



Open Archive TOULOUSE Archive Ouverte (OATAO)

OATAO is an open access repository that collects the work of Toulouse researchers and makes it freely available over the web where possible.

This is an author-deposited version published in : <http://oatao.univ-toulouse.fr/>
Eprints ID : 17385

To link to this article : DOI: 10.4267/pollution-atmospherique
URL : <http://dx.doi.org/10.4267/pollution-atmospherique.5748>.

To cite this version : Coddeville, Patrice and Pascaud Aude and Sauvage, Stéphane and Nicolas, Manuel and Mathias Etienne and Probst, Anne *Evolution des émissions, de la qualité de l'air et des dépôts atmosphériques dans les espaces ruraux, notamment forestiers*. (2016) Pollution atmosphérique, Numéro special 229-230, pp. 43-63

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository administrator: staff-oatao@listes-diff.inp-toulouse.fr

Évolution des émissions, de la qualité de l'air et des dépôts atmosphériques dans les espaces ruraux, notamment forestiers

Changes in atmospheric emissions, air quality and deposition in rural areas, especially in forests

Patrice CODDEVILLE
Aude PASCAUD
Stéphane SAUVAGE

Département Sciences de l'Atmosphère et Génie de l'Environnement (SAGE), Mines Douai, F-59598 Douai. patrice.coddeville@mines-douai.fr

Manuel NICOLAS
Direction forêts et risques naturels, département recherche, développement et innovation, Office national des forêts, F-77 300 Fontainebleau.

Étienne MATHIAS
Centre Interprofessionnel Techniques d'Études de la Pollution Atmosphérique, F-75010 Paris.

Anne PROBST
Ecolab, université de Toulouse, CNRS, INPT, UPS Toulouse, France.

Résumé

Les composés atmosphériques, qu'ils soient de sources naturelles ou anthropiques, peuvent être transformés, transportés sur de longues distances et transférés de l'atmosphère vers un autre réservoir *via* les retombées atmosphériques. Ces composés, bien que présents à l'état de trace, peuvent générer des événements de pollution, dont la prévision est utile à la protection de la santé publique, des milieux naturels et du climat. Au cours des trois dernières décennies, des politiques de réduction des émissions polluantes ont été mises en place en Europe et sur d'autres continents afin de limiter

leurs effets. Pour un certain nombre de ces composés, l'efficacité de ces politiques peut être évaluée par le suivi à long terme de la chimie des retombées atmosphériques, ainsi que sur la définition de charges définies critiques pour un écosystème (le milieu forestier dans cet article) comme le dépôt anthropique maximal qui ne conduira pas à un dépassement des concentrations critiques au sein du compartiment étudié, en l'état actuel des connaissances. En France, des observatoires nationaux (MERA, RENECOFOR/CATAENAT) sont dédiés à la surveillance des retombées atmosphériques depuis les années 90. Parmi les éléments majeurs inorganiques mesurés

depuis l'origine, les ions sulfates (SO_4^{2-}), nitrates (NO_3^-) et ammonium (NH_4^+) sont particulièrement suivis pour leurs impacts acidifiants et eutrophisants sur les écosystèmes. Ces ions solubilisés dans l'eau sont issus de la transformation des gaz précurseurs SO_x , NO_x , et NH_3 émis majoritairement par les activités anthropiques. La mutualisation des mesures de ces observatoires offre un jeu de données inédit pour étudier l'évolution de la composition chimique des retombées atmosphériques au niveau national ou européen, et permet une comparaison avec l'évolution des émissions des polluants primaires. Les variations sur les mêmes périodes des cartes de charges critiques et de leurs dépassements permettent de constater directement les effets des politiques de réduction des émissions mises en œuvre sur les écosystèmes terrestres.

Mots-clés

Émissions de polluants, acidification, eutrophisation, tendances, retombées atmosphériques, charges critiques.

Abstract

The atmospheric compounds which are emitted by natural or anthropogenic sources, can be transformed, transported on long range and transferred towards the ecosystems under the atmospheric deposition process. These compounds can generate pollution events which forecast is useful for public health and natural ecosystems protection. During the last

three decades, the policies of reduction of polluting emissions were organized in Europe and on other continents to limit their effects on the human health, the ecosystems and the climate. The efficiency of these policies can be estimated by the follow-up at long-term of the chemistry of the atmospheric deposition and in regards to critical loads defined for an ecosystem as "the highest load that will not cause chemical changes leading to long-term harmful effects in the most sensitive ecological systems", in the present state of the knowledge. In France, national monitoring networks (MERA, RENECOFOR/CATAENAT) were implemented to the monitoring of the atmospheric deposition from the beginning of the 90s. Among the inorganic major elements measured since the origin, the sulfate (SO_4^{2-}), nitrate (NO_3^-) and ammonium (NH_4^+) ions are particularly followed for their acidifying and eutrophying impacts on the terrestrial ecosystems. These solubilized ions arise from the transformation of precursor gases SO_x , NO_x , and NH_3 be mainly emitted by the anthropogenic activities. The combined measurements of these two monitoring networks offer a set of data to study the evolution of the chemical composition of the atmospheric deposition at the national or European level and allow a comparison with the evolution of the emissions of primary pollutants. The variations over the same periods of the maps of critical loads and their exceedances allow to estimate the effects of the emissions reduction policies.

Keywords

Emissions of pollutants, acidification, eutrophication, trends, atmospheric deposition, critical loads.

1. Introduction

Historiquement, depuis la 1^{ère} conférence des Nations Unies de Stockholm sur l'environnement en 1972 et l'édition d'une étude de cas, intitulée *Pollution de l'air au-delà des frontières nationales. L'impact sur l'environnement du soufre dans l'air et les précipitations*, de nombreux programmes de surveillance et de recherche sur la qualité de l'air et son évolution ont été lancés sur les différents continents. Dès 1975, l'Organisation Mondiale de la Météorologie (OMM) publie une première déclaration scientifique intitulée « Modifications de la couche d'ozone impliquant les activités anthropiques et leurs impacts potentiels » et lance dans la continuité un programme mondial de surveillance et de recherche sur l'ozone. Dans le même temps, le Programme concerté de surveillance continue et d'évaluation du transport à longue distance des polluants atmosphériques en Europe (EMEP) est lancé sous l'impulsion des pays nordiques et s'intéresse notamment aux polluants acides et leurs impacts. Tous ces programmes concernant un très grand nombre d'organismes et de pays aboutissent à l'instauration en 1979 de la Convention sur la pollution atmosphérique transfrontalière à longue distance (CLRTAP), adoptée sous l'égide de la Commission Économique pour l'Europe des Nations Unies (CEE-ONU). Cette convention avait, dès le départ, attaché une importance essentielle à l'évaluation des impacts de la pollution de l'air sur la santé humaine et sur les écosystèmes, mais aussi à la mesure des niveaux de pollution. La prise de conscience de la nécessité d'interagir a débouché sur l'élaboration et la mise en œuvre de plusieurs protocoles pour contrôler et réduire les émissions polluantes responsables des problématiques d'acidification, d'eutrophisation, d'ozone de basse couche atmosphérique, de métaux lourds et de polluants organiques persistants. Des stratégies de réduction ont été mises en place en tenant compte des exigences au meilleur coût en améliorant notamment les inventaires d'émissions et en développant la modélisation numérique permettant d'accéder à des informations à l'échelle continentale.

2. La réglementation et l'organisation de la surveillance des espaces ruraux forestiers

La réglementation de la qualité de l'air au niveau de la Commission Européenne s'est exprimée à travers cinq directives européennes : la directive cadre 96/62/CE, ainsi que les directives filles 2002/3/CE, 2000/69/CE, 1999/30/CE et 2004/107/CE. Les trois premières directives filles ont été refondues dans la directive unifiée 2008/50/CE du 21 mai 2008 relative à la « qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe », elle-même modifiée par la directive 2015/1480 du 28 août 2015. Elles reprennent les objectifs indiqués dans les précédentes directives, en y ajoutant et modifiant quelques points :

- *"la surveillance des tendances à long terme et des améliorations obtenues grâce aux mesures nationales et communautaires,*
- *la définition de règles concernant les méthodes de référence, la validation des données et l'emplacement des points de prélèvement pour l'évaluation de la qualité de l'air ambiant."*

Elle définit également plusieurs notions comme les « valeurs limites »¹, un « niveau critique »² et la « marge de dépassement »³ concernant les effets de la pollution sur les écosystèmes.

Les engagements européens de réduction des émissions de polluants atmosphériques sont fixés dans des directives, dont les plus importantes sont celles relatives aux plafonds nationaux d'émission (2001/81/CE)⁴, dites directives NEC, la directive relative aux grandes installations de combustion (2001/80/CE), la directive relative à la prévention et à la réduction intégrées de la pollution (96/61/CE), et autres directives sectorielles maintenant refondues dans les directives sur les émissions industrielles (2010/75/EU), dite IED.

La mise en œuvre effective de la CLRTAP et de ses protocoles montre que la lutte contre la pollution atmosphérique dans la région de la CEE-ONU est menée dans un certain nombre de secteurs, en particulier l'industrie, l'énergie et les transports, et dans une moindre mesure en agriculture. Dans bien des cas, les mesures de lutte contre la pollution visent plusieurs polluants, si bien qu'elles ont souvent des effets sur la réduction des gaz à effet de serre, y compris ceux visés par le protocole de Kyoto à la Convention-cadre des Nations Unies sur les changements climatiques, et mettent en évidence des synergies entre la réduction des émissions, qui causent respectivement une pollution atmosphérique et des changements climatiques. De nombreux pays ont signalé qu'ils avaient adopté des stratégies et des objectifs à long terme pour lutter contre la pollution atmosphérique à longue distance au niveau national.

La CLRTAP a mis l'accent sur la nécessité d'études scientifiques bien ciblées. Pour étudier les effets de la pollution, **six programmes concertés de surveillance continue** ont été créés au sein du groupe de travail sur les effets, et sont chargés de stimuler la recherche dans des domaines essentiels relatifs aux effets de la pollution atmosphérique, à la surveillance et à la modélisation des effets dans l'ensemble du territoire européen. Les travaux de recherche se déclinent au niveau national, en vue de réduire les effets de l'utilisation de l'énergie, ainsi que les émissions et les dépôts de polluants visés par la convention. Le groupe de travail sur les effets a été créé pour développer la coopération internationale en matière de recherche et de surveillance, afin de donner des informations sur le degré, l'étendue géographique et les tendances de l'impact des polluants. Il gère six programmes internationaux concertés (PIC, ou ICP en anglais) qui étudient les écosystèmes (**ICP Forest, ICP Vegetation**) et les matières aquatiques (**ICP Waters**) et terrestres (**ICP Materials**) et leur représentation (**ICP Mapping and Modelling, ICP Integrating Monitoring**).

Le PIC-Modélisation et Cartographie dresse et tient à jour des cartes des charges critiques⁵ (voir paragraphe 5 ci-dessous), qui font apparaître les seuils d'acidification et d'eutrophisation. C'est à partir de ces cartes qu'ont été fixés les objectifs inscrits dans le protocole d'Oslo et le protocole de Göteborg. Ce travail a été élargi à une modélisation dynamique et à un calcul des charges cibles d'après ces modèles. **Les données** provenant

des sites pilotés par les programmes nationaux ont été précieuses pour calculer des charges critiques spécifiques pour chaque écosystème et pour valider **les charges critiques et les cartes des niveaux critiques**. Les données propres à tel ou tel site sont utiles aussi pour élaborer des modèles dynamiques complexes qui permettent de prédire les changements futurs de l'environnement résultant des stratégies de lutte contre la pollution atmosphérique.

Les réseaux de surveillance environnementale du groupe de travail sur les effets fournissent des séries de données à long terme sur d'importants effets écologiques pour la plus grande partie de l'Europe et une partie de l'Amérique du Nord. Les variations observées dans le fonctionnement des écosystèmes forestiers sur les sites surveillés par le **PIC-Forêts** témoignent de la persistance des dommages causés aux forêts par des facteurs très divers, dont la pollution atmosphérique.

Le 17 mai 2005, plus de 5 ans après sa signature, le protocole de Göteborg, dit « **multi-polluants, multi-effets** », est entré en vigueur. Signé en novembre 1999 à Göteborg, en Suède, dans le cadre de la convention de la Commission Économique pour l'Europe des Nations Unies (UNECE) sur la pollution atmosphérique à longue distance, le protocole « multi-effets, multi-polluants » prévoyait des plafonds d'émissions nationaux pour le dioxyde de soufre (SO₂), les oxydes d'azote (NO_x), les composants organiques volatils (COV) et l'ammoniac (NH₃) jusque 2010. Ceci est à relier à la directive NEC citée ci-dessus.

Le protocole est établi sur la base d'objectifs de qualité environnementale qui garantissent qu'à long terme, les dépôts d'origine atmosphérique et les concentrations dans l'atmosphère ne dépassent pas :

- les charges critiques d'acidité liées au soufre et l'azote ;
- les charges critiques d'azote nutritif ;
- les niveaux critiques d'ozone.

Les amendements de 2012 ont fixé de nouveaux objectifs de réduction pour les émissions d'ammoniac provenant de l'agriculture, les émissions de particules de soufre et des oxydes d'azote provenant des transports et de l'industrie, et les émissions de composés

organiques volatils provenant, par exemple, des peintures et vernis. Au titre du nouveau protocole, les réductions d'émissions dans l'UE devront être, d'ici 2020, d'au moins 63 % pour le SO₂, de 41 % pour les NOx, de 40 % pour les COV, de 17 % pour le NH₃ par rapport aux émissions de 1990, et de 20 % pour les particules fines. Une autre innovation : le nouveau protocole établit un lien avec le changement climatique, en encourageant la surveillance et le rapportage des émissions de carbone suie issu des processus de combustion. À noter qu'un certain nombre d'axes de recherche-développement sont identifiés pour la mise en œuvre du protocole :

- **harmonisation internationale** des méthodes de calcul et d'évaluation des effets nocifs associés aux substances visées aux fins de l'établissement des charges critiques et des niveaux critiques et, le cas échéant, élaboration de procédures pour mener à bien cette harmonisation ;
- **amélioration des bases de données** sur les émissions, en particulier celles concernant l'ammoniac et les composés organiques volatils ;
- **amélioration des techniques et systèmes de surveillance** et de la modélisation du transport, des concentrations et des dépôts de soufre, de composés azotés et de composés organiques volatils, ainsi que de la formation d'ozone et de matières particulaires secondaires ;
- **amélioration des connaissances scientifiques** quant au devenir à long terme des émissions et à leur impact sur les concentrations de fond des polluants à l'échelle de l'hémisphère, en privilégiant en particulier la chimie de la troposphère libre et le risque de circulation intercontinentale de polluants ;
- **poursuite de l'élaboration d'une stratégie d'ensemble** pour réduire les effets nocifs de l'acidification, de l'eutrophisation et de la pollution photochimique, y compris les synergies et les effets combinés.

3. Méthodologie et évolution des émissions de polluants atmosphériques dans les inventaires

La qualité de l'air qui nous environne n'est pas le résultat d'une simple équation basée sur les émissions de polluants, mais ces émissions constituent quasiment le seul paramètre sur lequel l'activité humaine a une influence directe. C'est pourquoi les inventaires d'émissions atmosphériques sont incontournables aujourd'hui, ils servent d'indicateurs de suivi des émissions et d'outils de pilotage pour les actions à mener pour réduire ces pollutions. Ils sont réalisés annuellement par le CITEPA pour le ministère en charge de l'Environnement et présentent l'évolution des principales émissions atmosphériques au niveau français. Ils couvrent actuellement une trentaine de substances (d'après SECTEN), incluant les métaux, les particules, les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP), les polluants organiques persistants... En tête de cette liste, quatre substances majeures (SO₂, COVNM, NOx et NH₃) participent activement à la chimie de l'atmosphère. Elles sont suivies de manière précise dans le cadre du protocole de Göteborg (CPATLD, 1999) et de la directive européenne 2001/81/CE sur les plafonds d'émission nationaux, dite « NEC » (CE, 2001).

Durant la majeure partie du XX^e siècle, les principales sources de pollution étaient industrielles ou liées à la production d'énergie, du fait notamment de leurs fortes émissions de SO₂, et de particules primaires incluant de nombreux composés nocifs (métaux, HAP). Mais avec la désindustrialisation de la France et la progression des secteurs d'activité tertiaire, les enjeux se sont déplacés et les principales cibles sont aujourd'hui, pour ne citer que les plus courantes : les NOx du transport routier, les COVNM du secteur résidentiel et, depuis très récemment, le NH₃ de l'agriculture. Tous ces composés rejoignent la question majeure de la pollution aux particules fines, du fait de leur rôle dans l'apparition de particules secondaires.

Les émissions de NH₃ sont spécifiques de l'agriculture et spécialement de l'élevage. La France est le plus gros pays émetteur de l'Europe des 27. Les autres polluants peuvent aussi être émis par le secteur agricole, mais

surtout, ces polluants peuvent intervenir dans la formation des particules qui peuvent se combiner avec les nitrates ou les pesticides (*cf.* article de M. Millet dans ce numéro). L'évolution temporelle des émissions traduit les efforts entrepris sur de nombreuses technologies pour baisser les émissions de polluants jugées les plus préjudiciables (en lien avec les normes réglementaires progressivement mises en place), mais beaucoup reste à faire pour améliorer la qualité de l'air.

3.1. Le dioxyde de soufre (SO₂)

Le dioxyde de soufre (SO₂) est une des substances historiques de la pollution atmosphérique. Il a fait l'objet d'un suivi précoce en raison notamment de sa contribution aux pluies acides. La France a réduit ses émissions de plus de 90 % entre 1960 et 2014, pour atteindre un niveau estimé à 169 kt en 2014 (CITEPA, 2016). Concernant la méthodologie, la majorité des émissions de SO₂ sont estimées par le CITEPA sur la base des teneurs en soufre des carburants (la combustion représentant l'essentiel des émissions de SO₂ dans l'atmosphère) et sur la connaissance des techniques de désulfuration sur les sites les plus contributeurs. La forte baisse des émissions de SO₂ résulte des modifications profondes du mode de production de l'électricité en France, avec la mise en œuvre du programme électronucléaire dans les années 1960, la diminution progressive des combustibles les plus soufrés (charbons et fuels lourds), l'amélioration des rendements énergétiques et le développement des techniques de désulfuration. Il existe désormais des réglementations strictes sur la teneur en soufre des carburants, la dernière évolution importante en date concernant, en 2011, le gazole non routier, dont la teneur en soufre est désormais comparable à celle du gazole routier, avec 0,001 % de soufre. Les Grandes Installations de Combustion (GIC) aussi sont réglementées sur les émissions de SO₂ par des valeurs limites d'émission en lien avec la directive européenne 2001/80/CE et la réglementation française sur les installations classées pour la protection de l'environnement. Les objectifs définis par le protocole de Göteborg (55 % de réduction des émissions entre 2005 et 2020) devraient être respectés par la France, ceux pour la future directive révisant la directive NEC pour la période 2021-2030, certainement plus ambitieux, sont encore en négociation. La baisse des émissions de SO₂ en France et en Europe a également une incidence significative en agriculture puisque, les

retombées de soufre ayant fortement diminué, la fertilisation en soufre doit donc augmenter pour compenser cette baisse d'apport atmosphérique.

3.2. Les Composés Organiques Volatils Non Méthaniques (COVNM)

Les composés organiques volatils non méthaniques constituent un ensemble complexe et hétérogène de substances, issues de sources très différentes comme la combustion, l'utilisation de solvants, certains procédés industriels basés sur la fermentation alcoolique ou encore la végétation. Le CITEPA traite ces sources de manières distinctes. Les émissions de COVNM issues de la combustion sont dépendantes du combustible mais aussi du type de combustion. À titre d'exemple, pour le bois consommé dans le secteur résidentiel, les émissions de COVNM dans un appareil très performant de type chaudière sont plus de trente fois moindres comparées à celles issues d'un foyer ouvert synonyme de combustion incomplète (EMEP, 2013). Les émissions de COVNM de la combustion sont donc estimées à partir des consommations de combustibles et de facteurs d'émission déclinés en intégrant la connaissance des parcs de chaudières, de véhicules et de nombreux appareils de combustion. Les émissions de COVNM liées aux solvants, qui représentent près de la moitié des émissions nationales en 2014 (CITEPA, 2016), sont estimées sur la base des quantités de solvants utilisées et sur la connaissance des techniques de réduction mises en œuvre dans les sites industriels. D'autres sources liées à des procédés industriels sont incluses, notamment les productions de pain et d'alcools, qui atteignent de manière cumulée 5 % des émissions nationales en 2014 (CITEPA, 2016). Leurs émissions sont estimées sur la base des niveaux de production et de facteurs d'émission principalement issus de la littérature scientifique (CITEPA, 2016). Quant aux émissions de COVNM issues de la végétation, elles dépendent principalement des espèces végétales et des conditions climatiques. Elles peuvent être très importantes, mais ces émissions dites « biogéniques » ne sont pas incluses dans le total national des émissions. Depuis 1988, année de référence pour le premier protocole relatif à la réduction des COVNM, les émissions en France ont baissé de 74 % pour atteindre 639 kt en 2014 (CITEPA, 2016). Cette évolution résulte de la baisse combinée des émissions dans le transport routier, le secteur

résidentiel et l'industrie. Dans le transport routier, cette baisse est due à l'amélioration des moteurs et des techniques de réduction associées (pots catalytiques, filtres à charbon actif, etc.) ainsi qu'à l'augmentation de la part des véhicules diesels, moins émetteurs de COVNM. Dans le secteur résidentiel, les principaux indicateurs sont la baisse de la teneur en solvants des produits utilisés et l'évolution du parc des chaudières. Enfin, dans le secteur industriel, d'importants progrès ont été réalisés pour réduire les émissions à la source en application des réglementations. Grâce à ces évolutions, les objectifs définis par le Protocole de Göteborg (43 % de réduction des émissions entre 2005 et 2020) devraient être respectés par la France.

3.3. Les oxydes d'azotes (NOx)

Les oxydes d'azote (NOx) constituent actuellement un des enjeux prioritaires pour les pouvoirs publics en termes de qualité de l'air. Ils proviennent surtout de la combustion et varient avec les équipements (les moteurs sont particulièrement concernés). Comme pour les COVNM, les émissions de NOx sont estimées à partir des consommations énergétiques et de facteurs d'émission dépendants des performances des installations de combustion. Au niveau français, les émissions de NOx ont baissé de 55 % depuis 1990 pour atteindre 886 kt en 2014 (CITEPA, 2016). Dans le cas du transport routier (56 % des émissions de NOx en 2014), les émissions baissent progressivement avec le déploiement des véhicules répondant à des normes Euro de plus en plus strictes. En termes de calcul, dans ce cas spécifique du transport routier, les émissions ne sont pas estimées sur la base des normes, établies sur des cycles normatifs d'homologation, mais grâce à des facteurs d'émission basés sur des situations de conduite réelles. L'agriculture constitue aussi une source d'émissions de NOx en raison du parc d'engins agricoles (10 % des émissions nationales de NOx en 2014). La gestion de l'azote, aussi bien en élevage que dans les grandes cultures, est également concernée, car une partie de l'azote est volatilisé sous forme de NO, lequel est rapidement oxydé en NO₂ dans l'atmosphère. En revanche, ces dernières émissions liées à la volatilité de l'azote ne rentrent pas dans le total national français et dans les objectifs définis par le protocole de Göteborg (50 % de réduction des émissions entre 2005 et 2020). Cet objectif et celui de la directive NEC fixé à 810 kt pour l'année

2010 ont récemment été atteints par la France (en intégrant les ajustements méthodologiques permettant de conserver la cohérence temporelle entre les objectifs et les résultats d'inventaire).

3.4. L'ammoniac (NH₃)

Jusqu'à récemment, en prise avec les directives sur la pollution des eaux, l'agriculture était peu visée dans le cadre des politiques sur l'air. L'ammoniac (NH₃), gaz essentiellement agricole avec 98 % des émissions de NH₃ en 2014 (CITEPA, 2016), est désormais au cœur des enjeux et des négociations internationales en tant que précurseur de particules secondaires. Les émissions de NH₃ sont liées à la volatilité de l'azote lorsque ce dernier est sous sa forme ammoniacale. C'est sur la base de cet azote ammoniacal disponible que sont calculées les émissions de NH₃ de l'élevage au niveau de quatre postes majeurs : les bâtiments d'élevage, les zones de stockage des fumiers et lisiers, les zones d'épandage des engrais organiques et les pâturages. La méthodologie de calcul des émissions se calque sur une méthode apparentée à une « cascade de l'azote » et intègre un panel important de caractéristiques des élevages français (niveaux de production, pratiques de gestion des effluents, techniques de réduction, matériels d'épandage). Le recours aux fertilisants minéraux azotés est également responsable d'une part importante des émissions (34 % des émissions nationales de NH₃), notamment du fait de l'usage d'engrais contenant des formes uréiques, qui sont rapidement hydrolysées en ammoniacale. Depuis 1980, les émissions nationales de NH₃ ont un niveau à peu près constant et atteignent 708 kt en 2014 (CITEPA, 2016). La baisse des cheptels, observée depuis les années 1990, a en partie été compensée par l'augmentation de la productivité des animaux et n'a donc pas généré des baisses importantes d'excrétion azotée ni d'émissions de NH₃. Sur la période récente, on observe au contraire une légère augmentation des émissions de NH₃ due à la progression des engrais avec de l'azote sous forme uréique (urées granulés et solutions azotées) pour lesquels le risque de volatilisation ammoniacal est important. Les techniques de réduction les plus efficaces identifiées en élevage, comme le traitement de l'air, la couverture de fosses, l'incorporation rapide des effluents (ADEME, 2013), sont encore peu répandues et potentiellement difficiles à mettre en œuvre. C'est notamment le cas dans les zones d'élevage bovin, qui représentent 65 % des émissions de

l'élevage en 2014 (CITEPA, 2016) mais dont les bâtiments très aérés et les pratiques (large part des déjections gérée en fumier, faible mécanisation) ne sont pas facilement compatibles avec les technologies de réduction préconisées. Les objectifs définis par le protocole de Göteborg (4 % de réduction des émissions entre 2005 et 2020) apparaissent modestes, mais leur atteinte est loin d'être garantie au vu de la tendance actuelle. Ceux prévus pour la future directive révisant la directive NEC, encore en négociation et certainement plus ambitieux, seront d'autant plus difficiles à respecter.

4. Observatoires en milieu rural forestier et tendances observées

Les polluants émis dans l'atmosphère, après avoir subi des transformations physiques ou chimiques, peuvent se retrouver sous différentes formes : précipitations, gaz ou particules, et ceci à plusieurs centaines voire milliers de kilomètres de leurs sources d'émissions. L'évaluation de leur impact sur l'environnement, en termes notamment d'acidification et d'eutrophisation des écosystèmes, nécessite donc de suivre la pollution de fond induite en milieu rural et forestier, par la mesure, la collecte et l'analyse de ces retombées atmosphériques. Ce suivi est organisé selon des procédures harmonisées à l'échelle européenne, dans le cadre de la CLRTAP, et mondiale par l'OMM. Il se matérialise en France depuis plusieurs décennies par l'activité de réseaux d'observations, dont deux sont toujours en fonctionnement : MERA et RENECOFOR/CATAENAT. Ces deux réseaux d'observation diffèrent dans leur conception en réponse à leurs objectifs respectifs, mais offrent de ce fait deux points de référence indépendants sur les niveaux et l'évolution des retombées de polluants atmosphériques à l'échelle nationale. Ils sont décrits succinctement ci-après et la répartition géographique de leurs stations est représentée par la Figure 1.

4.1. MERA

MERA (Mesure et Évaluation en zone Rurale de la pollution Atmosphérique longue distance) est un observatoire français de la pollution de fond atmosphérique et de ses flux transfrontaliers. Cet observatoire, dont les premières mesures datent de 1978 avec une profonde rénovation en 1989,

est dédié au suivi de l'évolution des concentrations et des retombées de polluants atmosphériques sur des sites ruraux non influencés localement et donc avec une très bonne représentativité spatiale régionale. Cet observatoire est la composante française du dispositif européen EMEP (*European Monitoring and Evaluation Program*) de suivi sur le long terme de la pollution atmosphérique, dans le cadre de la convention LRTAP, et certaines stations contribuent au réseau mondial OMM-GAW (*Global Atmosphere Watch WMO-GAW*). Il regroupe également des stations permettant de répondre au système de surveillance national s'agissant de la directive 2008/50/CE (qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe). Les mesures réalisées dans MERA concernent à la fois les retombées humides (composés inorganiques, métaux lourds et hydrocarbures aromatiques polycycliques présents dans les pluies) mais aussi les composés gazeux (O_3 , NO_2 , COV...) et particuliers (nitrates, ammonium, sulfates, métaux lourds, hydrocarbures aromatiques polycycliques, PM_{10} , $PM_{2.5}$...). Des mesures de paramètres météorologiques sont également réalisées sur la majorité des sites. En 2015, 13 sites (figure 1) constituent l'observatoire et sont instrumentés pour la détermination des différents paramètres atmosphériques.

4.1.1. Objectifs

Les objectifs de l'observatoire MERA sont de :

- fournir des données de qualité et à long terme de la composition chimique de l'atmosphère et les dépôts ;
- évaluer dans l'espace et le temps les échanges transfrontaliers de polluants gazeux, particuliers et les précipitations ;
- déterminer l'impact des contaminants atmosphériques sur les différents écosystèmes : dépôts acides, particules ;
- d'évaluer les tendances des principales substances toxiques pour la santé et l'environnement : ozone, oxydes d'azote, COV, métaux lourds, particules fines...

4.1.2. Intérêts

Ces mesures présentent plusieurs intérêts pour les pouvoirs publics, les décideurs politiques et les différentes communautés scientifiques. Il s'agit notamment :

d'un point de vue réglementaire, de :

- veiller au respect des directives européennes en matière de qualité de l'air ambiant ;
- connaître, comprendre et contrôler les contributions de la pollution transfrontière sur la pollution atmosphérique de fond en France ;
- prendre en compte la pollution grande échelle dans les stratégies régionales de lutte contre le changement climatique et les gaz à effet de serre notamment ;
- caler et valider les modèles de chimie-transport des polluants, qui calculent chaque année les flux transfrontaliers entre pays européens dans le cadre de la CLRTAP ;
- suivre les engagements pris par les signataires de la CLRTAP et ses protocoles en termes de réduction de leurs rejets de polluants atmosphériques avec le suivi de la tendance des observations et la comparaison aux évolutions des émissions ;
- négocier de nouveaux protocoles à la CLRTAP.

D'un point de vue des connaissances scientifiques, de :

- constituer une longue série de données représentatives de la pollution de fond, indispensables à l'observation des éventuels changements à long terme de la composition de l'atmosphère terrestre et du fonctionnement de divers écosystèmes ;
- caractériser la physicochimie des polluants atmosphériques à l'état de traces ;
- caractériser et identifier les sources de

polluants et ainsi établir les relations sources-récepteurs ;

- modéliser le transport atmosphérique ;
- évaluer les tendances spatio-temporelles à long terme ;
- déterminer les impacts environnementaux des contaminants atmosphériques.

4.1.3. Organisation

Depuis sa rénovation en 1989, le programme MERA a été soutenu financièrement par le ministère en charge de l'Environnement ou l'ADEME, avec une coordination technique et scientifique de l'École des Mines de Douai, qui assure en plus la responsabilité de l'application du programme d'assurance qualité EMEP en France et sa représentation française pour tous les aspects en lien avec la métrologie des polluants.

Le programme MERA est mis en œuvre actuellement sur 13 sites (figure 1), gérés localement en collaboration par une AASQA (Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air), qui se charge notamment de la collecte des échantillons, de l'étalonnage des instruments, de la maintenance du site et de certains équipements, et de l'envoi des données automatiques dans la base nationale.

Le suivi technique des sites de mesure au niveau national, ainsi que les analyses des échantillons prélevés, sont confiés à des prestataires uniques. Il est en effet essentiel de limiter le nombre d'acteurs impliqués, de façon à réduire les sources de disparité et d'incertitudes qui sont inhérentes aux pratiques individuelles. L'observation des niveaux de fond de la pollution atmosphérique est en effet complexe, du fait des difficultés métrologiques (niveaux de concentrations rencontrés souvent très faibles) et logistiques (installation des sites de mesure dans des lieux retirés) rencontrées. Il est donc indispensable d'appliquer des protocoles de mesure homogènes, de recourir à un même laboratoire par type d'analyses et d'assurer une surveillance transverse au niveau national du parc instrumental.

Au fil des années depuis 1990, plusieurs laboratoires d'analyses se sont succédé.

Actuellement, les analyses et prestations techniques liées à MERA sont confiées à 5 laboratoires : SGS Multilab (pluies/composés soufrés et nitrés) ; TERA Environnement (COV/carbonylés) ; Micropolluants Technologie (métaux lourds et HAP) ; au LSCE (spéciation des PM_{2,5}). Le suivi qualité pour les composés gazeux est assuré par le laboratoire accrédité COFRAC de Métrologie des Polluants Atmosphériques de Douai.

4.2. RENECOFOR/CATAENAT

Les phénomènes de dépérissements massifs de forêts constatés en Europe centrale au début des années 1980, et attribués à l'impact des « pluies acides », ont été l'une des principales motivations à l'origine des accords internationaux de régulation des pollutions atmosphériques. Parallèlement au dispositif EMEP, le programme international concerté sur l'évaluation et la surveillance des effets des pollutions atmosphériques sur les forêts (*ICP Forests*) constitue ainsi une autre composante importante de l'activité de surveillance de la qualité de l'air de la convention LRTAP. Il est basé sur un ensemble de placettes permanentes à l'échelle paneuropéenne, comprenant en France les 102 placettes du Réseau national de suivi à long terme des écosystèmes forestiers (RENECOFOR), créé en 1992 par l'Office National des Forêts (ONF).

4.2.1. Objectifs

Les objectifs du réseau RENECOFOR (redéfinis en 2007) sont de :

- Suivre avec rigueur, de façon continue et à long terme, l'évolution d'écosystèmes forestiers, principalement à vocation de production, sous l'effet de facteurs externes, en particulier le changement climatique (fonction d'observatoire) ;
- Contribuer à la détermination et à la compréhension des relations de causes à effets entre les facteurs externes et les évolutions constatées, et utiliser cette connaissance pour la prévision et l'établissement de scénarios prédictifs grâce à la modélisation ;
- S'inscrire dans le continuum des dispositifs de mesure et d'observation des écosystèmes forestiers permettant les extrapolations et généralisations

nécessaires, en lien avec d'autres dispositifs ou expérimentations pertinents et en développant le partenariat ;

- Éclairer le gestionnaire sur ses choix de gestion durable dans un contexte changeant et incertain.

Les phénomènes à mesurer et à observer sont :

- La réaction des écosystèmes forestiers aux évolutions du climat,
- Le cycle des éléments nutritifs en forêt, notamment en relation avec les dépôts atmosphériques,
- L'évolution de la biodiversité.

Organisation

- Les 102 placettes du réseau RENECOFOR sont réparties en France métropolitaine et couvrent une grande diversité de contextes écologiques. Chaque placette représente une surface fixe de 2 hectares, où le fonctionnement de l'écosystème forestier est observé dans ses différentes composantes : les arbres (état de santé, nutrition, phénologie, croissance, chutes de litière), le sol (morphologie, chimie), la diversité biologique (végétation, champignons supérieurs). La comparabilité des observations, d'une placette à l'autre et au cours du temps, s'appuie sur des protocoles stables et adaptés à des contextes contrastés. Elle repose également sur une organisation fonctionnelle associant la contribution des agents de l'ONF présents localement à l'expertise de chercheurs et d'autres partenaires externes à l'ONF. En plus du suivi de paramètres forestiers, 27 des 102 placettes du réseau RENECOFOR sont équipées pour suivre les facteurs atmosphériques susceptibles d'influencer le fonctionnement de l'écosystème, dont la météorologie, la concentration en ozone et les dépôts de polluants acidifiants et eutrophisants. Ce sous-ensemble de placettes constitue le sous-réseau CATAENAT (Charge Acide Totale d'origine Atmosphérique dans les Ecosystèmes NATurels Terrestres). Le suivi y est organisé afin d'appréhender l'ensemble des formes de retombées de

polluants atmosphériques captés par les forêts. Par contraste avec le réseau MERA, les collecteurs sont ainsi de type « bulk », de manière à capter les retombées non seulement sous forme de précipitations mais aussi de particules. De plus, les prélèvements sont effectués à la fois sous le couvert des arbres et en dehors de ce couvert (dans une clairière ou une zone de lisière forestière proche), de manière à pouvoir prendre en compte les particules atmosphériques captées par la canopée forestière. La fréquence de collecte n'est pas journalière mais hebdomadaire, les analyses chimiques étant réalisées sur des composites de 4 semaines. Ces dernières sont confiées par appel d'offres à un laboratoire unique, actuellement SOCOR. La qualité des analyses est encadrée par un cahier des charges précis, détaillant les normes méthodologiques et les limites de quantification à respecter. Elle est évaluée au regard d'échantillons de contrôle intégrés régulièrement dans les séries d'analyse, ainsi que par la participation du laboratoire aux essais inter-laboratoires organisés tous les 2 ans à l'échelle européenne par le PIC Forêts.

4.3. Tendances observées sur le long terme de la composition chimique des retombées atmosphériques pour les réseaux MERA et CATAENAT

Les deux observatoires ayant une base de données relativement conséquente de plus de 20 ans de mesures, il est possible d'avoir une représentation fiable des tendances observées pour les polluants majeurs surveillés en permanence depuis l'origine. Ces travaux communs (Pascaud *et al.*, 2016) ont été produits dans le cadre du projet PRIMEQUAL/SESAME (2015) financé par l'ADEME. Les résultats des tendances présentés ici ne considéreront que les dépôts atmosphériques de soufre, d'azote et de H⁺ (acidité directe), collectés hors couvert forestier et cumulés par année. Leur dynamique temporelle est analysée sur une fenêtre de 22 années (1993-2014) et suivant un indicateur de concentration agrégé à l'échelle de chacun des deux réseaux MERA et CATAENAT (moyenne des valeurs des différentes stations, pondérée par la pluviométrie) (figure 2). Pour chaque

paramètre et chaque réseau, la significativité de la tendance temporelle est évaluée par le test de Mann-Kendall, et sa pente par la méthode de Sen (Gilbert, 1987 ; Mann, 1945 ; Sen, 1968). Par ailleurs, les variations spatiales des dépôts annuels de soufre et d'azote sont représentées pour la période 1993-1998 sous forme de cartes nationales (figure 3), interpolées selon une approche géostatistique intégrant comme co-variable la pluviométrie des stations Météo-France (environ 2 000 stations) (Croisé *et al.*, 2005 ; Pascaud, 2013).

4.3.1. Acidité directe (pH)

Dans une atmosphère non polluée, l'acidité des précipitations oscille entre un pH de 5,0 et 5,6, suite à la dissolution dans les gouttelettes d'eau des teneurs des principaux composés gazeux de dioxyde de carbone CO₂, de dioxyde de soufre SO₂, et d'oxydes d'azotes NO_x, naturellement présents au sein de l'atmosphère. Les pluies dites acides (pH ≤ 5) sont engendrées par l'apport de protons, associé aux émissions polluantes d'oxydes de soufre et d'azote (retombées respectivement sous forme d'acide sulfurique H₂SO₄ et d'acide nitrique HNO₃). Ces acides forts peuvent réagir avec les bases présentes au sein de l'atmosphère, notamment l'ammoniac NH₃ et les particules de carbonate de calcium CaCO₃. Les eaux de pluies sont considérées comme alcalines lorsque le pH est supérieur ou égal à 6. Entre 1993 et 2014, le pH des retombées atmosphériques présente une hausse significative, de 0,30 % par an (p < 0,01) et 0,46 % par an (p < 0,01) pour les mesures des observatoires CATAENAT et MERA respectivement. Le pH étant une unité logarithmique, cette hausse correspond à une forte diminution de l'acidité des dépôts et concentration en protons, principalement explicable par la baisse importante des émissions de polluants soufrés.

4.3.2. Les sulfates (SO₄²⁻)

Les sulfates (SO₄²⁻) sont des anions analysés couramment dans les retombées atmosphériques. Une partie, d'origine marine, est naturellement présente dans l'atmosphère. Cependant, le développement des activités industrielles au cours du XX^e siècle a été à l'origine de fortes émissions de dioxyde de soufre SO₂, se transformant dans l'atmosphère en acide sulfurique H₂SO₄ dont les retombées contribuent au phénomène d'acidification des écosystèmes. La représentation spatiale des

dépôts de sulfates non marins illustre l'effet à longue portée de ces polluants, les zones les plus affectées ne correspondent pas aux principales régions d'activité industrielle mais à des massifs montagneux captant les précipitations à de longues distances en aval, comme les Vosges ou le Massif central (figure 3). Depuis les années 1990, la concentration en sulfates des retombées atmosphériques a nettement chuté, tant sur le réseau MERA (-3,14 % par an, $p < 0,001$) que sur le réseau CATAENAT (-2,75 % par an, $p < 0,001$). Cette tendance concorde avec la forte réduction de l'acidité des dépôts (hausse significative du pH, ci-dessus) et avec la baisse importante des émissions estimées de polluants soufrés. Elle confirme l'efficacité des politiques de réduction des pollutions atmosphériques en ce qui concerne les émissions de soufre impliquées dans les phénomènes de pluies acides.

4.3.3. Les composés azotés sous forme de nitrates (NO_3^-) et ammonium (NH_4^+)

Les pollutions à l'azote se retrouvent dans les retombées atmosphériques, principalement sous forme d'ions nitrates (NO_3^-) et ammonium (NH_4^+). Ces formes ioniques correspondent à des sources de pollution très différentes : les ions nitrates sont *a priori* issus des émissions d'oxydes d'azote, principalement dues au transport automobile, tandis que les émissions d'ammoniac par les activités agricoles se répercutent davantage sous forme d'ammonium dans les dépôts atmosphériques. Ces deux formes de retombées atmosphériques exercent un rôle fertilisant, pouvant engendrer des déséquilibres nutritifs dans les écosystèmes (eutrophisation), mais aussi acidifiant de par les protons qu'ils apportent (soit sous forme d'acidité directe associée aux ions nitrates, soit sous forme incluse dans les ions ammonium). De même que pour le soufre, les dépôts d'azote ne concernent guère les régions émettant le plus de polluants atmosphériques mais plutôt des massifs montagneux captant les précipitations à de longues distances en aval (figure 3). Au regard de la période étudiée 1992-2014, les concentrations en azote dans les retombées atmosphériques ont diminué significativement quelle que soit leur forme et quel que soit le réseau considéré. Celles de nitrates ont diminué de -1,38 % par an pour CATAENAT ($p < 0,01$) et de -1,07 % par an pour MERA ($p < 0,01$). L'amplitude de cette baisse est deux

à trois fois plus faible que celle de la baisse des SO_4^{2-} , et des concentrations moyennes annuelles élevées de NO_3^- ont été mesurées entre 2003 et 2005 sur les observatoires CATAENAT et MERA (0,35 mgN/l et 0,33 mgN/l respectivement). Pour les concentrations en ammonium, la baisse est plus marquée : -1,96 % par an pour MERA ($p < 0,01$) et -1,98 % par an pour CATAENAT ($p < 0,001$). Comme pour les SO_4^{2-} , les maximums des moyennes annuelles de NH_4^+ ont été atteints en 1993 dans les retombées atmosphériques mesurées sur les deux observatoires : 0,58 mgN/l pour l'observatoire CATAENAT et 0,81 mgN/l pour l'observatoire MERA. Ces tendances mesurées dans les retombées atmosphériques contrastent avec celles des émissions estimées d'azote, ces dernières suggérant une forte diminution des pollutions sous forme oxydée et une relative stagnation sous forme ammoniacale. Plusieurs hypothèses peuvent être envisagées pour expliquer cette divergence entre résultats d'émissions estimées et de retombées mesurées : les pollutions atmosphériques se répercutant loin des sources d'émissions, il est possible notamment que des sources importantes extraterritoriales nécessitent d'être prises en compte pour pouvoir expliquer la dynamique observée dans les dépôts d'azote en France. Quoi qu'il en soit, cette divergence illustre le besoin de mieux comprendre encore la dynamique spatiale des polluants atmosphériques et l'intérêt de suivre à la fois les émissions et les retombées de ces polluants.

5. Impacts sur les écosystèmes forestiers

5.1. La crise du dépérissement forestier et la nécessaire mise en place d'indicateurs

Dès son origine, la convention de Genève s'est attachée à promouvoir des liens étroits entre le développement des travaux scientifiques sur les effets de la pollution de l'air et l'élaboration de politiques de prévention pour réduire les émissions de polluants. Les modes d'action et les impacts réels sur l'environnement étaient en effet à l'époque relativement mal connus. Ceci a grandement contribué à la mise au point de nouvelles stratégies de lutte s'appuyant sur des indicateurs visant à quantifier les risques

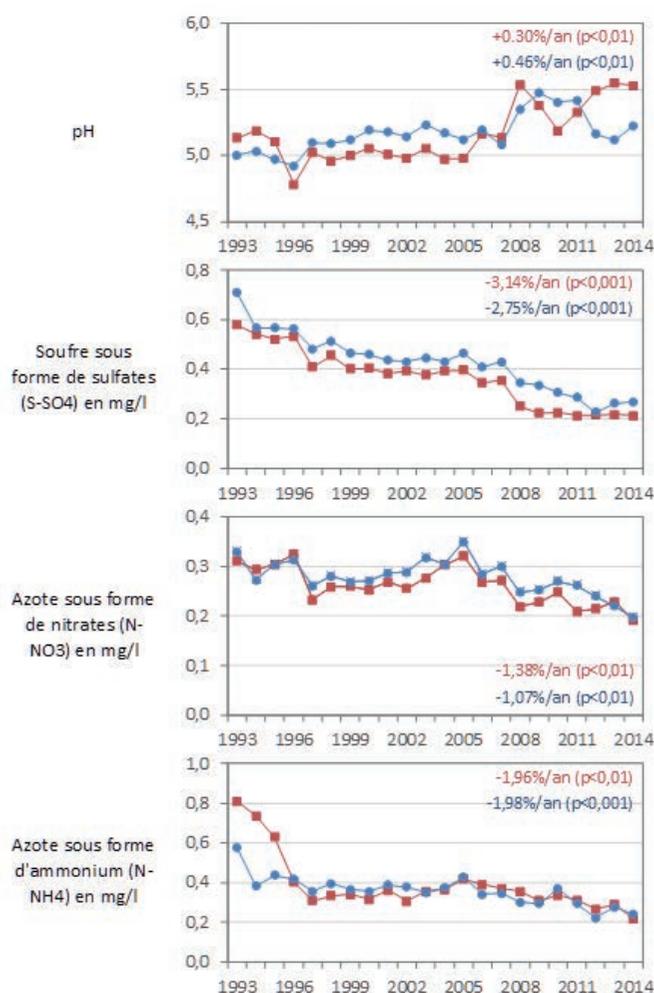


Figure 2.

Évolution de la composition chimique des retombées atmosphériques collectées de 1993 à 2014 sur les observatoires nationaux MERA (en rouge, moyenne de 8 à 12 stations) et CATAENAT (en bleu, moyenne de 27 stations hors couvert forestier) : pH et concentrations moyennes annuelles en soufre (sulfates) et en azote (nitrates, ammonium). Le pourcentage de changement par an est estimé à partir de la méthode de Sen, en utilisant la pente de la tendance linéaire et l'ordonnée à l'origine. La présence d'une tendance monotone est indiquée par une probabilité inférieure au seuil de signification fixé à 95 % (notée p , calculée à partir du test de Mann Kendall).

Evolution of the chemical composition of the atmospheric deposition collected from 1993 to 2014 on the national monitoring observatories MERA (in red, average from 8 to 12 stations) and CATAENAT (in blue, average of 27 stations): pH and annual average concentrations in sulfates and nitrates and ammonium. The percentage of change a year is estimated from the method of Sen by using the slope of the linear trend and y-intercept. The presence of a monotonous trend is indicated by a lower probability at the threshold of meaning fixed to 95 % (noted p , calculated from the test of Mann Kendall).

principaux facteurs ayant stimulé la mise en place de programmes d'évaluation des dommages et de recherche sur les causes du phénomène dans la presque totalité des pays européens et en Amérique du Nord. C'est ainsi que des programmes nationaux, comme DEFORPA (Dépérissement des FORêts attribué à la Pollution Atmosphérique) en France (Dambrine *et al.* 1995 ; Probst *et al.* 1995), ont démarré avec

des budgets très variables selon les pays.

Vingt-cinq années plus tard, la catastrophe écologique annoncée n'a pas eu lieu, et la communauté scientifique s'accorde à admettre qu'il y a eu à l'époque erreur d'appréciation. L'origine de cette perception erronée est notamment à rechercher dans une méconnaissance des mécanismes de régulation de la masse

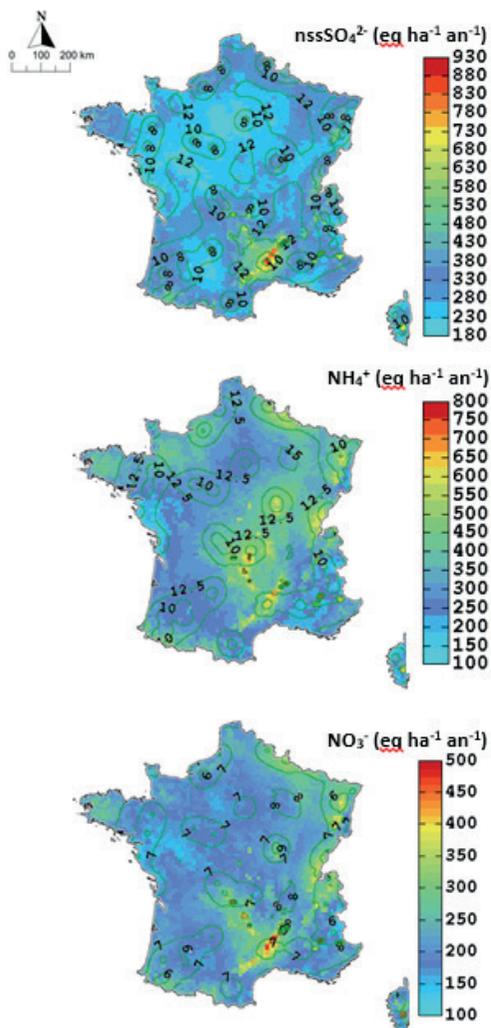


Figure 3.

Cartographies des dépôts totaux annuels moyens (échelle de couleur) et écart-type de krigeage (isolignes vertes) de nssSO_4^{2-} (haut), NH_4^+ (milieu) et NO_3^- (bas), entre 1993 et 1998, selon la méthode de krigeage simple avec dérive externe.

Mappings of the annual average total deposition (colored scale) and related uncertainties (standard deviation of kriging represented by green isolines) for non sea salt SO_4^{2-} (top), NH_4^+ (middle) and NO_3^- (bottom) between 1993 and 1998, according to the method of simple kriging using the rainfall from MeteoFrance stations ($n \approx 2\ 000$) as an external drift.

foliaire des arbres. D'après les conclusions du programme DEFORPA (Landmann, 1991), il n'y avait pas en France de dépérissement des forêts généralisé et uniforme, mais plutôt une diversité d'évolutions en fonction de l'essence et de la région considérées. Les dommages constatés localement sur quelques espèces d'arbres ne semblaient pas avoir un caractère irréversible,

puisque une amélioration de l'état sanitaire de ces essences avait même été enregistrée après 1985 (Landmann, 1991). Les dépôts acides ne sont plus la seule cause invoquée dans le dépérissement ; d'autres facteurs, comme les parasites racinaires, le stress climatique, l'ozone, les dépôts azotés, l'exploitation forestière sont également cités. D'après les résultats expérimentaux, les dépôts acides n'avaient donc que peu d'effets directs sur le feuillage, mais semblaient plutôt provoquer des carences nutritionnelles en calcium et magnésium pour les arbres poussant sur un sol cristallin (cause bien établie du jaunissement des résineux dans le massif vosgien, les Ardennes, la Forêt Noire, etc.).

5.1.1. Charges critiques

5.1.1.1. Définition du concept

Les réductions d'émissions atmosphériques de polluants sont basées sur la définition de charges critiques pour les écosystèmes. Ce concept a été adopté par la commission économique des Nations Unies dans le cadre de la convention de Genève sur la pollution atmosphérique à longue distance. Les charges critiques pour les écosystèmes terrestres sont définies comme « la charge (dépôt anthropique) maximale qui ne conduira pas à un dépassement des concentrations critiques au sein du compartiment étudié, en l'état actuel des connaissances » (Nilsson et Grennfelt, 1988). C'est donc une "valeur d'exposition à un ou plusieurs contaminants en dessous de laquelle des effets significatifs indésirables sur des composantes sensibles de l'écosystème n'apparaissent pas". Les concentrations critiques sont définies, pour le compartiment récepteur (sol, végétation, eaux de surface) à protéger, en fonction des effets écotoxicologiques sur un organisme cible. La charge critique peut donc être considérée comme la valeur de référence, permettant de comparer l'état actuel de pollution d'un compartiment à un état théorique critique. Tout dépassement de la charge critique conduit à une dégradation actée ou programmée de l'écosystème (Moncoulon *et al.*, 2004). L'échelle de temps à laquelle ces effets seront visibles dépend de la dynamique du polluant dans l'écosystème et de la capacité de ce dernier à « tamponner » les apports (Moncoulon *et al.*, 2007). Si les charges critiques sont dépassées, la quantification des excès permet de déterminer les réductions d'émissions à engager pour permettre la résilience des écosystèmes vis-à-vis des perturbations subies. Les charges

critiques ont été initialement définies pour l'acidification et l'eutrophisation, mais ce concept a été ensuite étendu aux métaux, en particulier le cadmium, le plomb et le mercure, qui ont été définis comme éléments prioritaires (De Vries *et al.*, 1998 ; Slootweg *et al.*, 2005 ; Gandois, 2009 ; Bur *et al.*, 2010).

5.1.1.2. Principe de calcul des charges critiques

Les charges critiques sont calculées à l'échelle nationale et européenne en suivant les recommandations d'un *Mapping Manual* (Schutze *et al.*, 2004), selon des modèles élaborés et validés par les experts nationaux au sein de l'ICP⁶ *Modelling & Mapping* du WGE⁷. Elles sont modélisées à l'état stationnaire en utilisant des bilans de flux d'éléments (SMB : *Steady-state Mass Balance*), en considérant que la solution de sol a atteint une concentration maximale admissible d'un point de vue écotoxicologique, *i.e.* la limite critique (Hettelingh *et al.*, 2001, Lofts *et al.*, 2004), ou des modèles dynamiques (Hettelingh *et al.*, 2008 ; De Vries *et al.*, 2010 ; Probst *et al.*, 2015).

Les charges critiques sont un outil de gestion environnemental permettant d'établir un diagnostic de la situation d'un écosystème vis-à-vis des éléments ajoutés d'origine anthropique (concentration de la solution de sol en comparaison de la limite critique), et de sa sensibilité vis-à-vis des apports atmosphériques anthropiques (valeur et dépassement de la charge critique). La charge critique détermine une limite de dépôt à ne pas dépasser. Selon le modèle SMB, $CL_{nut}(N)$ est la charge critique d'azote eutrophisant, $CL_{min}(N)$ et $CL_{max}(N)$ sont les charges critiques minimales et maximales d'acidité liées à l'azote, et $CL_{max}(S)$ est la charge critique d'acidification liée au soufre.

5.1.1.3. États des lieux en France des risques liés à l'acidification et à l'eutrophisation

En France, les forêts représentent 32 % de la surface du territoire. Les charges critiques d'acidification et d'eutrophisation sont généralement établies pour les écosystèmes forestiers, en raison de leur situation protégée vis-à-vis des apports anthropiques en dehors des apports atmosphériques de SO_4^{2-} , de NO_3^- et de NH_4^+ , qui contribuent à l'acidification et l'eutrophisation des sols. Certains écosystèmes terrestres peuvent relativement bien résister aux dépôts acidifiants, en raison de leur pouvoir tampon qui permet par les processus

d'altération des minéraux et/ou d'échange d'ions de neutraliser l'apport de H^+ (Moncoulon *et al.*, 2004). L'eutrophisation, quant à elle, correspond à un excès d'azote dans les écosystèmes. L'azote est le seul nutriment dont le cycle dans l'écosystème est régulé par des processus biologiques et microbiologiques. Considéré comme élément limitant de la croissance des plantes, un excès d'azote peut entraîner divers effets biologiques tels qu'une toxicité directe pour les espèces végétales, un changement dans les espèces végétales en place et donc une perte de biodiversité. L'eutrophisation peut aussi augmenter la sensibilité à l'acidification ou à d'autres stress comme la sécheresse, le gel, etc. (Bobbink et Roelofs, 1995). Aussi, aujourd'hui, de nouveaux indicateurs de changements de biodiversité (HSI) et des modèles dynamiques de charges critiques sont développés pour prendre en compte les effets combinés de l'azote et des changements climatiques sur la végétation de sous-bois (Gaudio *et al.*, 2015 ; Probst *et al.*, 2015a ; 2015b ; Rizzetto *et al.*, 2016).

Les dépôts soufrés et azotés sont le plus souvent estimés à l'aide de modèles déterministes atmosphériques locaux ou régionaux, de type EMEP/RAINS pour les modèles régionaux (Simpson *et al.*, 2012) ou à partir de modèles statistiques basés sur des observations, tels que celui réalisé en France par Croisé *et al.* (2005), plus représentatif des stations (Réseau RENECOFOR partie prenante de l'ICP *Forests*) et des écosystèmes nationaux. En l'état actuel des connaissances sur la base du modèle SMB appliqué sur les stations du réseau RENECOFOR extrapolées aux écosystèmes similaires (figure 4), les zones les plus sensibles au dépôt de soufre sont les Landes (Sud-Ouest), le Sud-Ouest de l'Île de France, en bordure du Massif central et les Vosges (figure 4) (Party, 1999 ; Moncoulon *et al.*, 2004 ; Probst *et al.*, 2010 et 2015). Les zones les plus sensibles aux dépôts d'azote eutrophisants sont la Sologne (centre de la France), la partie nord du Massif-central et la zone Est méditerranéenne.

Au niveau européen, les cartes établies se basent sur les connaissances ou les mesures d'observatoires nationaux existants. Le dernier rapport 2015 de la Task Force européenne « Modeling and mapping the impacts of atmospheric deposition of nitrogen and sulphur » (Slootweg J. *et al.*, 2015) indique entre 2012 et 2015 une très sensible augmentation pour les 50^e et 95^e percentile de la surface européenne, avec

de faibles charges critiques en soufre (figure 5) ; c'est notamment le cas sur l'Ouest et le Sud de la France ($< 100 \text{ eq.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$). Mais il faut néanmoins préciser qu'en 2015 la grille de la maille EMEP est plus fine et résolue qu'en 2012 (50 x 50 km), ce qui rend la visualisation des zones plus sensibles renforcée et vient atténuer cette analyse de légère augmentation d'acidification des écosystèmes.

5.1.2. Indicateurs de santé des forêts

Les changements environnementaux font peser des incertitudes sur l'avenir des forêts et des services qu'elles rendent à la société. Bien que les inquiétudes médiatiques évoluent et tendent à se focaliser sur une menace spécifique à chaque époque (pluies acides dans les années 1980, changement climatique de nos jours), les effets des changements environnementaux nécessitent d'être appréhendés dans leur ensemble par le suivi des pressions prépondérantes qui s'exercent sur l'écosystème forestier (incendies, tempêtes, sécheresses, dégâts phytosanitaires, pollution atmosphérique, changement climatique, dégâts mécaniques aux sols, etc.) et par le suivi de l'état de santé de l'écosystème (niveau de défoliation des arbres, production ligneuse, fertilité chimique et stock de carbone des sols, biodiversité de l'écosystème, etc.).

Des indicateurs de gestion durable des forêts en Europe et en France ont été définis en ce sens (Maaf & IGN, 2016). Depuis 20 ans, les résultats d'observation révèlent des tendances temporelles notables, et parfois inattendues, dans le fonctionnement des écosystèmes forestiers.

Par exemple, les premiers résultats de mesures répétées de la chimie des sols permettent enfin d'observer comment les propriétés de ce compartiment-clé ont évolué, au regard notamment du phénomène d'acidification. En réponse à la forte diminution mesurée des retombées atmosphériques acidifiantes (cf. 4.c.), l'on pouvait espérer une certaine restauration des sols forestiers qui y sont sensibles. En France, les mesures répétées à 15 ans d'intervalle sur l'ensemble du réseau RENECOFOR révèlent en réalité des résultats nuancés (Maaf & IGN, 2016). En effet, les sols les plus acides et sensibles à l'acidification ont continué à s'acidifier significativement, au regard des deux indicateurs que sont le pH et le taux de saturation en bases échangeables. Il est possible que pour ces sols, aux ressources minérales particulièrement pauvres, les dépôts acidifiants soient encore restés trop élevés pour permettre une restauration de leur acidité. Cependant, cette poursuite de leur acidification ne s'est pas accompagnée, comme on aurait pu le craindre, d'un appauvrissement en cations nutritifs : le magnésium dont les arbres pouvaient souffrir de carence dans les

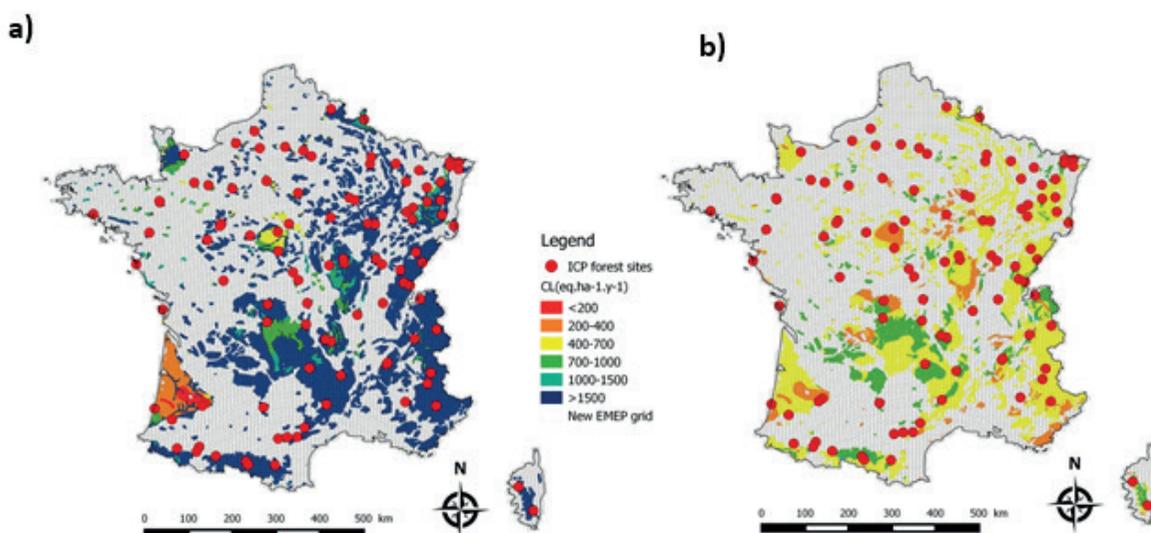


Figure 4. Carte de charge critique d'acidité en soufre (a : CLmax), et charge critique d'eutrophisation en azote (b : CLnutN), pour les écosystèmes forestiers et les prairies (Probst *et al.*, 2015).

*Critical Loads maps for France using the new $0.1^\circ \times 0.05^\circ$ EMEP grid: a) CL of Sulfur CLmaxS; b) CL of nutrient Nitrogen CLnutN. Only forested areas are concerned. Note: Critical Loads for the coastal ecosystems are not considered due to a lack of input data (Probst *et al.*, 2015).*

années 1980 présente notamment des stocks échangeables en augmentation. Le maintien de la fertilité de ces sols les plus acides tient en fait à l'augmentation concomitante de leur capacité de rétention des nutriments, attribuable notamment à un phénomène de séquestration de carbone organique. Car les mesures révèlent aussi que les sols forestiers se sont comportés comme des puits de carbone significatifs, résultat par ailleurs intéressant vis-à-vis des enjeux d'atténuation du changement climatique.

D'autre part, le suivi de la nutrition foliaire des arbres forestiers, dans le cadre du programme ICP Forests, a permis de mettre en évidence des changements significatifs au cours du temps, et notamment une baisse inattendue et inquiétante de leur teneur en phosphore. Cette tendance, tout d'abord publiée à l'échelle de la France, de la Wallonie et du Luxembourg (Jonard *et al.*, 2009), a été confirmée plus largement à l'échelle européenne (Jonard *et al.*, 2015 ; Talkner *et al.*, 2015). Le signal est d'autant plus inquiétant que l'amplitude de la baisse est plus prononcée

pour les placettes d'observation où la nutrition en phosphore est la plus faible, ce qui évoque le développement d'une carence par manque de ressources minérales. Les causes de cette dégradation de la nutrition en phosphore restent à déterminer. Une hypothèse d'explication pourrait être celle d'un déséquilibre nutritif croissant avec l'azote, sous l'effet de dépôts azotés qui sont restés élevés malgré leur baisse relative (*cf.* 4.c.). En effet, le rapport entre les concentrations en azote et en phosphore (N/P) dans les feuilles des arbres présente une nette augmentation au cours du temps. L'évolution des dépôts azotés constitue un enjeu important pour l'avenir des forêts : d'un côté l'effet fertilisant de l'azote accroît leur productivité (Laubhahn *et al.*, 2009 ; Solberg *et al.*, 2009 ; Bontemps *et al.*, 2011 ; Ferretti *et al.*, 2014) et donc leur capacité d'atténuation du changement climatique par la séquestration de carbone atmosphérique, mais d'un autre côté il peut engendrer des déséquilibres nutritifs préjudiciables à leur état de santé et à leur capacité à supporter des événements de stress.

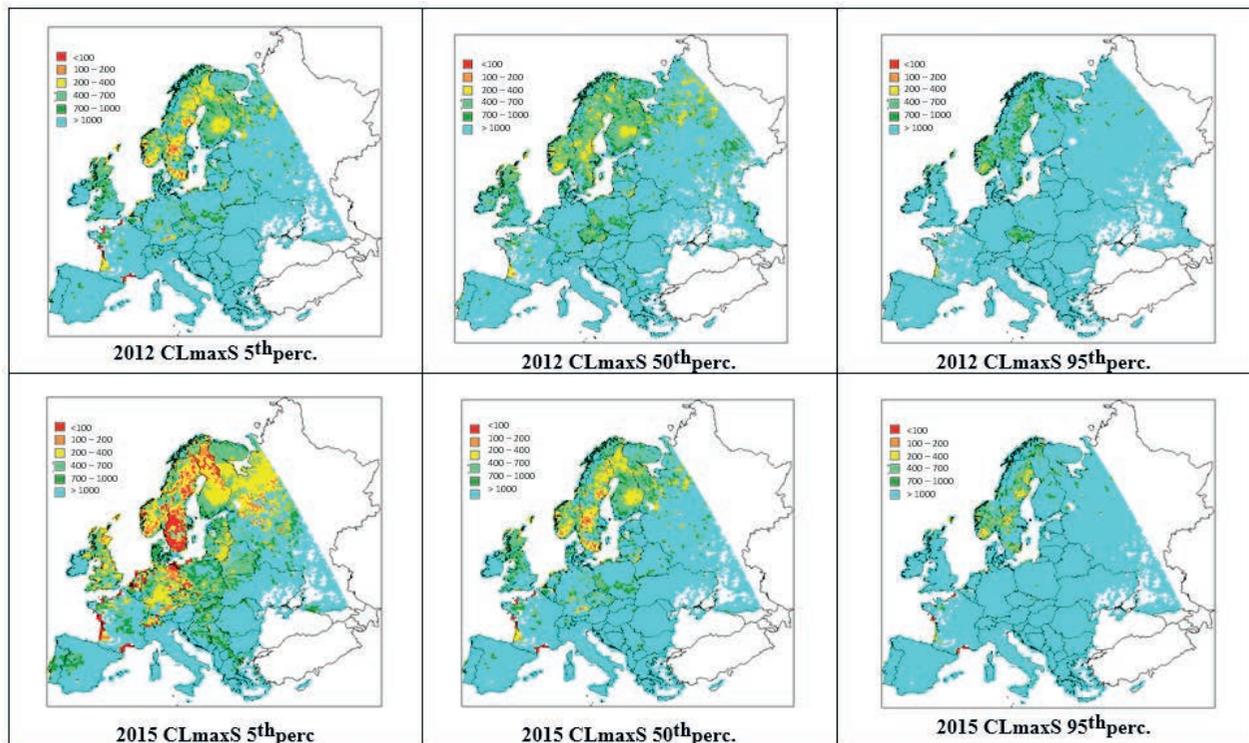


Figure 5. Comparaison des charges critiques d'acidité entre 2012 et 2015 au niveau européen pour les percentiles 5, 50 et 95 (Source Slootweg J. *et al.*, 2015).

Comparison of the critical loads of acidity between 2012 and 2015 to the European level for percentiles 5, 50 and 95.

Ces exemples montrent que les écosystèmes forestiers ne sont pas dans un état stationnaire et que les retombées de polluants atmosphériques restent un facteur d'influence important. Ils illustrent également une réalité plus complexe qu'attendu au moment de la mise en place des dispositifs d'observation, et associant des enjeux liés à différents phénomènes tels que l'acidification, l'eutrophisation et le changement climatique.

6. Conclusion

Depuis la prise de conscience, dans les années 60-70, de la problématique de la qualité de l'air et de l'impact des activités humaines sur la santé et les différents écosystèmes, beaucoup de connaissances ont été engrangées par les différentes communautés scientifiques et ont pu, au final, déclencher des décisions politiques permettant de ralentir ou réduire très fortement les émissions polluantes qui dégradaient notre environnement et notre santé. En effet, que ce soit pour les inventaires d'émissions, la surveillance continue des polluants, la spatialisation et la modélisation des transferts air-sol, l'implémentation d'indicateurs

de santé des écosystèmes, tous ces éléments ont contribué à une meilleure connaissance de notre environnement et des impacts de nos activités anthropiques. D'autres impacts viennent s'ajouter au dégâts déjà identifiés, et la vigilance de surveillance des polluants générés par nos activités doit être maintenue par la pérennisation des observatoires déjà en place depuis de longue date. L'ensemble des observations cumulées depuis plusieurs décennies permet d'avoir une bonne vision de l'état de notre environnement atmosphérique et de son évolution ; des projections sur des périodes de 20 à 30 ans sont ainsi possibles avec un bon indice de confiance.

Les auteurs sont reconnaissants envers ATMO-France, les AASQA et les autres organismes gestionnaires des stations de l'observatoire MERA et des gestionnaires des stations du réseau RENE-COFOR/CATAENAT pour leur dévouement et professionnalisme au quotidien, ainsi qu'envers le personnel des laboratoires d'analyse. Les financeurs de ces programmes sont également remerciés pour leur soutien : ADEME, ministères en charge de l'Environnement et de l'Agriculture, l'Office National des Forêts et l'Union Européenne.

Références

- ADEME. (2013). Analyse du potentiel de 10 actions de réduction des émissions d'ammoniac des élevages français aux horizons 2020 et 2030, 237 p.
- Bobbink R, Roelofs JM. (1995). Nitrogen critical loads for natural and semi-natural ecosystems: The empirical approach. *Water, Air, and Soil Pollution*, n° 85(4), p. 2413-2418.
- Bontemps JD, Hervé JC, Leban JM, Dhôte JF. (2011). Nitrogen footprint in a long-term observation of forest growth over the twentieth century. *Trees*, n° 25, p. 237-251.
- Bur T, Probst A, Bianco A et al. (2010). Determining cadmium critical concentrations in natural soils by assessing Collembola mortality, reproduction and growth. *Ecotoxicology and Environment Safety*, n° 73, p. 415-422, doi:10.1016/j.ecoenv.2009.10.010
- CITEPA. (2016). Inventaire des émissions de polluants atmosphériques et de gaz à effet de serre en France. Format SECTEN, 310 p. [En ligne] : www.citepa.org.
- Croisé L, Ulrich E, Duplat P, Jaquet O. (2005). Two independent methods for mapping bulk deposition in France. *Atmospheric Environment*, n° 39(21), p. 3923-3941.
- CPATLD. (1999). Protocole de 1999 à la Convention sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance, relatif à la réduction de l'acidification, de l'eutrophisation et de l'ozone troposphérique, tel que modifié le 4 mai 2012 (ECE/EB.AIR/114.).
- CE. (2001). Directive n° 2001/81/CE du 23/10/01 fixant des plafonds d'émission nationaux pour certains polluants atmosphériques.
- Dambrine E, Ulrich E, Cénac N et al. (1995). Atmospheric deposition in France and possible relation with forest decline. Dans

- Landmann G, Bonneau M (dir). *Forest decline and atmospheric deposition effects in the French mountains*. G. Springer, Berlin, p. 177-199.
- De Vries W, Schütze G, Lofts S *et al.* (2005). Calculation of critical loads for cadmium, lead and mercury. Alterra Report.
 - De Vries W, Wamelink GW, van Dobben H *et al.* (2010). Use of dynamic soil–vegetation models to assess impacts of nitrogen deposition on plant species composition: An overview. *Ecological Applications*, n° 20, p. 60-79.
 - De Vries W, Hettelingh JP, Posch M. (dir.). (2015). *Critical Loads and Dynamic Risk Assessments: Nitrogen, Acidity and Metals in Terrestrial and Aquatic Ecosystems*. Dordrecht, Netherlands, Springer.
 - EMEP. (2013). EMEP/EEA emission inventory guidebook 2013. Technical guidance to prepare national emission inventories (Chapter Small combustion, 206 p.).
 - Ferretti M, Marchetto A, Arisci S. *et al.* (2014). On the tracks of Nitrogen deposition effects on temperate forests at their southern European range - an observational study from Italy. *Global Change Biology*, n° 20(11), p. 3423-3438, DOI:10.1111/gcb.12552
 - Gandois L. (2009). « Dynamique et bilan des Éléments Traces Métalliques (ETM) dans des écosystèmes forestiers français. Modélisation, Spéciation et Charges Critiques ». Thèse, université de Toulouse.
 - Gaudio N, Belyazid S, Gendre X *et al.* (2015). Combined effect of atmospheric nitrogen deposition and climate change on temperate forest soil biogeochemistry: a modelling approach. *Ecological Modelling*, n° 306, p. 24-34.
 - Gilbert RO. (1987). *Statistical methods for environmental pollution monitoring*. New-York, John Wiley & Sons, Inc.
 - Hettelingh JP, Posch M, De Smet PA. (2001). Multi-effect critical loads used in multi-pollutant reduction agreements in Europe, *Water Air Soil Pollut.*, n° 130 (1-4), p. 1133-1138.
 - Hettelingh JP, Posch M, Slootweg J. (2008). Critical Load, Dynamic Modelling and Impact Assessment in Europe, CCE status report.
 - Jonard M, André F, Dambrine E *et al.* (2009). Temporal trends in the foliar nutritional status of the French, Walloon and Luxembourg broad-leaved plots of forest monitoring. *Annals of Forest Science*, n° 66(4), p. 412.
 - Jonard M, Fürst A, Verstraeten A *et al.* (2015). Tree mineral nutrition is deteriorating in Europe. *Global Change Biology*, n° 21(1), p. 418-430. Landmann G. (1991). Dépérissement des forêts et pollution atmosphérique, *Pollution Atmosphérique*, janvier-mars, p. 64-69.
 - Landmann G. (1992). Dépérissement des forêts et pollution atmosphérique : ce que nous avons appris. *Pollution Atmosphérique*, n° 133, p. 81-92.
 - Laubhann D, Sterba H, Reinds GJ, de Vries W. (2009). The impact of atmospheric deposition and climate on forest growth in European monitoring plots: An individual tree growth model. *Forest Ecology and Management*, p. 258, p. 1751-1761.
 - Lofts S, Spurgeon DJ, Svendsen C, Tipping E. (2004). Deriving Soil Critical Limits for Cu, Zn, Cd, and Pb: A Method Based on Free Ion Concentrations. *Environmental Science & Technology*, n° 38(13), p. 3623-3631.
 - Maaf, IGN. (2016). Indicateurs de gestion durable des forêts françaises métropolitaines, édition 2015. Paris, Maaf-IGN, 343 p.
 - Mann HB. (1945) Nonparametric tests against trend. *Econometrica*, n° 13, p. 245-259.
 - Moncoulon D, Probst A, Party JP. (2004). Weathering, atmospheric deposition and vegetation uptake: role for ecosystem sensitivity to acid deposition and critical load. *Comptes-rendus Geosciences*, n° 336(16), p. 1417-1426.
 - Moncoulon D, Probst A, Martinson L. (2007). Modelling acidification recovery on threatened ecosystems: application to the evaluation of the Gothenburg protocol. *Water, Air and Soil Pollution*, n° 7(1-3), p. 307-316.
 - Nilsson and Grennfelt. (1988). Critical loads for Sulfur and Nitrogen. *Miljo report, Nordic council of ministers*, Copenhagen, n°15, 418 p.
 - Party JP. (1999). « Acidification des sols et des eaux de surface des écosystèmes forestiers français : facteurs, mécanismes et tendances ». Thèse, université Louis Pasteur, Strasbourg 1.
 - Pascaud A. (2013). « Déterminants des évolutions spatio-temporelles des retombées atmosphériques acidifiantes et eutrophisantes en France et élaboration d'un modèle de projection ». Thèse, École des Mines de Douai, université des Sciences et Technologies de Lille.
 - Pascaud A, Sauvage S, Coddeville P *et al.* (2016). Contrasted spatial and long-term trends in precipitation chemistry and deposition fluxes at rural stations in France, *Atmospheric Environment*. DOI: doi:10.1016/j.atmosenv.2016.05.019
 - PRIMEQUAL/SESAME, Pascaud A, Sauvage S *et al.* (2015). 20 ans de mesureS des retombÉeS AtMosphÉriqueS en France (SESAME) ». Rapport de contrat ADEME, n° 0962C0014.

- Probst A, Fritz B, Viville D. (1995). Mid-term trends in acid precipitation, streamwater chemistry and element budgets in the strengbach catchment (Vosges mountains, France). *Water, Air and Soil Pollution*, n° 79, p. 39-59.
- Probst A, Moncoulon D, Party JP. (2005). French National Focal Center report. Dans : *European Critical loads and Dynamic Modelling*, CCE Status Report 2005. Bilthoven, The Netherlands, M. Posch, J. Slootweg, J.-P. Hettelingh (eds), p. 109-115.
- Probst A, Bortoluzzi E, Mansat A. (2010). French National Focal Center report. Dans : *Progress in the modelling of critical thresholds and dynamic modelling, including impacts on vegetation in Europe*, CCE Status Report 2010. Bilthoven, The Netherlands, J. Slootweg, J.-P. Hettelingh, M. Posch (eds), p. 137-143.
- Probst A, Obeidy C, Gaudio N *et al.* (2015a). Évaluation of plant-responses to atmospheric nitrogen deposition in France using integrated soil-vegetation models.
- Probst A, Rizzetto S, Mansat A. (2015b). National Focal Centre report: France. Dans : *Modelling and Mapping the impacts of atmospheric deposition of nitrogen and sulphur*. CCE Status report 2015- RIVM Report -0193, Slootweg J., Posch M., Hettelingh J.P. (Eds.), p. 83-96, 180p. ISBN 978-90-6960-283-7.
- Rizzetto S, Belyazid S, Gegout JC *et al.* (2016). Modelling the impact of climate change and atmospheric N deposition on French forests biodiversity. *Env. Poll.*, n° 213, p. 1016-1027.
- Schutze G, de Vries W, Tipping E, Lofts S. (2004). Chapter 5.5, Critical loads of cadmium, lead and mercury, Manual on methodologies and criteria for modeling and mapping critical loads and levels and air pollution effects, risks and trends, dans Lorenz U, Gregor H (dir.), *Task Force on Modeling and Mapping*, Umweltbundesamt, Spranger, T.
- Sen PK. (1968). Estimates of the regression coefficient based on Kendall' tau. *Journal of the American Statistical Association*, n° 63, p. 1379-1389
- Simpson D, Benedictow A, Berge H *et al.* (2012). The EMEP MSC-W chemical transport model - technical description. *Atmospheric Chemistry and Physics*, n° 12, p. 7825-7865.
- Slootweg J, Hettelingh JP, Posch M, Ilyin I. (2005). *Critical loads of cadmium, lead and mercury in Europe*. LRTAP.
- Slootweg J, Posch M, Hettelingh JP (dir.). (2015). *Modelling and mapping the impacts of atmospheric deposition of nitrogen and Sulphur*, CCE Status Report 2015, Coordination Centre for Effects. [En ligne] : www.wge-cce.org.
- Solberg S, Dobbertin M, Reinds GJ *et al.* (2009). Analyses of the impact of changes in atmospheric deposition and climate on forest growth in European monitoring plots: A stand growth approach. *Forest Ecology and Management*, n° 258, p. 1735-1750.
- Talkner U, Meiwes KJ, Potočić N *et al.* (2015). Phosphorus nutrition of beech (*Fagus sylvatica* L.) is decreasing in Europe. *Annals of Forest Science*, n° 72(7), p. 919-928, DOI 10.1007/s13595-015-0459-8.

Notes

1. Niveau fixé sur la base des connaissances scientifiques, dans le but d'éviter, de prévenir ou de réduire les effets nocifs sur la santé humaine et/ou l'environnement dans son ensemble, à atteindre dans un délai donné et à ne pas dépasser une fois atteint.
2. Niveau fixé sur la base des connaissances scientifiques, au-delà duquel des effets nocifs directs peuvent se produire sur certains récepteurs, tels que arbres, autres plantes ou écosystèmes naturels, mais pas sur des êtres humains.
3. Pourcentage de la valeur limite dont cette valeur peut être dépassée dans les conditions fixées par la présente directive.
4. Directive NEC (*National Emission Ceilings*) : cette directive 2001/81/CE du 23 octobre 2001 fixait les plafonds d'émission nationaux pour chaque État membre pour les émissions de quatre polluants : SO₂, NO_x, NH₃ et COVNM, tous secteurs confondus, à respecter en 2010. La directive vise à réduire les effets des polluants sur l'acidification, l'eutrophisation et la formation de l'ozone troposphérique.
5. Le concept de charges critiques vise à évaluer la sensibilité d'un écosystème vis-à-vis d'un polluant atmosphérique donné. La charge critique peut donc être considérée comme la valeur de référence, permettant de comparer l'état actuel de pollution d'un compartiment à un état théorique critique.
6. *Inter-Cooperative Program*.
7. *Working Group on Effects*.