamiques d'éléments traces en relation avec celles des éléments majeurs, lors de la traversée des précipitations à travers les houppiers. Sont considérés comme éléments traces ceux dont les concentrations moyennes sont généralement inférieures à 100 µg/l. Parmi ceux ci : (i) des métaux dont la concentration varie fortement en fonction de l'environnement : Mn et Fe ; (ii) des métaux lourds : V, Cr, Ni, Cu, Zn et Pb ; (iii) des alcalins et alcalino-terreux : Rb, Sr et Ba ; et (iiii) un métalloïde : B. Les éléments (terres rares, autres métaux lourds) dont les concentrations sont inférieures à 1 µg/l dans les solutions analysées n'ont pas été étudiés.

MATÉRIEL ET MÉTHODES

Site (fig 1)

Le site de «Lutry»

Il est situé à 15 km au nord de Lausanne à une altitude de 900 m. Le substrat géologique est constitué de molasse burdigalienne, couverture fortement représentée sur le plateau suisse. Le sol est un sol brun acide (Dystric Cambisol) dont le pH eau est de 3,8 en surface, de 4,5 entre 10 cm et 1,4 m de profondeur, le front de décarbonatation est atteint à 2,5 m. La pluviométrie annuelle moyenne est de 1 250 mm. Des traces discrètes (concrétions) d'hydromorphie témoignent de la remontée hivernale de la nappe jusqu'à la surface du sol (Atteia, 1992). Il s'agit d'une plantation d'épicéa de 80 à 100 ans, d'environ 35 m de hauteur dominante. Sa productivité est de 10 à 14m³/ha. Le sous-bois est occupé par des ronces (*Rubus* sp). Le peuplement se trouve dans une zone d'élevage et d'exploitation forestière, les activités agricoles étant peu intensives.

Le site «Jura»

Il est situé à 1 360 m d'altitude près du mont Tendre (Suisse), loin de toute zone d'habitation. La roche sous-jacente est un calcaire dur du Jurassique (Kimmeridgien). Le sol est un sol brun calcique peu profond (20 à 25 cm) L'horizon de contact entre sol et roche-mère est constitué en majorité de cailloux calcaires de taille centimétrique. Ce site est proche de la limite altitudinale de la forêt dans le Jura. Aussi, cette forêt mixte, composée de hêtres, de sapins et d'épicéas, présente une croissance très lente, la productivité annuelle ne dépassant pas 4 m³/ha. La forêt n'est pas exploitée, le sous-bois est formé de quelques rares buissons. À proximité se trouvent des pâtures estivales extensivement parcourues par des bovins. Le site sous couvert se trouve sous un bouquet d'épicéa d'une vingtaine de mètres de haut en moyenne.

Matériel de prélèvement

Hors couvert, un collecteur par site, formé par un entonnoir en polyéthylène de 30 cm², est

placé dans une clairière à proximité immédiate du site sous couvert. Sous le couvert forestier, le système de prélèvement est constitué de trois gouttières hémicylindriques en polyéthylène, de 2 m de long et 10 cm de large, disposées en éventail. La disposition des gouttières est effectuée de manière à refléter approximativement la proportion de trouées dans le couvert. Dans le site Jura, les collecteurs ont été placés exclusivement sous un couvert d'épicéa. Une faible pente permet l'évacuation des eaux vers un récipient. L'utilisation de gouttières permet une bonne intégration de la variabilité spatiale quantitative et qualitative des pluviollessivats (Kostelnik *et al*, 1989).

Les 2 types de collecteurs sont reliés à un même type de dispositif de stockage des solutions (réservoir de 30 l en polypropylène enterré dans le sol) par un tuyau en silicone. Tous les matériaux utilisés ont subi des tests d'inertie chimique et ont été rincés à l'acide nitrique 10% et à l'eau déminéralisée avant installation.

Période d'échantillonnage

L'intervalle d'échantillonnage est déterminé en fonction de l'estimation des quantités de pluies

reçues sur le site, il peut ainsi varier d'une semaine à un mois.

Sur le site du Jura, nous disposons de 22 campagnes de mesure comprenant des échantillons de pluie et de pluviollessivat, sur une période de 20 mois (du 15 février 1990 au 15 octobre 1991). Sur le site de Lutry, nous disposons de 30 campagnes sur la même période pour les pluviollessivats et de 12 campagnes étalées sur 7 mois depuis le 1^{er} mars 1991 pour les pluies. Ce facteur est pris en compte dans l'exploitation des résultats.

Techniques analytiques

Après le prélèvement, les échantillons sont filtrés (0,45 μm) puis acidifiés avec de l'acide nitrique suprapur 0,2% et conservés à +4°C en vue de l'analyse des cations. Les échantillons sont congelés directement après filtration en vue de l'analyse des anions.

Les éléments traces, ainsi que certains éléments majeurs (Ca, Al, B, V, Cr, Ni, Co, Fe, Mn, Cu, Zn, Rb, Sr, Ba, Pb), sont analysés par une ICP-MS (*inductively coupled plasma-mass spec-*

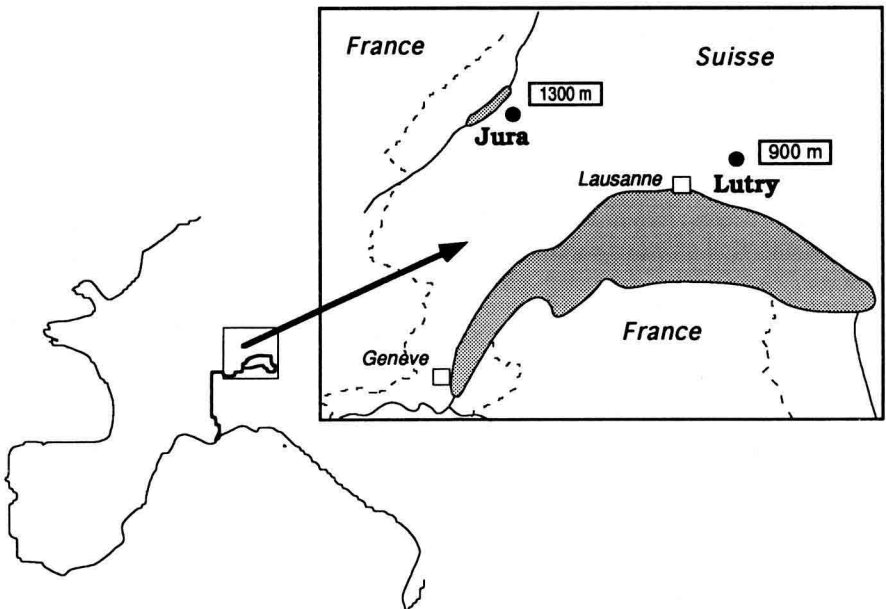


Fig 1. Localisation des sites.

trometer, VG Plasmaquad), en utilisant l'Yttrium comme standard interne. Dans un but comparatif, les éléments majeurs (Ca, Si, Mg, K, Na, Al) sont analysés avec un DCP-AES (ARL Spectraspan II) en présence de 2% de LiCl (500 ppm) afin de minimiser les différences d'absorption entre alcalins et alcalino-terreux. Une partie des analyses de sulfates (sous forme S) a été réalisée en ICP (Jobin-Yvon 38+), une autre partie a été effectuée en chromatographie ionique avec suppresseur (Sykam); les résultats montrent une bonne concordance, avec une erreur inférieure à 10%. Les anions (NO_3 , NH_4 , Cl) sont analysés par colorimétrie automatique (Autoanalyser Technicon). La précision des analyses, établie par des comparaisons inter-laboratoires ou inter-séries pour certains éléments, est inférieure ou égale à 10% pour la plupart des éléments; seule l'erreur sur Fe est supérieure à 10% (de l'ordre de 20 à 30%). Pour les éléments dont les concentrations sont inférieures à 2 ou 3 $\mu\text{g/l}$ (Co, Cr, V), l'erreur absolue est inférieure à 1 $\mu\text{g/l}$ (Atteia, 1992).

RÉSULTATS

Apports d'éléments hors couvert

Les flux annuels d'éléments minéraux hors couvert sur les deux sites sont présentés dans le tableau I. Les valeurs obtenues concernant les éléments traces sont faibles puisque seuls les flux moyens de Zn dépassent 100 g/ha/an sur les deux sites. Nous avons comparé les flux de V, Mn, Ni, Cu, Zn et Pb mesurés sur un réseau étendu couvrant la majorité de la Suisse romande aux flux cités dans les revues bibliographiques de Bergkvist *et al* (1989) et Galloway *et al* (1982) (tableau II); les données concernant les autres éléments étant rares. Cette analyse est développée sur une plus vaste échelle par

Tableau I. Flux annuels d'éléments majeurs et traces dans les précipitations hors couvert des sites "Jura" et "Lutry".

<i>Kg/ha/an</i>	<i>Si</i>	<i>Ca</i>	<i>Cl</i>	<i>Na</i>	<i>S-SO₄</i>	<i>N-NO₃</i>	<i>Mg</i>	<i>K</i>
J hc 1	7.66	5.4	5.61	2.17	6.77	4.85	0.14	1.79
J hc2	11.3	6.17	4.8	1.05	6.9	4.89	0.11	3.49
L hc2	5.88	8.99	3.75	0.66	8.36	5.26	0.1	1.13

<i>g/ha/an</i>	<i>Fe</i>	<i>B</i>	<i>Ni</i>	<i>Zn</i>	<i>Pb</i>	<i>Cr</i>	<i>Cu</i>	<i>V</i>	<i>Sr</i>	<i>Ba</i>	<i>Mn</i>	<i>Rb</i>
J hc1	69.6	110	3.47	362	62.6	9.53	59.7	4.52	6.67	15.5	55.2	6.89
J hc2	75	56	5.98	346	67.9	16	84.5	5.7	18.8	14.6	68.1	10.9
L hc2	112	125	7.96	242	26	1.18	26.2	5.65	25.2	24.7	129	1.94

J symbolise Jura et L Lutry; 1 : période du 15 février 1990 au 15 octobre 1991 et 2 : période du 1^{er} mars 1991 au 15 octobre 1991.

Tableau II. Flux d'éléments minéraux dans les précipitations hors couvert comparées avec des données bibliographiques.

Kg/ha/an	Suisse romande	France Ouest	France Est	Autriche	Allemagne (Hesse)	Hollande	Finlande	NE USA
Réf.		1	1	2	3	4	5	6
S-SO ₄	4,6-8,6	4,8-6,4	18-24	7-15	12,3-21,9	6-70	3-10	3,3-10
N-NO ₃	4,4-7,5	0,8-2,4	3,8-6,2	3-7	4,5-7,7	5,6-34	1-3	

g/ah/an	Suisse romande	Sites reculés	Sites ruraux	Allemagne	Suède
Réf		7	7	8	8
V	4-6,7		10-500		
Cr	0,1-9,5	3	10-360	1,8-6	1,3-8
Mn	28-90	6	20-250		
Ni	0,1-8,4		10-500	4,5-42	1,8-12
Cu	6-54	1	20-230	11-86	7-40
Zn	77-406	1	40-820	90-410	100-318
Pb	4,3-51,6	0.8	19-246	60-390	60-150

Flux (kg/ha/an pour les majeurs et g/ha/an pour les traces) minimum et maximum sur les sites de "Suisse romande" étudiés, comparés à des valeurs provenant d'autres pays ; références : 1: Hennequin *et al*, 1984, 2: Smidt, 1988, 3: Bechtel *et al*, 1986, 4: Bresser, 1990, 5: Järvinen, 1986, 6: Summers *et al*, 1986, 7: Galloway *et al*, 1982, 8: Bergkvist *et al*, 1989

ailleurs (Atteia, 1993) mais les principales conclusions sont les suivantes : les flux de V, Mn, Ni et Pb sont inférieurs à ceux cités pour les sites ruraux allemands et pour les sites peu pollués du nord de la Suède. Par contre, les flux de Cu et Zn sont semblables à ceux cités par Bergkvist (1989) pour différents lieux de Suède. En ce qui concerne les éléments majeurs, les dépôts hors couvert de S-SO₄ et N-NO₃ sont faibles dans le Jura, respectivement 6 et 4 kg/ha/an, tandis que ceux mesurés à Lutry se situent à un niveau plus élevé (8,4 et 5,3 kg/ha/an) correspondant aux flux moyens mesurés dans les Vosges pendant la même période (Aschan *et al*, 1991). L'acidité moyenne des précipitations hors couvert est faible (pH 4,5 à Lutry et 5 dans le Jura). On note de même

des flux de Si déposés hors couvert relativement élevés (supérieurs à 6 kg/ha/an), probablement attribuables à des particules terrigènes. Nous sommes donc en présence de sites peu pollués dans le contexte européen.

Structure chimique des précipitations hors et sous couvert

Nous avons effectué des analyses en composantes principales (tableau III) afin de déterminer les structures chimiques des précipitations hors couvert, d'une part, et sous couvert, d'autre part (tous sites confondus). Sous couvert, le premier facteur explique 71% de la variance et trois facteurs suffisent pour expliquer 92% de la

variance, alors que, hors couvert, il faut 6 facteurs pour expliquer 90% de la variance. Les projections des éléments sur les axes factoriels sont plus dispersées hors couvert que sous couvert. Hors couvert, 3 éléments sont nettement reliés aux axes principaux, alors que ce nombre est de 16 sous couvert. Ainsi, le passage à travers le couvert forestier structure nettement la composition des solutions. Cette analyse conduit à différencier 3 groupes quasiment indépendants : (i) Rb - K, (ii) Na et Cl et enfin (iii) Sr, Zn, Ni, Pb, SO₄, Ca et NO₃. Pour compléter cette analyse, nous avons calculé les coefficients de corrélation entre les concentrations hors couvert et sous couvert pour tous les éléments.

Les coefficients de corrélations sont tous très faibles, mis à part ceux qui concernent Na et Cl.

Modification des flux d'éléments lors du passage sous couvert

L'interception, suivie de l'évaporation d'une fraction des précipitations retenues sur le couvert induit une élévation des concentrations dans les précipitations sous couvert. Afin d'éliminer cet effet, nous raisonnons en terme de flux d'élément, l'interception n'influençant pas ces flux. Les périodes de mesure n'ayant pas la même longueur sur

Tableau III. Analyse en composante principale sur la composition totale des solutions.

	<i>Pluies</i>					<i>Pluvio-lessivats</i>				
	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5
% var	33.6	24.1	11.8	10.0	9.1	71.0	11.6	9.5	3.8	2.2
% vcum	33.6	57.6	69.5	79.5	88.6	71	82.5	92	95.9	98
Ca	0.17	0.64	-0.44	0.38	0.41	0.93	-0.19	-0.02	0.26	0.19
Si	0.57	-0.53	0.04	0.49	0.04	0.89	0.18	0.4	0.11	0.03
Mg	-0.57	0.06	0.61	0.05	0.35	0.85	-0.43	0.12	0.26	0.02
K	-0.23	-0.33	0.66	0.31	0.48	0.91	-0.26	0.3	-0.14	-0.07
CL	0.82	0.23	0.21	0.36	-0.03	0.93	0.05	-0.16	-0.28	0.09
NO3	0.49	-0.14	-0.6	-0.42	0.29	0.97	0.23	0.03	-0.04	0.02
Na	0.51	-0.59	-0.06	-0.32	0.43	0.63	-0.63	0.23	-0.21	-0.31
SO4	0.25	0.48	-0.72	0.36	0.23	0.91	0.32	0.12	0.17	0.02
B	0.66	-0.56	-0.1	0.31	-0.21	0.93	0.19	0.28	-0.03	0.08
V	0.83	0.04	0.14	0.4	-0.02	0.92	0.34	0.03	0.02	-0.1
Cr	0.23	-0.60	-0.13	0.27	-0.33	0.93	0.16	-0.16	0.08	0.05
Fe	0.74	0.04	0.19	-0.56	0.27	0.89	0.17	0.27	0.23	-0.16
Mn	0.73	0.61	0.19	-0.03	-0.13	0.74	0.12	-0.59	-0.29	0.11
Ni	0.76	0.49	0.26	-0.16	-0.18	0.80	-0.42	-0.3	-0.27	0.05
Cu	0.52	-0.66	-0.13	-0.02	-0.29	0.94	0.17	0.21	-0.12	-0.09
Zn	0.77	0.43	0.37	0.07	-0.23	0.79	0.03	-0.59	0.05	-0.02
Rb	0.36	-0.55	0.14	0.26	0.59	0.90	-0.25	0.23	-0.23	-0.03
Sr	0.14	0.83	-0.07	0.14	0.38	0.92	-0.16	-0.12	0.17	0.27
Ba	0.68	0.41	0.27	-0.36	-0.02	-0.21	-0.94	0.12	0.14	0.18
Pb	0.66	-0.54	-0.1	-0.33	0.25	0.49	-0.23	-0.67	0.34	-0.34

Pour chaque facteur de l'ACP sont figurés le pourcentage de la variance expliquée par ce facteur (% var), le pourcentage cumulé (% vcum) et les corrélations entre les éléments et les facteurs ; si cette valeur est supérieure à 0,8, elle est représentée en caractères gras.

Tableau IV. Flux annuels d'éléments majeurs et traces dans les précipitations sous couvert des sites "Jura" et "Lutry".

<i>Kg/ha/an</i>	<i>Si</i>	<i>Ca</i>	<i>Cl</i>	<i>Na</i>	<i>S-SO₄</i>	<i>N-NO₃</i>	<i>Mg</i>	<i>K</i>
J sc1	0,7	8,77	10,2	3,41	7,84	8,16	0,96	11,8
L sc1	0,52	10,3	8,38	2,08	14	10,3	1,27	8,45
J sc2	1,18	9,32	4,73	1,5	22,3	8,19	1,05	11,6
L sc2	2,2	14,4	9,82	1,57	16,7	18,3	1,69	17,4
R J1	0,09	1,62	1,82	1,57	1,16	1,68	6,91	6,64
R J2	0,11	1,51	0,98	1,43	3,24	1,67	9,33	3,34
R L2	0,37	1,6	2,62	2,39	2	3,48	16,7	15,4

<i>g/ha/an</i>	<i>Fe</i>	<i>B</i>	<i>Ni</i>	<i>Zn</i>	<i>Pb</i>	<i>Cr</i>	<i>Cu</i>	<i>V</i>	<i>Sr</i>	<i>Ba</i>	<i>Mn</i>	<i>Rb</i>
J sc1	35,3	72,1	3,73	162	15,7	1,07	13,1	4,89	9,36	59,4	172	74,9
L sc1	54,9	78,3	4,96	301	37,5	1,15	29,5	7,57	17,8	40,1	1192	48,5
J sc2	18,6	56,9	4,73	119	14,2	0,3	14,4	3,49	21,1	48,7	172	65,1
L sc2	115	104	4,9	247	33,6	1,59	32,4	12,7	34,3	52,9	1308	103
R J1	0,51	0,65	1,08	0,45	0,25	0,11	0,22	1,08	1,4	3,84	3,12	10,9
R J2	0,25	10,01	0,79	0,34	0,21	0,02	0,17	0,61	1,12	3,34	2,52	5,98
R L2	1,03	0,83	0,62	1,02	1,29	1,34	1,24	2,25	1,36	2,14	10,1	52,7

J signifie Jura et L Lutry ; SC symbolise «sous couvert» ; 1: période du 15 février au 15 octobre 1991 ; 2: période du 1^{er} mars 1991 au 15 octobre 1991 ; R: rapport de flux sous couvert divisé par le flux hors couvert.

les 2 sites, nous présentons des moyennes mensuelles de flux calculées sur les périodes disponibles, mais, dans un but de comparaison, les données sont aussi présentées pour le Jura sur la période de prélèvement de 7 mois de Lutry.

Si l'on considère l'ensemble du feuillage comme une boîte noire, le rapport entre flux entrant et sortant définit une capacité de rétention ou de libération de chaque élément. Les valeurs des facteurs d'enrichissement (flux sortant / flux entrant) sont présentées dans le tableau IV. Mis à part Ba et Ni, tous les éléments présentent, à Lutry, des rapports égaux ou supérieurs à ceux du «Jura». Le tableau IV présente

également des flux moyens mensuels d'éléments minéraux enregistrés dans les deux stations. On observe une différence nette entre la station du Jura pour laquelle les flux d'éléments considérés comme acidifiants (N-NO₃ et S-SO₄) restent faibles et Lutry où ils s'élèvent très nettement par rapport à ceux mesurés hors couvert (tableau II).

Quatre groupes d'éléments se distinguent

1. Les éléments fortement enrichis : Mn, Rb, ainsi que Mg et K, dont les rapports entre flux sortant (R) et flux entrant sont

toujours supérieurs à 3 sur les deux sites. Rb et Mn, quasiment absents dans les pluies, présentent les facteurs d'enrichissement les plus importants entre pluies et pluviollessivats. La corrélation entre K et Rb dans les pluviollessivats est forte (fig 2) et la droite de régression est la même sur ces 2 sites situés dans des environnements très différents.

Le cas de Mn est différent : les concentrations de cet élément ne sont pas corrélées à celles de K et Rb mais à celles de SO_4 . De plus, les droites de corrélation sont très différentes sur les deux sites (fig 2), la pente à Lutry étant beaucoup plus élevée qu'à «Jura».

2. Les éléments légèrement enrichis : R variant de 1,2 à 3,8 selon les sites : Sr et Ba. Les majeurs Ca, SO_4 , Cl et Na se situent dans ce groupe. Les rapports d'enrichissement de Sr sont tout à fait semblables à ceux de Ca. Les concentrations de ces deux éléments sont corrélées dans les pluies et dans les pluviollessivats (fig 3).

Ba est plus enrichi que Ca et Sr lors de son passage sous couvert. De plus, on remarque sur la figure 2 que les concentrations de cet élément dans les pluviollessivats sont plus fortes sur site calcaire que sur site acide.

3. Les éléments peu influencés par leur passage à travers le feuillage : V, Cr, Ni, Cu, Zn, Pb (R proche de 1). Ce sont principalement des métaux lourds, les valeurs des facteurs d'enrichissement (R) pour ces éléments sont proches de 1 à Lutry et plus faibles sur Jura. La figure 4 présente l'évolution saisonnière des concentrations de certains de ces éléments dans les précipitations hors et sous le couvert à Jura. On remarque que les concentrations de Cr, Pb, Cu et Zn dans les pluies augmentent notablement vers la fin de l'hiver 1990-1991. Avant et après cette période, les concentrations dans les pluies et les pluviollessivats sont tout à fait semblables.

Lors de l'augmentation des concentrations, seules les concentrations de Zn augmentent dans les pluviollessivats alors que celles de Cu et Pb restent semblables aux valeurs précédentes. Il s'agit donc d'une accumulation passagère de Pb et Cu sur le feuillage.

4. Les éléments retenus par le feuillage : B, Fe et Si qui présentent des rapports inférieurs à 1. Ces éléments sont peu corrélés aux autres éléments ou entre eux. Néanmoins ces trois éléments sont retenus par le couvert végétal sur les deux sites.

DISCUSSION

Le comportement de chaque élément trace peut s'interpréter en fonction de sa structure atomique, de ses propriétés chimiques propres et de son origine possible (Olive et Étienne, 1961).

Rb et K, de même que Ca et Sr, font partie de la même famille d'éléments (alcalins et alcalino-terreux respectivement) et présentent de plus des tailles très voisines. Ceci signifie qu'ils se comportent de manière analogue s'il sont placés dans des conditions chimiques identiques (Mahan, 1977 ; Wedepohl, 1979 ; Jacks *et al*, 1989). C'est effectivement ce que suggèrent les corrélations fortes – et indépendantes des stations – mesurées entre les concentrations de K et Rb d'une part, et Ca et Sr d'autre part. Ainsi les mécanismes invoqués quant à l'origine de l'enrichissement de K et Ca sont valables pour Rb et Sr respectivement. L'enrichissement en K et Rb provient pour l'essentiel de la récréation, comme le suggèrent les très faibles teneurs dans les précipitations hors couvert, l'indépendance des concentrations hors et sous couvert, la prédominance des formes solubles ioniques de ces éléments dans les feuilles (Clément, 1989), ainsi que les calculs de bilan effec-

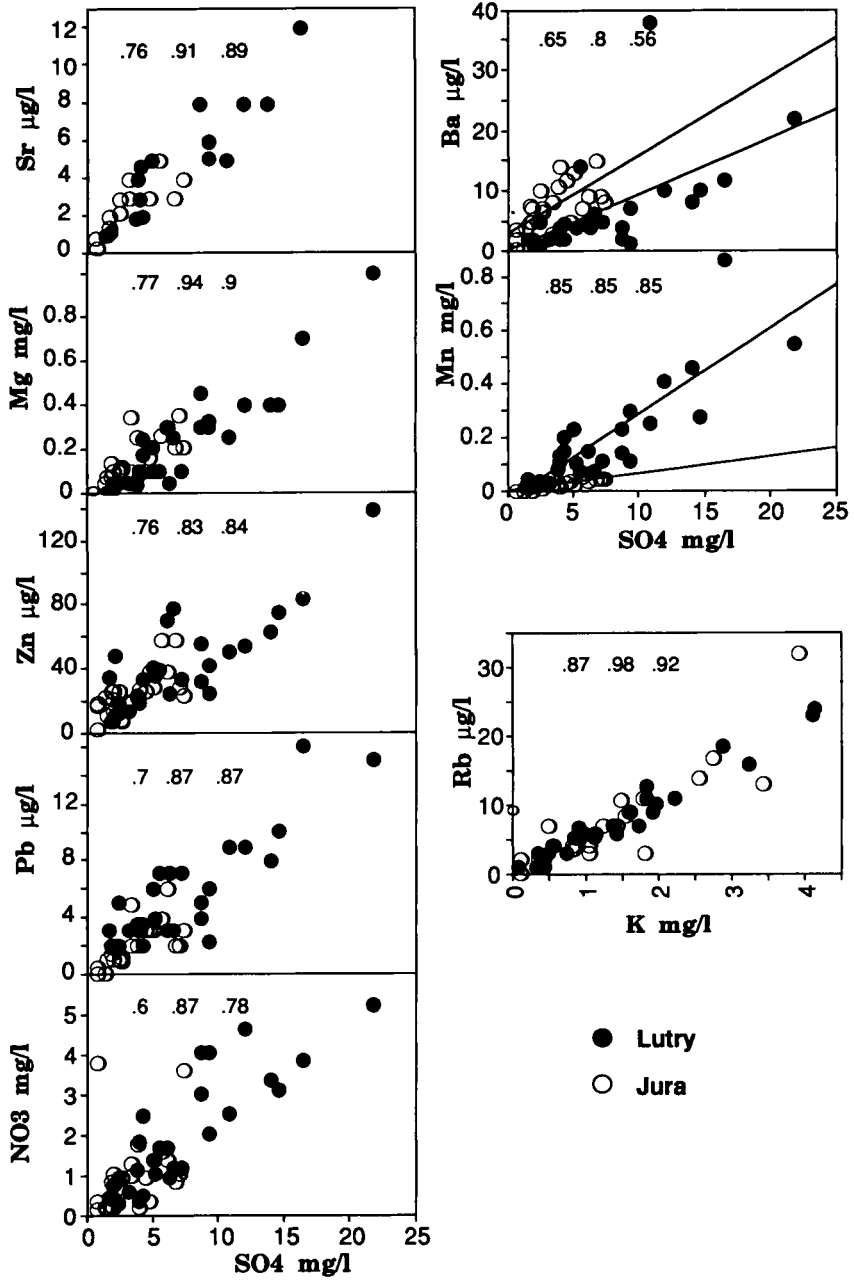


Fig 2. Corrélations entre les concentrations des éléments dans les pluiolessivats de Jura et Lutry. Dans chaque cadre sont figurés les coefficients de corrélation (r), pour Jura, puis Lutry, et enfin les deux sites réunis.

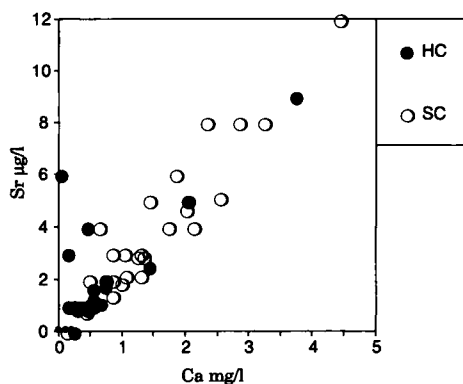


Fig 3. Corrélations entre Ca et Sr dans les solutions avant et après leur passage sous frondaison. HC: hors couvert; SC: sous couvert.

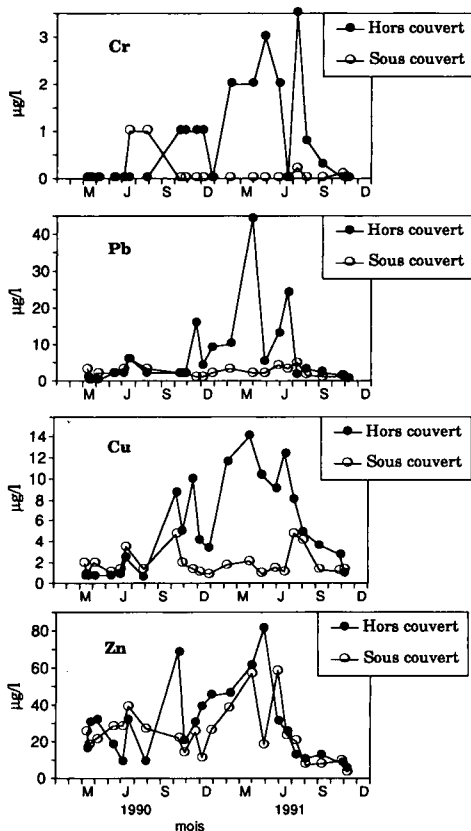


Fig 4. Évolution des concentrations de Cd, Pb, Cu et Zn hors et sous couvert à Jura.

tués à l'échelle du sol (Atteia, 1992). Godt *et al* (1986) ont montré que la concentration de K augmente au cours du temps à la surface de rameaux protégés des dépôts secs. L'absence de corrélations avec d'autres éléments dans les précipitations sous couvert montre que cet enrichissement dépend peu de la composition chimique des solutions à la surface des feuilles. Cet enrichissement est beaucoup plus fort à Lutry qu'à Jura, ce que l'on peut mettre en relation avec le développement bien supérieur des houppiers dans le premier site, lié à la forte productivité de la forêt.

L'enrichissement en Ca est généralement attribué pour partie au dépôt sec et pour partie à la récréation, cette dernière étant favorisée par l'acidité des dépôts, comme l'ont montré divers travaux expérimentaux (Potter, 1991 ; Scherbatskoy et Klein, 1983 ; Kaupenjohan *et al*, 1988 ; Leonardi et Flückiger, 1989). C'est aussi ce que suggèrent les corrélations entre Ca, Sr et SO_4 dans les pluviollessivats des deux stations. La contribution des dépôts secs est souvent estimée en appliquant l'hypothèse d'Ulrich (1983) développée par Bredemeier *et al* (1990) qui considèrent que les éléments sont déposés sur les rameaux selon les mêmes rapports de concentrations que dans les pluies, l'élément de référence étant Na. Selon ce calcul, sur le site Jura, l'enrichissement de Ca serait entièrement dû au dépôt sec et de 3 kg/ha/an. À Lutry le même calcul nous conduit à 12 kg/ha/an de dépôts secs alors que seuls 5,3 kg se retrouvent dans les pluviollessivats ; ainsi, 6 à 7 kg/ha/an seraient absorbés par la végétation.

Nous retrouvons le même scénario pour Sr car les 2 éléments sont corrélés en solution. Ces résultats sont contraires à ceux de Gosz et Moore (1989) et Grauschtein et Armstrong (1983), montrant que Sr est récréé par les conifères, et de Scherbatskoy et Klein (1983), prouvant l'existence de la récréation de Ca. De plus, Grosch (1986)

montre que, lorsque les tailles des particules de Ca et Na sont différentes, leurs vitesses de dépôt le sont aussi. Sur les deux sites, les apports de Ca et Sr dans les pluies sont indépendantes de ceux de SO_4 alors que les droites de corrélation sont très nettes et de même pente sur les deux sites sous couvert. La végétation semble donc jouer un rôle important dans la régulation de ces concentrations. Il semble en conséquence impossible, autant pour Sr que pour Ca de différencier la contribution des dépôts secs de celle de la récrétion en utilisant uniquement les relations entre composition des pluies et des pluiolessivats. L'origine de Sr dans les pluiolessivats est certainement mixte : dépôts secs, récrétion. Un raisonnement semblable peut être tenu pour Mg.

Mn et Ba présentent des enrichissements différents à Lutry, sur sol acide, et à Jura sur sol calcaire. Cette particularité s'explique clairement en ce qui concerne Mn par les concentrations 100 à 200 fois plus élevées dans les solutions du sol de Lutry, comparées à celles de Jura (Atteia, 1992). On sait par ailleurs que les teneurs en Mn des aiguilles sont plus élevées en sol acide qu'en sol calcaire (Tyler *et al*, 1985) ; de même que K et Rb, Mn est très peu présent dans les précipitations hors couvert et il se trouve majoritairement sous forme soluble dans les feuilles, de sorte que la récrétion est la principale source de l'enrichissement (Heinrichs et Mayer, 1980 ; Hofken, 1986 ; Godt *et al*, 1986). La relation nette entre concentrations de Mn et de SO_4 dans les pluiolessivats suggère que l'intensité de la récrétion de cet élément est liée au niveau du dépôt acidifiant, contrairement à celle de Rb qui est indépendante de SO_4 . L'augmentation de l'enrichissement en Ba à «Jura» peut être rapprochée de la plus forte mobilité de Ba en milieu calcaire par rapport au milieu acide (Atteia, 1992). Nous pouvons ainsi appliquer à Ba le même raisonne-

ment que pour Mn et conclure à l'existence de récrétion de Ba bien que ce phénomène soit moins net que pour Mn.

En dehors d'une période de pollution spécifique à Jura, les métaux lourds présentent des degrés d'enrichissement de l'ordre de 1. Durant la période d'augmentation des apports à Jura, une accumulation au moins temporaire de Cu et Pb s'est produite. La différence avec Zn, qui s'est peu accumulé durant cette période, tient à la plus faible affinité de Zn pour la matière organique (Kabata-Pendias et Pendias, 1985). De plus, d'autres cas d'accumulation de Pb dans le feuillage ont été décrits (Bergkvist, 1987). Les variations de concentration des métaux lourds dans les pluiolessivats sont plus influencées par les concentrations de SO_4 que par les variations de concentrations des métaux lourds dans les pluies. Ceci confirme l'existence d'un mécanisme de rétention-libération des métaux lourds par le feuillage, commandé par la composition chimique des films d'eau à la surface du feuillage (Lindberg *et al*, 1982). On retrouve ici l'observation concernant Ca et Sr.

Plusieurs auteurs citent des valeurs d'enrichissement importantes pour les métaux lourds dans des régions polluées : 2 à 8 pour Cu (Gietl et Rall, 1986 ; Brechtel *et al*, 1986), jusqu'à 30 pour Zn (Brechtel *et al*, 1986). De plus Godt *et al* (1986) montrent que les rameaux exposés à de forts niveaux de pollutions sont recouverts de dépôts importants de métaux lourds (Zn, Cu, Pb) par rapport à des témoins protégés. Nous avons signalé que les concentrations de métaux lourds dans les pluies sur les sites étudiés étaient faibles par rapport à d'autres régions d'Europe. La faible pollution des sites est à notre avis la raison du faible enrichissement des pluiolessivats en ces éléments. Turner *et al* (1985) ont d'ailleurs constaté dans un site peu pollué, un degré d'enrichissement similaire pour Pb à celui de cette étude. Seule une

analyse complémentaire des surfaces foliaires permettrait de quantifier le dépôt sec de ces éléments.

Nous n'avons pas trouvé de facteur explicatif de la rétention de Si, B et Fe, si ce n'est leur capture sous forme particulaire (Si, Fe) par les cires des aiguilles (Rose, communication personnelle). Les données bibliographiques concernant des sites peu pollués manquent. On peut cependant remarquer que Si et B, qui possèdent des structures chimiques semblables (Mahan, 1977) sont parallèlement retenus.

CONCLUSION

Dans des pessières peu polluées de Suisse romande, les dynamiques des éléments traces appellent les remarques suivantes.

i) L'enrichissement en Rb comme en K lors de la traversée du couvert est indépendant de celui des autres éléments. Il exprime pour l'essentiel la récréation.

ii) L'alimentation minérale de l'arbre influe sur l'enrichissement en Mn et Ba. Cet enrichissement reflète ainsi les concentrations des solutions de sol.

iii) Une partie des flux de Si, Fe et B sont interceptés par le feuillage, le mécanisme de cette rétention n'est pas élucidé.

iv) V, Cr, Mn, Ni, Zn, Sr, Ba ainsi que Ca et Mg sont déposés sous forme sèche et récrétés dans des proportions variables. Leurs concentrations instantanées dans les précipitations sous couvert semblent déterminées par les conditions chimiques à la surface des aiguilles de sorte qu'il est extrêmement difficile de différencier la part atmosphérique de la part biologique. Les calculs effectués à partir de Na comme référence en ce qui concerne les dépôts secs ne peuvent dans ce cas être considérés comme fiables. Par contre un enrichissement expérimental du végétal en éléments

présentant des analogies de structure atomique avec ceux dont on souhaite connaître l'origine pourrait être une voie prometteuse pour quantifier la récréation.

RÉFÉRENCES

- Aschan C, Dambrine E, Nourisson G, Tabeau M (1991) Dépôt d'éléments minéraux sur les écosystèmes naturels terrestres (INRA Nancy, ed) rapport au ministère de l'Environnement, 160 pp
- Atteia O (1992) Rôle du sol dans le transfert d'éléments traces en solution – Application à l'étude de quelques écosystèmes d'altitude. EPFL Lausanne, Thèse n° 1031, 253 pp
- Atteia O (1993) Atmospheric input of major and trace elements in western Switzerland. *Atmos Environ* (sous presse)
- Bergkvist B (1987) Soil solution chemistry and metal budgets of spruce forest ecosystems in Southern Sweden. *Water Air Soil Poll* 33, 131-154
- Bergkvist B, Folfeson F, Berggren D (1989) Fluxes of Cu, Pb, Cd, Cr and Ni in temperate forest ecosystems. *Water Air Soil Poll* 47, 217-286
- Brechtel HM, Balazs A, Lehnardt F (1986) Precipitation input of inorganic chemicals in the open field and in forest stands – Results of investigations in the state of Hesse. In: *Atmospheric pollutants in forest areas* (HW Georgii, ed) Reidel, pp 47-68
- Bredemeier M (1988) Forest canopy transformation of atmospheric deposition. *Water Air Soil Poll* 40, 121-138
- Bredemeier M, Matzner E, Ulrich B (1990) Internal and external proton load to forest soils in northern Germany. *J Env Qual* 19, 469-477
- Bresser AHM (1990) Acidic precipitation research in the Netherlands. In: *Acidic Precipitation, International overview and assessment* (AHM Bresser, W Salomons, eds). Springer-Verlag, 159-182
- Canter LW (1986) *Acid rain and dry deposition*, Lewis Publishers, Chelsea, Michigan, pp 370
- Clement A (1989) Equilibre ionique du tissu foliaire de l'épicéa et du pin noir d'Autriche. Thèse université Nancy I. 382 pp

- Cronan CS, Reiners WA (1983) Canopy processing of acidic precipitation by coniferous and hardwood forest in New England. *Oecologia* 59, 216-223
- Ellis VA, Verfaillie JR, Kummerow J (1983) Nutrient gain from wet and dry atmospheric deposition and rainfall acidity in the southern California Caparral. *Oecologia* 60, 1, 118-121
- Galloway JN, Thornton JD, Norton SA, Volvhok AL, Mclean RA (1982) Trace metals in atmospheric deposition: a review and assessment. *Atmos Environ* 16, 1677-1700
- Garland JA (1979) *Dry deposition of gaseous pollutants AERE*, Harwell, England
- Garten CT, Bondietti EA, Lomax RD (1988) Contribution of foliar leaching and dry deposition to sulfate in net throughfall below deciduous trees. *Atmos environ* 22,7 1425-1432
- Gietl G, Rall AM (1986) Bulk deposition into the catchment "Grosse Ohe": results of neighbouring sites in the open air and under spruce at different altitudes. In: *Atmospheric pollutants in forest areas* (HW Georgii, ed), Reidel, pp 263-274
- Godt J, Schmidt M, Mayer R (1986) Processes in the canopy of trees: internal and external turn-over of elements. In: *Atmospheric pollutants in forest areas* (HW Georgii, ed) Reidel, pp 263-274
- Gosz JR, Moore DI (1989) Strontium isotope studies of atmospheric inputs to forested watersheds in New Mexico. *Biogeochemistry* 8, 155-134
- Grauschtein WC, Armstrong RL (1983) The use of Sr87/Sr86 ratios to measure atmospheric transport into forested watersheds. *Science* 219, 289-292
- Grennfelt P, Bengtson C, Skaerby L (1978) *Estimation of the atmospheric input of acidifying substances to a forest ecosystem*. Swedish water and air pollution research laboratory, Goteborg, Sweden
- Grosch S (1986) Wet and dry deposition of atmospheric trace elements in forest areas. In: *Atmospheric pollutants in forest areas* (HW Georgii, ed), D Reidel, pp: 35-46
- Heinrichs H, Mayer R (1980) The role of forest vegetation in the biogeochemical cycle of heavy metals. *J Envir Qual* 9,1 , 111-118
- Hennequin CL, Hervouet G, Brun C (1984). In: *Livre blanc des pluies acides. Première approche scientifique du problème en France*. Secrétariat d'État à l'Environnement et à la Qualité de la vie. pp 145-160
- Hoffmann WA, Lindberg SE, Turner RR (1980) Precipitation acidity: the role of the forest canopy in acid exchange. *J Envir Qual* 9, 95-100
- Hofken KD (1986) Input of acidifiers and heavy metals to a german forest area due to dry and wet deposition. In: *Effects of Accumulation of air pollutants in forest ecosystems* (B Ulrich, H Pakrath, eds)
- Hortvedt R, Dollards GH, Joranger E (1980) Effects of acid precipitation on soil and forest: II Atmospheric-vegetation interactions. In: *Ecological impact of acid precipitation* (D Drablos, A Tolan, eds), SNSF proect, Oslo, pp 192
- Ibrahim M, Barrie L, Fanaki F (1983) Experimental and theoretical investigation of the dry deposition of particles to snow, Pine trees and artificial collectors. *Atmos environ* 17, 4, 1781-788
- Ivens W, Draaijers G, Bleuten W, Bos M (1989) The impact of air-borne ammonia from agricultural sources on fluxes of nitrogen and sulfur toward forest soils. *Catena* 16, 535-544
- Jacks G, Aberg G, Hamilton J (1989) Calcium budgets for catchments as interpreted by strontium isotopes. *Nord Hydrol* 20, 85-96
- Järvinen O (1986) Papers of the national board of waters 408
- Kabata-Pendias A, Pendias H (1985) *Trace elements in soils and plants*. CRC Press Inc, Boca Raton, Florida
- Kaupenjohan M, Schneider BU, Hantschel R, Zech W, Horn R (1988) Sulphuric acid treatment of *Picea abies*: Effects on nutrient solution, throughfall chemistry and tree nutrition. *Z Pflanzenernähr Bodenk* 151, 123-126
- Kostelnik KM, Lynch JA, Grimm JW, Corbett ES (1989) Sample size requirements for estimation of throughfall chemistry beneath a mixed hardwood forest. *J Envir Qual* 18, 274-280
- Leonardi S, Flückiger W (1989) Effects of cation leaching on mineral cycling and transpiration: investigations with beech seedlings (*Fagus sylvatica* L). *New Phytol* 111, 173-179
- Lindberg SE, Turner RR, Lovett GM (1982) *Processes of atmospheric deposition of metals and acids to forests*. Oak Ridge national laboratory, Oak Ridge, Tennessee
- Mahan BH (1977) Chimie Inter Editions, Paris, SA

- Marschner H (1986) *Mineral Nutrition of higher plants*. Academic Press Limited, San Diego, pp 674
- Olive A, Étienne D (1961) Les terres rares. *Ann Cosmochimie* 3, 19-42
- Potter CS (1991) Nutrient leaching from *Acer rubrum* leaves by experimental acid rainfall. *Can J For Res* 21, 222-229
- Scherbatskoy T, Klein RM (1983) Response of spruce and birch foliage to leaching by acidic mists. *J Envir Qual* 12, 189-195
- Smidt S (1988) Messungen der nassen deposition in Osterreich. Messtellen, Jahresmessergebnisse, Literatur FBVA-Berichte 27
- Summers PW, Bowersox VC, Stenslet GJ (1986) The geographical distribution and temporal variations of acidic deposition in eastern North America. *Water Air Soil Poll* 31, 523-535
- Swank WT (1984) Atmospheric contribution to forest nutrient cycling. *Water Resources Bulletin* 20(3), 313-321
- Tukey JB, Wittwer SH (1957) Loss of nutrients by foliar leaching as determined by radioisotopes. *J Amer Soc Hort Sci* 71, 496-506
- Turner RS, Johnson AH, Wang D (1985) Biogeochemistry of lead in McDonalds Branch Watershed, New Jersey pine barrens. *J Envir Qual* 14, 305-313
- Tyler G, Steines E, Folkeson L, Loberli E, Nyholm E (1985) Research report, Lund University, Dept of Plant Ecology, Lund, Sweden
- Ulrich B (1983) Interaction of forest canopies with atmospheric constituents : SO₂, alkali and earth alkali cations and chloride. In: "Effects of accumulation of air pollutants in forest ecosystems", Reidel Publ, Dordrecht, Holland, 33-45
- Veen AL, Dolman AJ (1989) Water dynamics of forests, one-dimensional modelling. *Prog Physic Geography* 13, 471-506
- Wedepohl KH (1968-1979) *Handbook of geochemistry*. Springer Verlag, Berlin