



**HAL**  
open science

# La réduction des émissions polluantes se répercute-t-elle pleinement dans les retombées atmosphériques de soufre et d'azote en France ?

Aude Bourin, Stéphane Sauvage, Patrice Coddeville, Manuel Nicolas, Luc Croisé, Anne Probst

## ► To cite this version:

Aude Bourin, Stéphane Sauvage, Patrice Coddeville, Manuel Nicolas, Luc Croisé, et al.. La réduction des émissions polluantes se répercute-t-elle pleinement dans les retombées atmosphériques de soufre et d'azote en France ?. Rendez-vous Techniques de l'ONF, 2018, RENECOFOR : 25 ans de suivi des écosystèmes forestiers, bilan et perspectives, 58-59-60, pp.72-76. hal-02364388

**HAL Id: hal-02364388**

**<https://hal.science/hal-02364388v1>**

Submitted on 12 Jul 2024

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## LA RÉDUCTION DES ÉMISSIONS POLLUANTES SE RÉPERCUTE-T-ELLE PLEINEMENT DANS LES RETOMBÉES ATMOSPHÉRIQUES DE SOUFRE ET D'AZOTE EN FRANCE ?

**Aude Bourin**

IMT Lille Douai, Sciences de l'Atmosphère et Génie de l'Environnement (SAGE)

**La réduction des émissions polluantes se répercute-t-elle pleinement dans les retombées atmosphériques de soufre et d'azote en France ?**

Aude Bourin, Stéphane Sauvage, Patrice Coddeville, Manuel Nicolas, Luc Croisé, Anne Probst

Les résultats que je vais présenter sont issus du projet SESAME (2010-2014), dans le cadre du programme PRIMEQUAL\* « Pollution longue distance » piloté par l'Ademe et le ministère de l'Écologie. Projet multipartenarial coordonné par le département SAGE de l'IMT\* Lille-Douai et qui associait notamment le laboratoire EcoLab (incarné ici par Anne Probst) et l'ONF (RENECOFOR). Ces travaux ont perduré ensuite avec la collaboration de l'ONF et d'EcoLab.

Pour rappel, le département SAGE est le coordinateur technique et scientifique de l'observatoire de Mesure et d'Évaluation en zone Rurale de la pollution Atmosphérique à longue distance, le réseau MERA.

**L'objectif de ces travaux** était de savoir si, à partir des réseaux d'observation installés maintenant depuis un certain nombre d'années, on parvenait à estimer des tendances temporelles, des évolutions en termes de concentrations de soufre et d'azote dans les précipitations, et également en termes de dépôts. On a tenté de comprendre les déterminants et on verra par la suite que c'est plus complexe qu'on ne le croit. Tout ça pour évaluer les politiques de réduction des émissions polluantes.

**Jeux de données de retombées atmosphériques**

**RENECOFOR Sous-réseau CATAENAT**

programme PIC Forêt (ONF)  
Obj.: santé des forêts  
[1993, ...] 28 jours - 27 placettes retombées totales hors couvert

**Observatoire MERA**

programme EMEP (IMT Lille Douai)  
Obj.: pollution longue-distance  
[1989, ...] journalier - 8-12 sites retombées humides

### Jeux de données et méthode d'estimation des tendances

Pour ces travaux, nous avons utilisé – et comparé – les données sur les retombées atmosphériques produites par RENECOFOR sur le sous-réseau CATAENAT et par l'observatoire MERA\*.

CATAENAT comprend 27 placettes réparties de façon assez homogène sur l'ensemble du territoire comme on le voit sur la carte (points noirs) : il s'agit des retombées totales, hors couvert, mesurées sur 28 jours. De son côté, l'observatoire MERA fait partie du programme EMEP\* pour la mesure et l'évaluation des pollutions à longue distance à l'échelle européenne. C'est un peu comme le PIC Forêts\* mais l'objectif est de caractériser les pollutions à longue distance sur tout le réservoir atmosphérique : on est vraiment au-dessus de l'interface sol. Les mesures sur cet observatoire MERA sont réalisées de manière journalière et ne concernent que les retombées humides ; grâce à un couvercle qui ne s'ouvre qu'en cas de pluie, on ne récupère que la pluie, pas les dépôts secs. Il y a une douzaine de sites en France (points blancs) en tout cas sur la période qui nous intéresse, de 1990 jusqu'à 2015.

**Comment estimer une tendance et détecter si elle est significative ?**

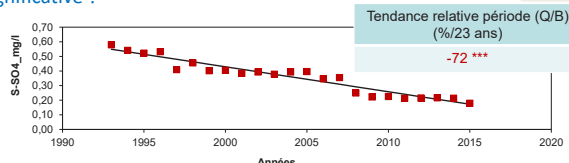
Evolution temporelle des concentrations moyennes annuelles de soufre sous forme de sulfates (moyenne MERA entre 8 et 12 stations)

Différentes méthodes : régression linéaire, au moindre carré, test Buishand, rupture, etc.

- Robustesse, normalité, petits échantillons
- tests de Sen-Theil & Mann-Kendall (WMO Robson et al., 2010; Sirois et al., 1998; Yue et al., 2002, 2004)

Voyons sans entrer dans le détail comment on estime une tendance. Voici une série temporelle des concentrations moyennes de soufre, sous forme de sulfate, dans les pluies de l'observatoire MERA. On voit bien qu'il y a une tendance mais par quelle méthode l'estimer et comment la quantifier, pour savoir si elle est significative ? Il existe différentes méthodes. Celle que nous avons adoptée consiste en deux tests statistiques : tests de Sen-Theil et de Mann-Kendall.

## Comment estimer une tendance et détecter si elle est significative ?



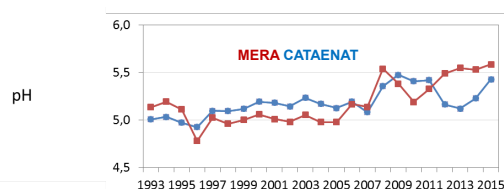
Evolution temporelle des concentrations moyennes annuelles de soufre sous forme de sulfates (moyenne MERA entre 8 et 12 stations)

1. Test de Sen-Theil -> pente de la tendance (Q) et ordonnée à l'origine (B)
2. Test de Mann-Kendall -> tendance significative

Symbole	Tendance significative
***	très fortement
**	fortement
*	modérément
+	faiblement
ns	non significative

5

## Evolution temporelle de l'acidité des retombées atmosphériques



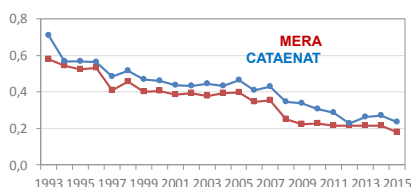
Observatoires	Tendance relative période (%/23 ans)	Symbole significativité
MERA	+12	**
CATAENAT	+8	***

> Augmentation du pH, baisse de l'acidité libre des retombées atmosphériques

6

## Evolution temporelle des concentrations moyennes annuelles

### Soufre sous forme de sulfate S-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> (mg/l)



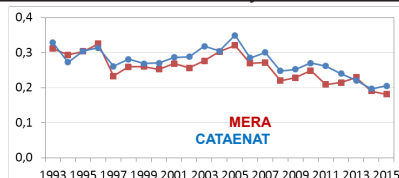
Observatoires	Tendance relative période (%/23 ans)	Symbole significativité
MERA	-72	***
CATAENAT	-63	***

> Diminution des concentrations de sulfate  
▪ en lien avec l'augmentation du pH

7

## Evolution temporelle des concentrations moyennes annuelles

### Azote sous forme de nitrate N-NO<sub>3</sub> (mg/l)



Observatoires	Tendance relative période (%/23 ans)	Symbole significativité
MERA	-35	***
CATAENAT	-28	***

> Diminution des concentrations de nitrates  
▪ en lien avec l'augmentation du pH  
▪ plus marquée sur la deuxième période  
> Amplitude plus faible que celles de sulfates

8

Le test de Sen-Theil permet d'avoir la pente de la tendance et une ordonnée à l'origine qui permet d'estimer une tendance relative sur une période donnée, ici de 23 ans (1993-2015). Le test de Mann-Kendall permet de connaître la significativité de cette tendance : de très fortement significative (\*\*\*) à modérément significative (\*) ou non significative (ns).

## Résultats : estimation des tendances

Entrons dans le vif du sujet. Commençons par les mesures de pH dans les retombées atmosphériques du réseau MERA (en rouge) et du réseau CATAENAT (en bleu) entre 1993 et 2015. On voit une évolution, qui a été caractérisée : 12 % sur la période de 23 ans pour MERA et 8 % pour CATAENAT, soit un ordre de grandeur similaire. Cette augmentation de pH indique une baisse de l'acidité libre des retombées atmosphériques sur le sol : ce qui va tomber hors couvert et en zone rurale.

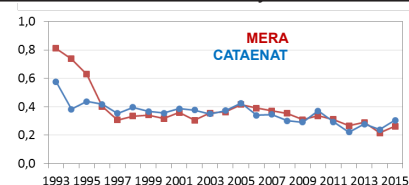
Pour les concentrations de soufre sous forme de sulfate, on voit une baisse importante, avec une significativité très forte : -72 % sur MERA et -63 % sur CATAENAT, et cette baisse est en lien avec l'augmentation du pH.

Pour l'azote sous forme de nitrate, on a encore des tendances comparables, mais assez différentes de celles des sulfates. Globalement la baisse est de -35 % sur MERA et -28 % sur CATAENAT, également en lien avec l'augmentation du pH, mais on peut distinguer deux périodes avec une diminution plus marquée en seconde période (à partir des années 2003-2005). L'amplitude de la baisse est deux fois moins importante que celle des sulfates.

Enfin pour l'azote sous forme d'ammonium : tendance à la baisse assez marquée, très significative, comparable entre MERA et CATAENAT (environ -44 %) et cette diminution est plus marquée en début de période, essentiellement sur les premières années.

## Evolution temporelle des concentrations moyennes annuelles

### Azote sous forme d'ammonium N-NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (mg/l)



Observatoires	Tendance relative période (%/23 ans)	Symbole significativité
MERA	-45	***
CATAENAT	-43	***

> Diminution des concentrations d'ammonium  
▪ plus marquée sur la première période

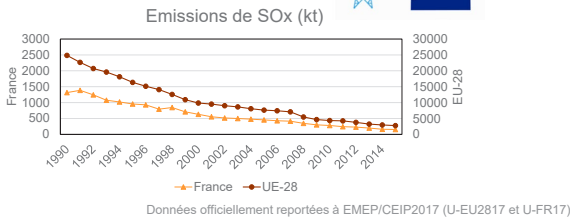
9

## Résultats / Discussion



### Quels mécanismes ?

- Emissions polluantes



- Efficacité des politiques de réduction pour le dioxyde de soufre

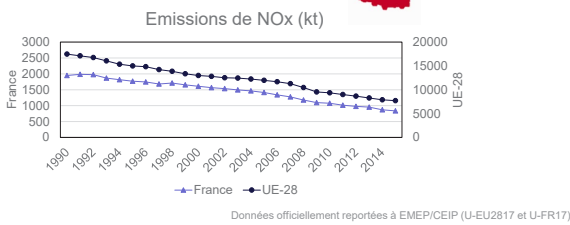
10

## Résultats / Discussion



### Quels mécanismes ?

- Emissions polluantes



- Efficacité des politiques de réduction pour l'azote oxydé
- Décalage entre le début de la baisse des émissions de NOx et celle des concentrations de NO<sub>3</sub> dans les retombées atmosphériques

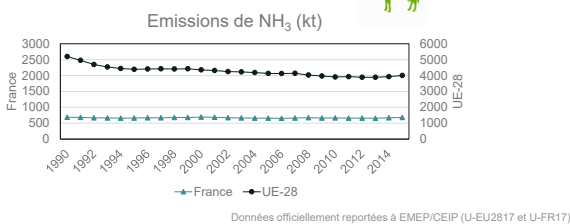
11

## Résultats / Discussion



### Quels mécanismes ?

- Emissions polluantes



- Emissions d'azote réduites en France ne baissent pas et l'Europe baisse peu
- ≠ diminution de l'azote sous forme d'ammonium dans les retombées atmosphériques

12

## Quels sont les mécanismes de ces évolutions ?

Les sulfates des retombées atmosphériques sont liés aux émissions de dioxyde de soufre, principalement par les industries de transformation de l'énergie et l'industrie manufacturière. Le graphique présente l'évolution des émissions de dioxyde de soufre en France (orange, échelle de gauche) et dans l'Europe des 28 (en rouge, échelle de droite). On peut en conclure qu'effectivement les politiques de réduction ont été efficaces pour le SO<sub>2</sub>.

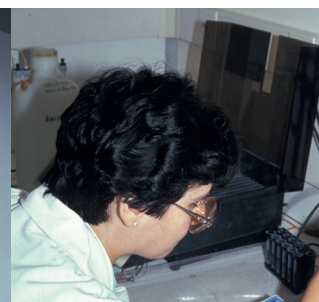
En ce qui concerne les émissions d'oxydes d'azote (NOx) par le transport routier, en France (bleu clair, échelle de gauche) et en Europe (bleu foncé, échelle de droite), on a également des tendances à la baisse. Ces émissions de NOx sont à rapprocher des retombées de nitrate, et on a vu que les dépôts azotés sous forme de nitrate avaient diminué (environ -35 %) entre 1993 et 2015, c'est donc important de voir que ces observations se corroborent. Par contre, on remarque qu'il y a eu un délai entre la baisse des émissions de NOx (qui ne manifeste pas de changement de pente) et celle des retombées azotées sous forme de nitrate qui ne diminuent de manière plus marquée qu'à partir de 2005.

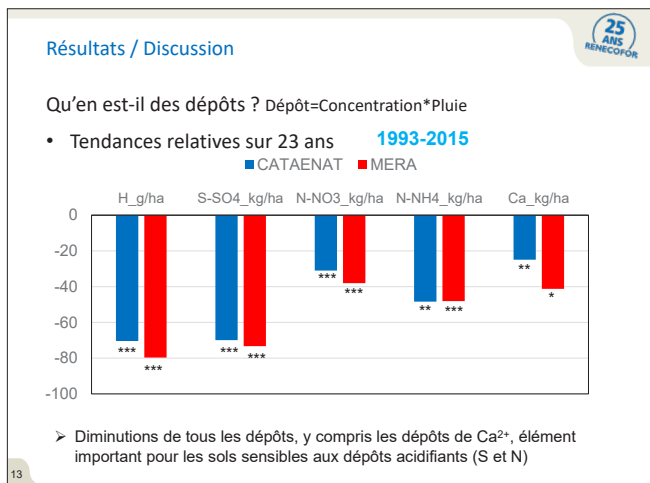
Pour l'ammoniac (azote sous forme réduite), qui est principalement issu de l'agriculture et de la sylviculture et qui est lié aux concentrations d'ammonium dans les retombées, le constat est très différent. Les émissions en France (bleu clair, échelle de gauche) n'évoluent pas depuis les années 1990 et en Europe (bleu foncé, échelle de droite), elles baissent, mais assez peu, alors qu'on a vu une diminution des retombées d'ammonium, surtout sur la première période.



Photo : Sébastien Cecchini, ONF

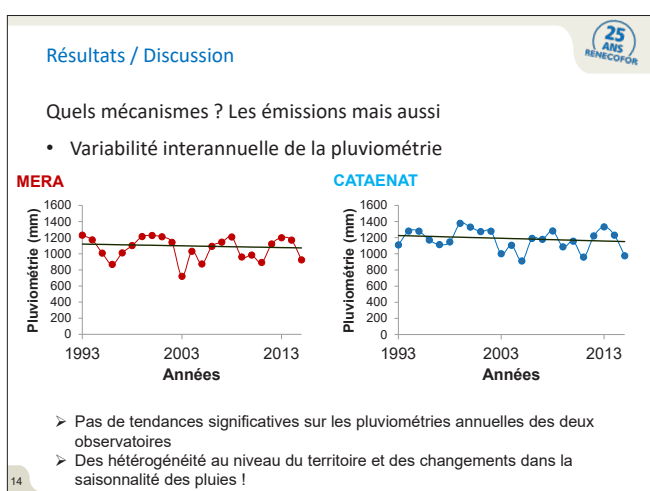
Placette du sous-réseau CATAENAT (Aigoual, HET30) pour la mesure des dépôts hors couvert





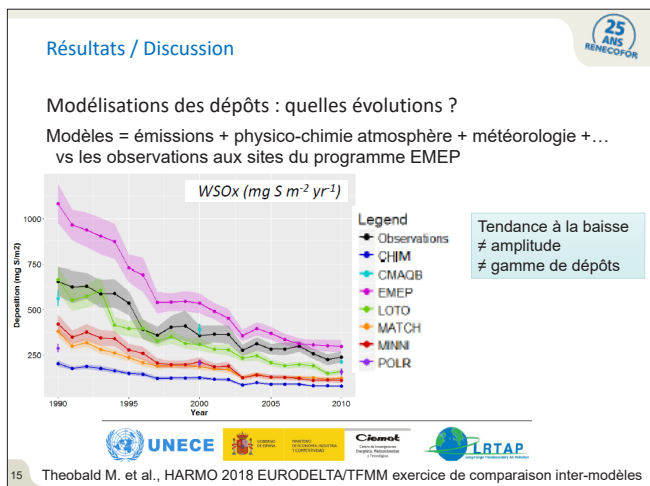
Au final, ce qui intéresse la communauté des forestiers c'est le dépôt, c'est-à-dire la concentration multipliée par la quantité de pluie tombée, alors que la communauté de l'atmosphère s'intéresse plutôt à la concentration pour essayer de comprendre les processus impliqués.

Pour les dépôts, les tendances sur les deux réseaux sont présentées différemment et de façon plus synthétique : ce graphique vous présente les tendances relatives, entre 0 et -100 %, pour les dépôts de H<sup>+</sup> (protons), de soufre sous forme de sulfate, d'azote sous forme de nitrate et d'ammonium, et de calcium. On constate que les diminutions sont avérées pour toutes les formes d'ions inorganiques et notamment, Laurent Saint-André l'a souligné précédemment, pour les dépôts de Ca<sup>2+</sup> (calcium), qui est un élément très important pour les sols dits « sensibles aux dépôts acidifiants ».



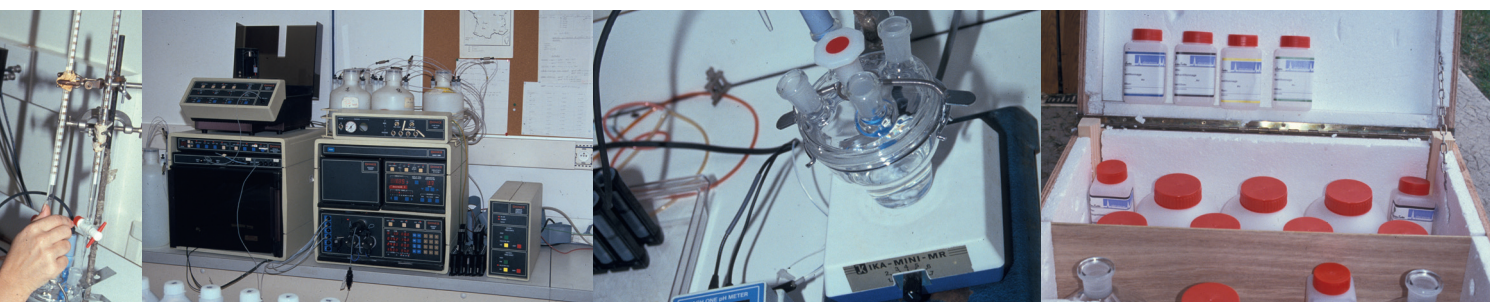
Qu'y a-t-il derrière ces dépôts ? Les émissions bien sûr mais aussi la variabilité de la pluviométrie. Pour la pluie, la variabilité interannuelle est extrêmement forte et on ne voit pas de tendance significative sur la pluviométrie annuelle, en tout cas sur les 23 ans de données. Par contre il y a des choses intéressantes à regarder plus en détail (mais ç'aurait été trop long de le présenter ici), au niveau spatialisation du territoire et au niveau saisonnalité des pluies.

Pour finir, je vais **parler un peu de modélisation**. L'idée est de chercher à reproduire l'évolution observée des dépôts pour pouvoir faire ensuite des projections dans l'espace et le temps.



Il existe pour ça divers modèles, qui ont plusieurs variables d'entrée : les émissions, la physicochimie de l'atmosphère qui est plus ou moins connue, la météorologie qui a également ses incertitudes, etc. Voici les résultats d'un exercice de comparaison de modèles, que Marc Théobald vient de présenter à la conférence HARMO 18. Les évolutions simulées ont été comparées aux observations : la courbe noire représente les observations sur les sites du programme EMEP et les courbes colorées correspondent aux différents modèles. On se rend compte que la tendance à la baisse est bien captée par les modèles, par contre l'amplitude est très différente, notamment pour le modèle EMEP (en rose), et on a des gammes de dépôt, notamment dans les années 90, qui ne sont pas du tout comparables aux moyennes observées sur les sites.

Donc il y a encore du travail à faire et ça permet d'orienter les travaux de recherche sur différents mécanismes qui sont encore mal connus.



Photos : Erwin Ulrich, ONF

## Conclusions

25 ANS  
RENECOFOR

- Efficacité des politiques de réductions en S, plus modéré pour N oxydé
- Baisse de composés N réduits alors que les émissions France ne baissent pas
  - effet à longue distance de la pollution atmosphérique
  - chimie atmosphérique complexe
  - incertitudes inventaires d'émissions
- la pluviométrie identifiée comme déterminant
  - ❖ contexte de changement climatique
- Progresser dans la compréhension des processus pour améliorer la modélisation des dépôts et de leurs impacts sur les écosystèmes
- Complémentarité des observatoires et des communautés scientifiques
- Synergie avec la recherche sur les impacts et les calculs de charge critique

16

## Conclusions

On a vu l'efficacité des politiques de réduction pour le soufre, plus modérée pour les oxydes d'azote. La baisse des composés azotés réduits (ammonium) n'est pas vue dans les émissions, en France en tout cas : on peut imaginer qu'il y a un effet à longue distance de la pollution atmosphérique ; il y a également une chimie qui est complexe dans le réservoir atmosphérique, il ne faut pas le négliger, et il y a également des incertitudes sur les inventaires d'émissions.

La pluviométrie est un déterminant important des dépôts, et il faut penser qu'on est dans un contexte de changement climatique : si la pluviométrie a tendance à augmenter en termes saisonniers ça peut avoir des impacts assez importants puisque la variabilité saisonnière de la charge atmosphérique est aussi très importante pour les dépôts.

Il faut donc progresser dans la compréhension des processus, améliorer la modélisation pour bien comprendre et bien prédire car les simulations sont utilisées pour calculer les impacts sur les écosystèmes (Anne Probst va en parler). Ce qui conduit à souligner la complémentarité des observatoires et des communautés scientifiques, et la nécessité de travailler en synergie avec la communauté des impacts et les calculs de charges critiques, etc.

Je voudrais remercier l'ensemble des collaborateurs : notamment Anne Probst (EcoLab) et Manuel Nicolas (ONF), mais aussi les personnes de Mines de Saint-Etienne qui ont contribué à ce travail, des personnes de Météo France, et de Atmo France. Et je rappelle que ces travaux ont été financés par le ministère de la Transition écologique et solidaire et l'Ademe au travers de PRIMEQUAL-Predit.

## Retour d'expérience RENECOFOR-CATAENAT.

L'historique long sur les retombées atmosphériques est très précieux, de même que la diversité des environnements et la couverture spatiale, grâce à quoi nous avons pu également travailler sur la spatialisation qui permet de calculer les charges critiques. Je note aussi, et j'insiste là-dessus, la traçabilité des informations : sur un réseau qui a plus de 20 ans, c'est extrêmement important, de même que la stabilité des protocoles. Les contrôles qualité, les contrôles au niveau analyse, c'est aussi un très bel atout, avec la consolidation des données : quand on travaille sur des séries de données, on est heureux qu'elles soient bien consolidées !

Et je salue l'expertise météorologique et scientifique de l'ensemble des personnes qui travaillent sur le réseau.

Je vous remercie.

Programme de Recherche Interorganisme pour une Meilleure Qualité de l'Air à l'Échelle Locale

**Primequal Predit**

Logos partenaires : IMT Lille Douai, EcoLab, Office National des Forêts, MINES Saint-Etienne, Météo France, Atmo France, ADEME, Ministère de la Transition Écologique et Solidaire, INERIS.

## Retour d'expérience RENECOFOR sous réseau CATAENAT

- Historique long sur les retombées atmosphériques
- Diversité des environnements et grande couverture spatiale
- Traçabilité des informations, stabilité des protocoles, QA/QC, consolidation données
- Expertise météorologique et scientifique

