

# Intérêt de l'implantation de minéraux-test dans les sols, pour caractériser le fonctionnement actuel des sols.

Jacques RANGER (\*)

Claude NYS (\*)

Michel ROBERT (\*\*)

Avec la collaboration technique de P. BONNAUD

L. et D. GELHAYE

## RÉSUMÉ

L'objectif de ce travail est la mise en évidence du fonctionnement actuel de quelques sols acides sur lesquels ont été introduites diverses essences forestières, ou ayant subi un apport artificiel de divers éléments fertilisants (N, P et Ca).

La technique expérimentale *in situ*, dite des minéraux-test a été utilisée : ces minéraux ont d'une part été insérés dans la matrice du sol et d'autre part placés à l'émissaire de plaques lysimétriques collectant les eaux gravitaires du sol, à un niveau diagnostique du fonctionnement du sol (horizon organo-minéral). Dans les Ardennes primaires l'observation a porté sur tout le profil pour deux essences feuillue et résineuse, en mesurant pendant toute la durée de l'expérience (5 ans), les flux d'eau et d'éléments ayant percolé sur le minéral des différents horizons.

L'évolution de la vermiculite permet d'identifier les mécanismes du fonctionnement du sol en référence aux travaux expérimentaux au laboratoire effectués sur le même minéral.

Les résultats montrent que le minéral-test rend compte du fonctionnement actuel du sol, avec des différences importantes entre les types de sol et les essences cultivées.

Les deux sous-systèmes constitués par la matrice et la porosité grossière montrent des fonctionnements certes non indépendants, mais caractérisés par des intensités différentes d'un même processus, pouvant être interprêtées par l'état d'équilibre des réactions entre les phases liquide et solide. La connaissance de ces deux compartiments et de leur participation au fonctionnement global du sol présente un grand intérêt tant sur le plan fondamental que sur celui de la nutrition des plantes.

**MOTS-CLES :** minéraux test - fonctionnement actuel des sols - lysimétrie - solution du sol - eau gravitaire.

## ASSESSMENT OF CURRENT SOIL FUNCTION BY THE IN SITU EXPERIMENTAL TECHNIQUE USING MINERAL BAGS.

*The aim of this work was to identify the current way of functioning of several acidic soils in which various tree species were introduced and-or nutrients added by fertilization or amendment (N, P, Ca).*

(\*) INRA CRF Nancy. Station de Recherches sur le Sol, la Microbiologie et la Nutrition des Arbres Forestiers. F 54280 CHAMPENOUX.

(\*\*) INRA CNRA Versailles. Laboratoire des Sols. F 78000 VERSAILLES.

*The in situ experimental method using a pure mineral was used for that purpose. Bags containing vermiculite were introduced into the soil matrix (for a 3 year contact) and at the outlet of a zero tension plate lysimeter (for a 5 year period). In three sites, the investigation was only done for the diagnostic organo-mineral horizon. In the Ardennes experiment, the whole soil profile was investigated with measurements on soil solid phase, on soil solutions during five years and on the vermiculite after three years in the soils and five years at the outlet of the lysimeters.*

*The results show a rapid change of the vermiculite introduced into the soil matrix. This change allows us to identify the current mechanisms of soil function in reference to the experimental work from ROBERT et al., (1979). In the acid soils studied, the general evolution of the vermiculite was characterized by a desaturation, a decrease in cation exchange capacity (CEC) well correlated with the fixation of hydroxy-Al polymers in the interlayer zone ; this evolution characterizes an acidification process more or less pronounced according to soils and vegetation.*

*The vermiculite introduced at the outlet of plate lysimeters shows the same general tendencies for the processes, but some important differences arose in the intensity of the phenomena, particularly for the Ca desaturation and the decrease in CEC ; variations can occur for a particular parameter according to soil type or vegetation.*

*These differences were clearly shown in the figure 2 for the Ardennes experiment.*

*These observations demonstrated the great differences between the environments constituted by the soil matrix and by the macroporosity where the gravitational waters circulate. In the soil matrix, the chemical reaction tended towards an equilibrium characterized by the chemical and physical properties of the soil. In the macroporosity of the soil, the chemical reactions characterized an open system, with a large dominance of non equilibrate reactions correlated to the proton flux (Figure 5).*

*A better understanding of soil components, and their role in the current soil function will be very useful for both basic knowledge and plant nutrition.*

**KEY-WORDS :** *test mineral - current soil processes - lysimetry - soil solution - gravitational water.*

## INTRODUCTION

La caractérisation du fonctionnement actuel des sols est d'importance capitale pour la prévision de leur évolution à court et moyen terme, tant sur le plan de la pédogénèse que sur celui de leur fertilité chimique.

L'identification de ces mécanismes actuels se fait habituellement à partir de l'étude des solutions. Les analyses de sol donnent des renseignements sur le résultat de l'évolution globale au cours de la pédogénèse, cumulant ainsi les phénomènes passés et actuels. La trace de ces derniers peut ne pas apparaître de façon très marquée, ni dans sa morphologie, ni dans sa caractérisation analytique.

L'étude des solutions du sol n'est pas très aisée, car la phase liquide du sol n'est pas une entité homogène (MERIAUX, 1979 ; BONNE *et al.*, 1982 ; Van GENUCHTEN *et al.*, 1990), pour au moins trois raisons, fortement inter-dépendantes :

- elle est composée au plan physique d'une part de l'eau libre, circulant sous la seule influence de la gravité et, d'autre part, de l'eau liée à la phase solide par une énergie de rétention dépendant, outre des propriétés physiques du sol, de son état de dessèchement,

- son temps moyen de résidence dans la porosité varie avec l'énergie de rétention de l'eau par la phase solide,

- sa composition chimique corrélée au temps moyen de résidence et aux trajets préférentiels, contrôle les équilibres chimiques et biochimiques des réactions entre les phases solides et liquides (ADAMS, 1974 ; BONNE *et al.*, 1982 ; HANTSCHER *et al.*, 1988 ; ZABOWSKI et UGOLINI, 1990).

Les solutions du sol sont habituellement étudiées par des dispositifs *in situ* (lysimètres avec ou sans tension), ou par des extractions au laboratoire, par centrifugation, pression, ou déplacement (ADAMS *et al.*, 1980). Dans chaque cas il est nécessaire de déterminer à quelle phase on s'adresse ; cela n'apparaît pourtant pas toujours très clairement dans l'interprétation des résultats. Les études doivent être menées en continu, avec des prélèvements effectués aussi fréquemment que possible, pendant plusieurs années de façon à intégrer la variabilité annuelle. Les contraintes matérielles sont rapidement limitantes.

Une alternative peut être obtenue par une approche expérimentale *in situ*, utilisant l'évolution de minéraux primaires qui permet d'identifier les mécanismes du fonctionnement actuel du sol, en référence à des travaux expérimentaux effectués au laboratoire sur le même minéral. Ces minéraux sont introduits dans les différents horizons de sols où ils rendent compte du fonctionnement saisonnier, annuel ou pluriannuel, pour l'ensemble du sol (RANGER *et al.*, 1990, 1991). Des minéraux très réactifs à la fois pour l'échange d'ions et l'évolution du réseau cristallin sont utilisés. C'est le cas des vermiculites dont l'évolution physico-chimique et minéralogique peut conduire à l'identification des mécanismes actuels de fonctionnement des sols en référence aux travaux expérimentaux de HUANG et KELLER (1970), GOH et HUANG (1984), RAZZAGHE-KARIMI (1976) et ROBERT *et al.*, (1979). Les différents environnements chimiques et biochimiques des sols conduisent à des évolutions caractéristiques de la vermiculite : en résumé le schéma de ROBERT *et al.* (1979) montre qu'en fonction du pH et du caractère acide ou acide et complexant des acides présents, le minéral va se détruire ( $\text{pH} < 2,5$ ), se transformer sous le seul effet du proton et/ou de l'anion complexant (entre  $\text{pH} 2,5$  et 5) ou n'évoluer que par simple échange d'ions ( $\text{pH} > 5$ ). L'examen de la garniture ionique et de la minéralogie permet d'identifier l'environnement dans lequel le minéral a évolué, et par conséquent les mécanismes impliqués.

Nous rapportons ici les résultats d'une expérience destinée à caractériser l'effet intégré sur plusieurs années des eaux gravitaires, sur un minéral placé à l'émissaire de plaques lysimétriques sans tension, dans divers types de sols et sous diverses essences forestières. La comparaison de l'évolution avec les mêmes minéraux insérés dans la matrice du sol permettra de décrire le rôle particulier de la phase liquide à drainage rapide dans le fonctionnement actuel du sol.

Tableau I : Expérimentations effectuées dans les différents sites d'étude.

*Experimental designs for the studied sites.*

Station	Niveau des plaques (p) Lit. 15 cm 30 cm	Analyses des sols	Minéraux-tests dans le sol Lit. 15 cm 30 cm	Analyse des eaux gravitaires
<b>Ardennes primaires</b> (forêt de Château-Regnault) feuillus mixtes, épicéa Sol brun acide sur schistes	* * *	*	* * *	*
épicéa fertilisé (dose kg/ha) N (100 kg ammonitrate <sup>(1)</sup> )	* *	*		*
P (1250 kg scories de dé- phosphoration <sup>(2)</sup> )	* *	*		*
Ca (2500 kg calcaire broyé) <sup>(2)</sup>	* *	*		*
PCa (mélange des produits de Ca et P) <sup>(2)</sup>	* *	*		*
<b>Morvan</b> (forêt de Montsauche) feuillus mixtes, épicéa, douglas, mélange feuillus épicéa Sol brun acide sur granite	*	*	*	
<b>Normandie</b> (forêt d'Eu) chêne, hêtre, épicéa, douglas, mélèze, mixte épicéa-hêtre Sol brun lessivé	*	*	*	
<b>Massif Central</b> (Peyrelevade) lande à callune, épicéa Sol podzolique humifère sur granite	*	*	*	

(1) : épandage au printemps 1981 ; (2) épandage à l'automne 1980.

## I - MATÉRIEL et MÉTHODES

**Le minéral-test** : cinq grammes de vermiculite ont été placés à l'émissaire de plaques lysimétriques sans tension, en polyéthylène de 30 x 40 cm. A cet effet, 2 g de quartz (minéral considéré le moins réactif en conditions acides) sont mélangés au minéral-test pour favoriser le drainage. Les minéraux ont été placés à un niveau diagnostic du fonctionnement du sol, c'est-à-dire vers 15 cm de profondeur. Nous disposons dans tous les cas (sauf dans l'expérience de fertilisation des Ardennes) des résultats obtenus

avec le même minéral-test, inclus dans les différents horizons caractéristiques du sol, et laissé en contact pendant trois ans (RANGER *et al.*, 1990).

Le minéral-test est une vermiculite "commerciale" centimétrique, amenée à une granulométrie comprise entre 100 et 200  $\mu\text{m}$ , par broyages et tamisage modérés. Cette vermiculite a été saturée par Ca. Elle présente en diffraction des Rayons X (CGR  $\theta$  60), les caractères minéralogiques d'un minéral interstratifié où sont juxtaposés des feuillets de vermiculite, d'interstratifié mica-vermiculite régulier et de mica. Sa faible CEC (50 meq/100 g) et sa teneur en  $\text{K}_2\text{O}$  total indiquent une répartition approximative de 50 % des deux structures minéralogiques ; le taux de MgO rend compte du caractère trioctaédrique du minéral. Le minéral est placé dans des sachets imputrescibles de polyamide (NYTREL TI), de 20  $\mu\text{m}$  de porosité, soudés thermiquement.

Compte tenu du rapport entre les aires de la plaque lysimétrique (30 x 40 cm) et du sachet de minéral inclus dans les sols (5 x 10 cm), les minéraux placés à l'émissaire de la plaque devraient être percolés par 25 fois plus d'eau que ceux du sol ; (ce calcul qui ne tient compte que du rapport des aires est inexact, sans que l'on puisse facilement l'améliorer).

**Les sites expérimentaux** : le dispositif expérimental a été mis en place dans divers sites dont les caractéristiques générales ainsi que celles des travaux réalisés figurent au tableau I.

Dans les Ardennes, nous avons utilisé le dispositif de NYS (1987), ce qui a permis d'installer des minéraux à l'émissaire de plaques lysimétriques sans tension disposées sous les litières, à 15 et 30 cm de profondeur dans deux placettes. Dans la première, il s'agit de comparer l'effet des résineux introduits dans un écosystème feuillu ; dans la seconde, l'objectif est de mettre en évidence le rôle de la fertilisation d'un peuplement adulte d'épicéa commun. Dans ces sites, les eaux de drainage ont été recueillies quantitativement et analysées de façon à évaluer les flux d'eau et de substances dissoutes qui ont percolé sur le minéral. Les relevés ont été effectués toutes les six semaines pendant cinq ans, à partir de novembre 1980. Les flux d'éléments sont obtenus en multipliant la concentration en éléments par le flux d'eau pour chaque relevé ; un regroupement par saison est ensuite effectué.

Les caractéristiques des sols de ces expériences sont données dans le tableau II. On note qu'il s'agit uniquement de sols acides et bien drainés.

**Les méthodes analytiques utilisées** sont les suivantes :

- Pour le minéral-test, qu'il soit issu du sol ou de l'émissaire de plaque lysimétrique, les techniques ont été définies par RANGER et ROBERT (1985), HATTON *et al.* (1987), RANGER *et al.* (1990). Après séparation du quartz par tri magnétique (appareil de FRANTZ), la vermiculite est traitée pour la détermination de son  $\text{pH}_{\text{eau}}$ , de sa CEC et de sa garniture cationique (méthode de ROULLER *et al.*, 1980), comprenant la détermination des cations alcalins et alcalino-terreux et de son acidité d'échange par titration, de sa teneur en éléments libres (extraction au Citrate-Bicarbonate-Dithionite (dit réactif CBD) de MEHRA et JACKSON, 1960 et au Tricitrate de Na de TAMURA, 1957).

- Les eaux lysimétriques sont analysées après filtration (0,45  $\mu\text{m}$ ), pour les cations majeurs (Ca, K, Mg, Na, Al, Fe) par spectrophotométrie d'absorption atomique

(appareil IL),  $\text{NH}_4^+$  par colorimétrie et les anions  $\text{NO}_3^-$  par colorimétrie (Auto-analyseur Technicon) et  $\text{SO}_4^{2-}$  par turbidimétrie.

- Les sols ont été analysés pour le  $\text{pH}_{\text{eau}}$ , le carbone et l'azote organiques, la garniture ionique incluant l'acidité d'échange (méthode de ROUILLER *et al.*, 1980), les éléments libres (méthode MEHRA et JACKSON, 1960).

Tableau II : Quelques caractéristiques des sites et des sols des dispositifs expérimentaux.

*The major characteristics of the experimental sites.*

Localisation altitude	Type de sol (CPCS, 1967)	Roche mère	Pluviomètre mm	végétation	humus	A <sub>1</sub>			B	
						C %	pH	Arg. %	pH	Arg. %
Ardennes (390 m)	sol brun acide	limon	1100	chêne +hêtre	mull acide	8,3	4,2	12,0	4,4	13,1
				épicéa	mull-moder	12,0	4,1	10,4	4,3	13,1
				épicéa fert N	mull-moder			3,6		4,5
				épicéa fert P	mull-moder			3,8		4,5
				épicéa fert Ca	mull acide			4,5		4,5
				épicéa fert PCa	mull-moder			3,8		4,5
Normandie (200 m)	sol brun lessivé	limon éolien	780	chêne	mull acide	1,9	4,1	18,0	4,3	17,0
				hêtre	mull-moder	2,4	3,8	18,5	4,4	18,0
				épicéa	moder	5,3	3,7	18,0	4,3	16,0
				douglas	moder	3,2	4,1	16,5	4,4	15,0
				mélèze	moder	3,8	3,9	18,5	4,4	19,0
				épicéa + hêtre	moder mull	1,6	3,9	18,0	4,4	17,0
douglas + hêtre	moder mull	1,8	3,9	18,0	4,4	17,0				
Morvan (600 m)	sol brun acide	arène granit. cryoturbée	1200	hêtre + chêne	mull acide	9,8	4,0		4,3	
				épicéa	moder mull	11,0	4,0		4,2	
				douglas	moder mull	9,6	4,5	17,0	4,5	13,0
				hêtre + épicéa	moder mull	8,1	4,0		4,4	
Massif Central (950 m)	sol podzoli.hum.	arène granitique	1400	lande à callune	moder	7,3	4,1	20,0	4,3	13,0
				épicéa	mor	13,6	3,8	20,0	4,3	13,0

## II - RESULTATS

### 1. La caractérisation des eaux de drainage

#### a) Les volumes drainés (tableau III)

Ces résultats ne concernent que les expériences des Ardennes. On constate que conformément au climat général, la percolation est essentiellement automnale et hivernale. La distribution des eaux gravitaires dans le profil montre en général une décroissance vers le bas du profil explicable par les termes usuels du bilan hydrique (prélèvement biologique, évaporation, mise en réserve).

La variabilité observée dans l'expérience où les feuillus sont comparés à des épicéas est remarquablement faible, puisque l'on constate au maximum 10% de différence entre les niveaux comparables de ces deux traitements, pour les moyennes annuelles ou saisonnières. Il en est tout autrement dans les quatre traitements de fertilisation de l'épicéa, où l'on observe des valeurs moyennes très différentes des traitements précé-

dents et une dispersion importante des valeurs des flux hydriques. On ne voit pas d'explication à ce phénomène puisque l'expérience a été installée strictement dans les mêmes conditions que la précédente. Il est vraisemblable que la faible dispersion observée dans le premier cas est en partie fortuite. Sans connaître a priori la relation entre le flux d'eau et l'évolution du minéral, il est évident que les résultats les plus intéressants concerneront la comparaison feuillus-résineux, puisque dans le cadre précis de ce travail, il n'est pas possible de recourir à un modèle hydrologique ; seule la quantité réelle percolée doit être prise en compte. La difficulté sera plus importante pour les sites où il nous était matériellement impossible d'accéder au volume drainé, et où l'on ne pourra vérifier qu'à partir de l'évolution du minéral, si le dispositif a fonctionné.

Tableau III : Volumes drainés par saison dans les différents traitements de l'expérience des Ardennes (résultats en litres pour les 5 ans de l'expérience).

*Drained volume per season in the different treatments of the Ardennes experiment (data in liters for the 5 years of the experiment).*

Litière	Feuillus	Épicéa				
Hiver	107,8	79,6				
Printemps	79,7	75,4				
Été	45,4	65,9				
Automne	139,4	143,7				
<b>Total annuel</b>	<b>372,3</b>	<b>364,6</b>				
P 15 cm	Feuillus	Épicéa	Épicéa fert. N	Épicéa fert P.	Épicéa fert. Ca	Épicéa fert PCa
Hiver	70,6	48,3	16,0	11,3	8,4	28,4
Printemps	31,5	36,5	12,9	7,6	5,0	12,4
Été	31,2	45,7	9,4	5,5	0,8	6,3
Automne	110,6	113,7	21,5	26,0	4,1	27,8
<b>Total annuel</b>	<b>243,9</b>	<b>244,2</b>	<b>59,8</b>	<b>50,4</b>	<b>18,4</b>	<b>74,9</b>
P 30 cm	Feuillus	Épicéa	Épicéa fert. N	Épicéa fert P.	Épicéa fert. Ca	Épicéa fert PCa
Hiver	9,4	10,3	20,1	2,9	24,3	62,3
Printemps	8,2	4,1	5,7	0,6	27,8	23,7
Été	4,4	4,0	1,8	0,6	33,3	26,0
Automne	20,3	20,7	19,8	5,7	47,2	122,6
<b>Total annuel</b>	<b>42,4</b>	<b>39,0</b>	<b>47,3</b>	<b>9,7</b>	<b>132,6</b>	<b>234,6</b>

*b) la composition chimique et les flux des eaux gravitaires (tableau IV).*

Dans la comparaison feuillus-résineux, la composition chimique moyenne annuelle observée des eaux gravitaires montre les tendances suivantes :

- 1) il s'agit d'eaux acides relativement chargées en tous éléments, C, cations alcalins et alcalino-terreux, cations acides, mais également nitrate et ammonium ;
- 2) la variation dans le sol est caractéristique des sols bruns, avec une libération importante d'éléments biogènes par la minéralisation des litières (K, Ca, Mg,

Mn, C et N) ; la concentration de ces éléments a tendance à diminuer dès l'horizon organo-minéral, puis à se maintenir constante. L'aluminium provenant de l'action des protons sur la phase minérale augmente fortement dans les horizons organo-minéraux. Le chimisme de ces solutions est dominé par  $\text{NO}_3^-$  associé à divers cations, Ca, Mg et Al en particulier ;

- 3) les différences entre les feuillus et les épicéas sont caractérisées par une augmentation quasi générale des concentrations des éléments, y compris du carbone sous les épicéas. Cela s'explique d'une part par une transformation de la matière organique sous les résineux, en raison des modifications des restitutions par les litières, des conditions microclimatiques induites par le caractère sempervirent des conifères et par les changements biologiques qui y sont liés et d'autre part, par l'aptitude différente des deux types d'essence pour l'interception des poussières et polluants atmosphériques, qui participent directement (apport de protons), ou indirectement (apport d'ammonium générateur de protons lors de la nitrification) à l'acidification du sol.

Tableau IV : Concentrations moyennes pondérées des eaux gravitaires dans l'expérience des Ardennes (données en  $\mu\text{moles/l}$ ).

*Mean weighted concentrations of the gravitational water in the Ardennes experiment (data in  $\mu\text{moles/l}$ ).*

	horizon	pH	Carbone	N-NO3	N-NH4	K	Ca	Mg	Na	Mn	Al	Fe
Ardennes FEUILLUS	Litière	4,2	2397,5	504,3	334,3	1,6	101,8	43,6	56,1	38,0	21,1	5,4
	p 15 cm	4,3	1163,3	170,7	105,0	0,5	55,8	22,6	70,5	17,1	81,5	2,5
	p 30 cm	4,5	949,2	142,9	70,0	0,4	58,5	23,5	69,6	15,8	63,4	1,3
Ardennes ÉPICÉA	Litière	3,9	2670,8	581,4	70,7	1,4	132,3	42,0	83,9	35,1	33,4	5,7
	p 15 cm	3,9	2705,0	546,4	580,7	0,8	82,5	37,0	87,0	29,9	149,0	8,6
	p 30 cm	4,3	932,5	600,0	432,9	0,6	102,0	35,8	106,6	33,7	177,9	1,3
Ardennes ÉPICÉA fert. N	p 15 cm	4,3	439,2	261,4	117,9	0,5	59,5	27,2	83,1	9,6	59,7	1,6
	p 30 cm	3,9	196,7	327,1	73,6	0,3	50,5	30,5	82,2	11,3	164,2	1,1
Ardennes ÉPICÉA fert. P	p 15 cm	4,3	340,0	174,3	71,4	0,5	76,3	31,3	89,6	10,4	44,8	1,4
	p 30 cm	4,4	582,5	236,4	100,0	0,9	110,5	43,6	119,2	18,4	27,1	1,8
Ardennes ÉPICÉA fert. Ca	p 15 cm	4,6	535,8	163,6	46,4	0,5	68,3	23,5	62,2	7,1	35,2	1,1
	p 30 cm	4,4	294,2	208,6	41,4	0,4	57,3	18,1	52,6	9,6	40,0	1,3
Ardennes ÉPICÉA fert. PCa	p 15 cm	4,3	411,7	202,9	63,6	0,4	78,5	28,4	98,7	6,4	48,6	1,3
	p 30 cm	4,3	332,5	205,0	50,7	0,3	94,0	28,8	84,8	7,6	58,2	1,3

Les variations saisonnières sont importantes, elles fluctuent avec les éléments et les horizons. Ca, Mg, K et  $\text{NH}_4^+$  et  $\text{NO}_3^-$  suivent l'activité biologique. La variabilité inter-annuelle est importante et peut atteindre un facteur trois (NYS, 1987).

- L'expérience de fertilisation, située à proximité de la précédente, avait été conçue de façon à ce que le peuplement d'épicéa du dispositif de comparaison feuillus-rési-



neux, puisse servir de témoin. Pour des raisons difficiles à mettre en évidence (roche-mère et/ou apports) les résultats montrent qu'il n'en est rien. On ne peut donc pas regrouper les résultats de ces deux expériences.

La comparaison des différents traitements entre eux, sans référence à un témoin, montre que les eaux de drainage peuvent être directement influencées par l'élément apporté (Ca augmente en surface dans les traitements apportant cet élément,  $\text{NH}_4^+$  et  $\text{NO}_3^-$  augmentent dans le traitement N), ou indirectement (K et Mg augmentent avec l'apport de scories de déphosphoration, Al diminue avec le chaulage et est le plus élevé dans le traitement N à -30 cm).

Les variations annuelles sont importantes et ont une double origine qu'il n'est pas toujours aisé de séparer (données non présentées). Ces variations inter-annuelles peuvent avoir une origine climatique (effet de la température et de la pluviométrie) ou sont la répercussion des apports artificiels (amendement/fertilisation). L'effet de ces différents traitements dépend de la solubilité du produit apporté, puisqu'il est toujours épanché en surface. Ces apports se répercutent soit directement et immédiatement sur la qualité de l'eau (l'augmentation des teneurs en nitrates et en ammonium dans le traitement N), soit directement mais avec effet différé (c'est le cas de Ca dans les traitements chaulés, en fonction de la solubilité du produit), soit indirectement mais immédiatement via une baisse ou une hausse brutale de pH (baisse de Al dans le traitement chaulé), soit se répercutent progressivement (cas de Al à -30 cm dans le traitement Azote).

Tableau V : Flux totaux d'éléments drainés dans l'expérience des Ardennes (données en mg pour les 5 années de l'expérience).

*Cumulated fluxes of elements for the gravitational water in the Ardennes experiment (data in mg for the 5 years of the experiment).*

	horizon	C	N-NO3	N-NH4	H	K	Ca	Mg	Na	Mn	Al	Fe	S-SO4
FEUILLUS	Litière	10713	2629	1741	24	2369	1514	395	479	777	212	113	
	p 15 cm	3406	583	359	13	446	543	135	395	229	538	34	
	p 30 cm	483	85	42	2	69	99	24	68	37	72	3	
ÉPICÉA	Litière	11686	2969	361	48	1953	1929	370	703	703	328	118	
	p 15 cm	7927	1868	1984	30	780	806	221	489	401	982	116	
	p 30 cm	437	327	236	2	87	159	34	95	72	187	3	
ÉPICÉA fert. N	p 15 cm	316	219	99	3	108	143	40	115	32	96	5	252
	p 30 cm	112	217	49	7	48	96	35	90	29	210	3	238
ÉPICÉA fert. P	p 15 cm	206	123	51	2	95	154	39	104	29	61	4	243
	p 30 cm	68	32	14	0	35	43	10	27	10	7	1	82
ÉPICÉA fert. Ca	p 15 cm	118	42	12	1	37	50	10	26	7	17	1	41
	p 30 cm	468	388	78	6	222	304	58	161	71	143	9	501
ÉPICÉA fert. PCa	p 15 cm	370	213	67	4	107	235	52	170	26	98	5	254
	p 30 cm	937	673	167	12	244	881	164	459	99	369	17	1047

Parallèlement aux observations de la première expérience, le chimisme des solutions est dominé par le nitrate associé au cation le plus mobile du système, il s'agit principalement de Al dans le traitement Azote, et de Ca dans les traitements apportant cet élément (chaulage, scories de déphosphoration). Les flux d'éléments mesurés pendant la durée de l'expérience figurent au tableau V.

La matrice de corrélation calculée à partir des variables quantitatives eau-éléments montre que l'on a globalement affaire à cette échelle à une réaction de "mass-flow". La comparaison des écosystèmes feuillus et résineux montre que pour chaque niveau homologue, les flux sont plus importants sous les épicéas que sous les feuillus ; l'exemple du nitrate et de l'aluminium est donné dans la figure 1.

La quantité d'eau qui a percolé sur le minéral représente un facteur intensité pour le degré d'avancement des réactions d'échange, qui ne sont cependant pas les seules à intervenir dans son évolution.

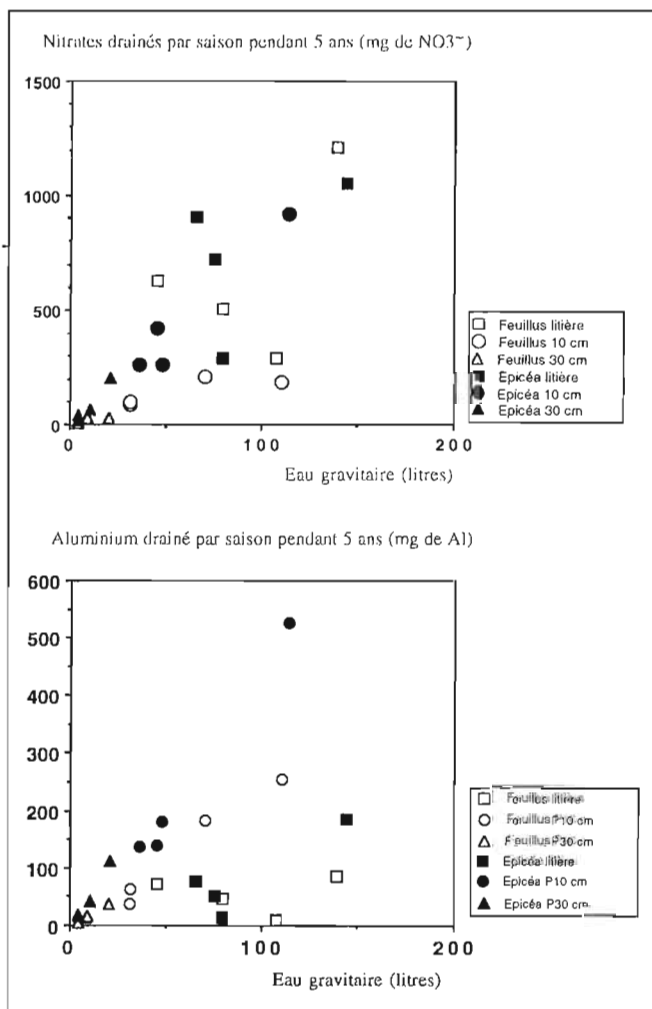


Figure 1 :

Relation entre le flux hydrique et les flux de nitrates ou d'aluminium dans les sols des peuplements feuillus et résineux de l'expérience des Ardennes.

*Relationship between the water flux and the nitrate or aluminum fluxes into the soils of the broadleaved and the coniferous stands in the Ardennes experiment.*

## 2. Evolution géochimique et minéralogique des vermiculites placées à l'émissaire des plaques lysimétriques

Le traitement de données sur l'ensemble des sites montre que l'évolution de la CEC du minéral a été très importante (tableau VI), puisque après les 5 années de contact avec les eaux gravitaires, sa valeur a souvent diminué de plus de 50 % avec des minima jusqu'à 20 % de cette valeur initiale.

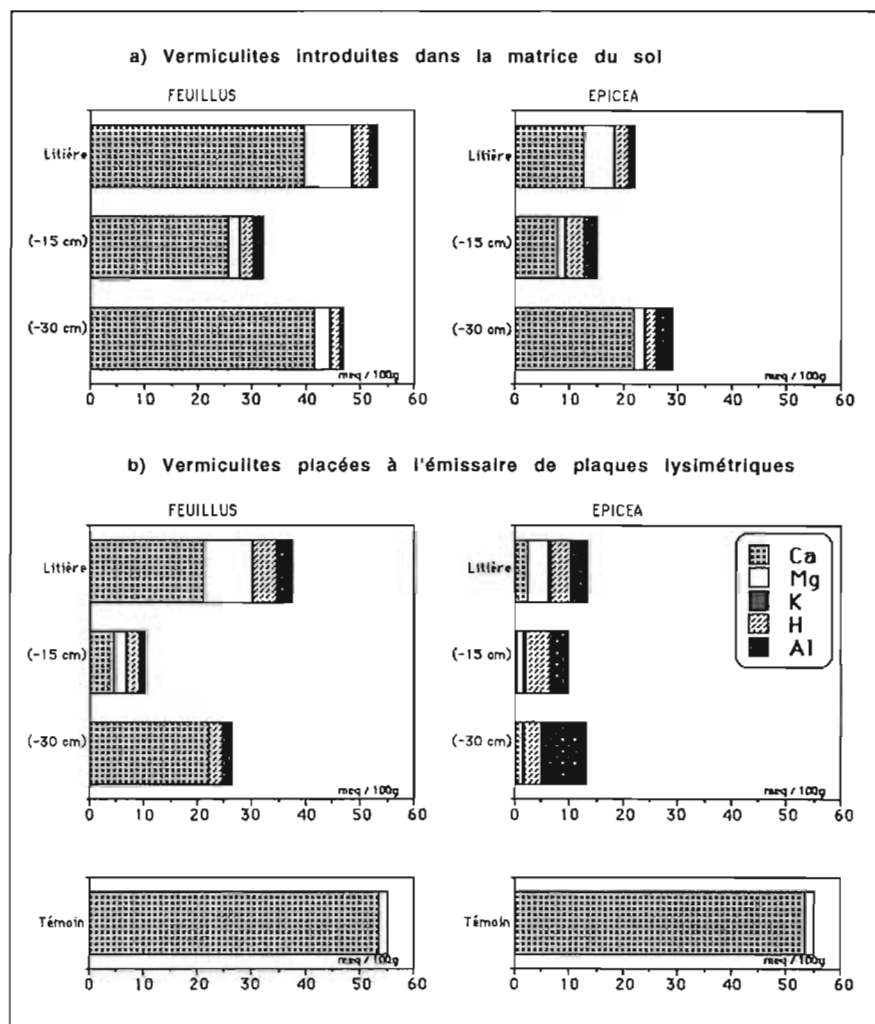


Figure 2 : Comparaison de la CEC et de la garniture ionique entre les feuillus et les épicéas. a) pour la vermiculite introduite dans les sols des Ardennes et b) pour la vermiculite placée à l'émissaire des plaques lysimétriques.

*Effect of broadleaved and coniferous on vermiculite CEC and exchangeable elements a) for the vermiculite introduced into the soil matrix in the Ardennes and b) for the same vermiculite placed into the outlet of plate lysimeters.*

Dans cette série de sols acides, l'évolution de la garniture ionique de la vermiculite se caractérise par une désaturation très importante, en particulier de Ca saturant initialement le minéral qui peut s'abaisser jusqu'à 0,1 méq /100g. Corrélativement, Al échangeable augmente. Mg qui ne représentait que 0,75 méq /100g du minéral initial, augmente très nettement dans 2 cas, sous les litières et dans le sol de la série podzolique.

Les liaisons statistiques significatives, entre les différents éléments et la CEC attestent de ces évolutions. Le  $\text{pH}_{\text{eau}}$  du minéral se révèle être un excellent paramètre intégrateur de cette évolution, par exemple :

$$\text{pH-Ca}_{\text{éch}} : r = 0,940 ; \text{pH-Al}_{\text{éch}} : r = - 0,709 \text{ (26 échantillons).}$$

Dans le détail, malgré le faible nombre d'échantillons, les évolutions varient avec les types de sols et les essences. La comparaison des peuplements feuillus et résineux dans les Ardennes est intéressante à cet égard (figure 2) : dans ce sol brun acide l'acidification est importante, mais elle est beaucoup plus marquée sous les épicéas où l'on observe une désaturation en Ca, une baisse de la CEC et une fixation d'Al<sub>éch</sub> plus nettes que sous les feuillus :

L'effet du type de sol peut être appréhendé à partir de l'effet moyen des essences dans les différents sites : les sols bruns sont toujours associés à une forte baisse de CEC du minéral, avec une forte désaturation et une fixation importante d'Al échangeable, le sol podzolique est associé à un maintien relatif des cations "basiques" (Ca et Mg).

L'effet des différents traitements de fertilisation doit être apprécié avec les réserves émises dans le paragraphe traitant des volumes drainés ; il ne s'agit que d'un effet relatif compte tenu qu'aucun véritable témoin n'existe. Le traitement Azote est le plus acidifiant et conduit à une désaturation en Ca, mais à une augmentation limitée de l'acidité d'échange.

L'évolution minéralogique de la vermiculite étudiée par la diffraction des rayons X, se traduit par le comportement des pics à 14 Å de la vermiculite et à 12 Å de l'interstratifié qui migrent vers 10,5 Å après saturation au K et vers 10,1 Å après chauffage à 220°C.

Ce comportement se retrouve pour les échantillons issus des plaques sous litière, pour l'échantillon superficiel issu du traitement Ca, et pour les échantillons non évolués pour lesquels la stabilité du pH du minéral indique que la percolation n'a pas eu lieu (en particulier dans les situations où le volume drainé n'a pas été mesuré).

Pour les échantillons qui ont été percolés par les solutions d'horizons organo-minéraux et minéraux, la fermeture à K est pratiquement inexistante. Différents prétraitements chimiques sont utilisés pour obtenir le retour de la vermiculite à son comportement initial. Le test de Mehra et Jackson (1960) est en moyenne peu efficace pour les échantillons issus des sols bruns (pics à 11,5 et 13,3 Å) ; il l'est plus pour ceux issus du sol podzolique (pics à 11 et épaulement à 13 Å). Le traitement de TAMURA (1957) améliore la fermeture dans tous les cas, sans que dans les sols bruns on n'obtienne une fermeture totale. Il est classique en sol acide que l'Al interfoliaire s'hydroxyle et se polymérise en bloquant les sites d'échange (JACKSON, 1962 ; RICH, 1968). On constate effectivement une corrélation négative significative (à 1 pour 1000) entre CEC

et  $Al_{CBD}$  ( $r=-0,845$ ), ainsi qu'entre la CEC et  $Al_{Tamura}$  ( $r = -0,899$ ) ce qui montre une grande stabilité de cet intergrade Al.

### 3. Evolution géochimique et minéralogique des vermiculites introduites dans les sols

Les résultats de cette expérience ont été publiés récemment (RANGER *et al.*, 1990). Nous ne rappelons que les résultats essentiels des évolutions géochimique (tableau VI) et minéralogique.

- La CEC de la vermiculite a fortement évolué après 3 ans de contact dans les sols, avec une diminution nettement plus forte dans la série des sols bruns par rapport à la série des sols podzolisés. Les résineux, et en particulier l'épicéa commun, concourent à une baisse plus forte de la CEC par rapport aux feuillus situés dans les mêmes conditions.

- La garniture ionique de l'espace interfoliaire a été largement modifiée, par désaturation en milieu acide (diminution du  $Ca_{éch}$ ), conduisant corrélativement à une apparition de  $Al_{éch}$ . Le pH du minéral rend parfaitement compte de cette évolution, comme le montrent les relations statistiques entre cette mesure et la garniture ionique. En particulier la relation  $pH_{eau} / Al_{éch}$  montre que, tant que le pH d'équilibre de la vermiculite n'atteint pas la valeur de 5,5, aucune fixation d'Al n'a lieu. Mg se maintient relativement en plus grande quantité dans les échantillons issus des litières et des horizons de sols où la podzolisation est active.

L'effet du type de sol est important, mais en interaction avec celui de la végétation, comme le montre la comparaison des résultats obtenus avec différentes essences situées sur le même type de sol. La désaturation la plus marquée a été obtenue dans les sols bruns, alors que dans la série podzolique c'est l'aptitude à la complexation chimique qui détermine la stabilité relative des éléments sur le complexe absorbant ; Ca, mais surtout Mg se maintiennent relativement mieux que Al en milieu complexant.

L'évolution minéralogique et l'extraction des éléments libres apportent une information complémentaire. On constate une corrélation négative significative entre la valeur de la CEC et  $Al_{Tamura}$  ( $r=-0,953$ ) (figure3). Al s'hydroxyle et se polymérise dans l'espace interfoliaire de la vermiculite, réduisant ainsi la possibilité d'échange minéral/solutions. La transformation minéralogique de la vermiculite rend parfaitement compte de cette dynamique et de la modification du comportement de Al.

La spéciation chimique des éléments fixés sur le minéral montre le rôle important des différentes essences dans le fonctionnement géochimique des sols : le cas le plus spectaculaire est celui de l'épicéa commun vis-à-vis de Al. Sous cette essence, l'amplification de l'acidification par rapport aux feuillus situés dans les mêmes conditions se traduit par une augmentation de la fixation de Al sur le minéral ainsi que de la stabilité de l'intergrade Al.

## III - DISCUSSION

Elle concernera successivement l'étude des modifications de la vermiculite en fonction du flux gravitaire, les différences d'évolution entre la vermiculite introduite soit dans la matrice du sol soit dans le flux gravitaire et enfin, les relations entre l'évolution de la vermiculite et les caractéristiques du sol.

		VERMICULITE des plaques lysimétriques						VERMICULITE placée dans les sols					
		pH	Ca	Mg	Al	CEC	Al Tamura %	pH	Ca	Mg	Al	CEC	Al Tamura %
			meq/100g					meq/100g					
Ardennes feuillus	Litière	4,7	12,7	5,3	3,4	28,2	0,074	4,6	39,6	9,0	1,6	56,5	0,028
	p 15 cm	4,7	8,0	1,3	2,5	16,8	0,073	4,9	25,6	2,0	1,9	33,7	0,077
	p 30 cm	5,1	21,8	2,0	1,3	29,2	0,044	5,2	41,8	2,7	0,7	48,5	0,032
Ardennes épicéa	Litière	4,3	2,5	3,8	8,5	21,0	0,095	4,6	21,0	9,1	3,1	39,7	0,079
	p 15 cm	4	0,5	1,1	3,6	12,4	0,105	4,1	4,5	2,3	1,1	8,0	0,177
	p 30 cm	4,4	1,3	0,4	3,2	9,0	0,078	5,1	22,1	0,0	1,8	29,3	0,074
Normandie chêne	p 15 cm	4,1	5,5	1,5	3,7	16,8	0,094	4,9	26,5	3,3	2,4	38,2	0,091
Normandie hêtre	p 15 cm	7,5	49	1,7	0	51,8	0,009	4,8	26,6	1,9	2,3	35,9	0,063
Normandie hêtre + épicéa	p 15 cm	4,2	0,9	0,6	3,8	10,8	0,075	4,5	0,8	0,8	3,9	11,8	0,142
Normandie épicéa	p 15 cm	4,1	2,3	1,3	4,5	15,2	0,089	4,7	4,1	1,0	4,9	17,5	0,136
Normandie douglas	p 15 cm	4,3	1,5	0,9	4,0	12,4	0,069	4,8	4,5	0,9	3,9	16,5	0,126
Normandie mélèze	p 15 cm	7,7	53,2	1,5	0,0	55,3	0,007	4,6	0,8	0,6	4,5	11,8	0,132
Massif Central épicéa	p 15 cm	4,2	8,6	6,7	4,9	24,6	0,073	4,5	1,8	1,1	5,2	14,5	0,142
Massif Central lande	p 15 cm	4,3	9,4	3,8	4,5	22,3	0,072	4,7	17,6	2,5	3,9	28,5	0,135
Morvan feuillus	p 15 cm	4,2	1,7	1,1	4,4	12,0	0,085	4,6	13,2	2,4	2,7	22,5	0,115
Morvan feuillus + épicéa	p 15 cm	4,3	6,4	1,9	3,1	17,0	0,076	4,7	3,2	0,8	3,1	10,3	0,148
Morvan épicéa	p 15 cm	4	0,1	0,4	3,8	9,2	0,097	5,2	30,6	7,3	3,4	48,2	0,036
Morvan douglas	p 15 cm	4,4	21,3	2,4	2,3	29,8	0,049	4,9	11,0	1,2	2,6	20,0	0,116
Témoin Vermiculite		7,8	54,6	0,7	0,0	55,8	0,000	7,8	54,6	0,7	0,0	55,8	0,000

Tableau VI : Evolution des vermiculites placées dans les sols ou dans le flux gravitaire des différents sols.

*Chemical changes of the vermiculite placed at the outlet of the plate-lysimeters or introduced into the soil matrix.*

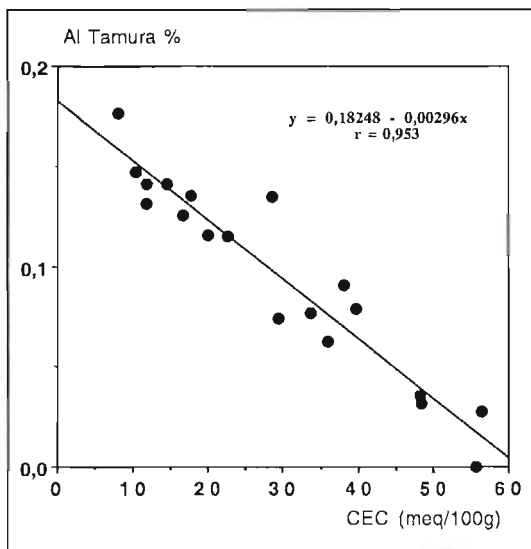


Figure 3 :

Relation entre l'évolution de la CEC et la fixation d'Al hydroxylé pour la vermiculite introduite dans les sols pour l'ensemble des sites (liste du tableau I).

*Relationship between the CEC and the hydroxy-Al fixed on the vermiculite introduced into the soils of the different sites (see table I).*

### 1. Relations entre les flux d'eau et d'éléments et l'évolution de la vermiculite placée à l'émissaire des plaques lysimétriques

Compte tenu du nombre réduit d'échantillons concernés (14), ces relations sont abordées par un traitement graphique et statistique simple, telles les corrélations globales entre groupes de variables (tableau VII).

Les corrélations entre variables qualitatives traduisent très clairement le mécanisme de désaturation et d'aluminisation du complexe adsorbant en milieu acide : liaison positive entre pH et Ca<sub>éch</sub> ou négative entre pH et Al, quelque soit sa forme chimique.

Tableau VII : Corrélations entre les caractéristiques de la vermiculite placée à l'émissaire des plaques lysimétriques et celles des solutions gravitaires.

*Correlations between the characteristics of the vermiculite placed at the outlet of the lysimeters and the chemistry of the gravitational water.*

	échantillons	Ca éch	Al éch	acidité éch	Al CBD	Si CBD	Al Tamura	Si Tamura
pH de la solution	tous	0,93		- 0,72	- 0,81		- 0,89	
	feuillus/épicéas	0,93		- 0,78	- 0,83		- 0,97	
	fertilisation	0,91		- 0,90	- 0,82		- 0,89	
Flux d'eau	tous	- 0,50	0,72	0,74	0,71	0,77	0,69	0,75
	feuillus/épicéas fertilisation							
Flux de protons	tous	- 0,47	0,87	0,88	0,75	0,94	0,67	0,85
	feuillus/épicéas		0,87	0,91	0,88		0,74	
	fertilisation		0,64	0,63	0,92		0,88	

tous ddl 13, r5 % = 0,51

Feuillus/épicéas ddl 5, r5 % = 0,75

Fertilisation ddl 7, r5 % = 0,66

Les flux d'eau et d'éléments déterminent en grande partie l'évolution du minéral. On note la relation négative entre le flux d'eau et le  $Ca_{\text{éché}}$  de la vermiculite, et sa relation positive avec l'acidité d'échange que l'on observe également avec les éléments libres,  $Fe_{\text{CBD}}$ ,  $Al_{\text{CBD}}$ ,  $Si_{\text{CBD}}$ ,  $Fe_{\text{Tamura}}$ ,  $Al_{\text{Tamura}}$ ,  $Si_{\text{Tamura}}$ . Ces relations sont encore plus nettes quand il s'agit des flux d'éléments : par exemple entre le flux de protons et l'acidité d'échange (figure 4), et en particulier pour sa composante  $Al_{\text{éché}}$ . La corrélation entre flux de nitrates et  $Al_{\text{éché}}$  est significative ( $r = 0,818$ ), c'est également le cas avec l'Al libre.

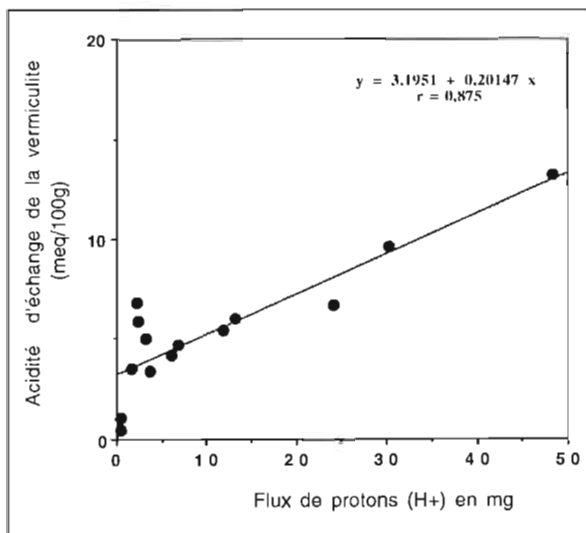


Figure 4 :

Relation entre le flux de protons et l'acidité d'échange de la vermiculite placée à l'émissaire des plaques lysimétriques dans les Ardennes. Temps de mesure du flux : 5 ans.

*Relationship between the proton flux and the exchangeable acidity of the vermiculite placed into the outlet of the plate lysimeters in the Ardennes*

La corrélation entre le flux de protons et la silice libre ( $Si_{\text{CBD}}$  et  $Si_{\text{Tamura}}$ ) est un indice indirect de l'évolution de la vermiculite en milieu acide, puisque la valeur de la silice libre peut être considérée comme un indice de déstabilisation du minéral.

Les corrélations entre les éléments comparables des eaux gravitaires et de la garniture ionique du minéral-test sont positives pour K, Mg, Mn, H, Al mais négatives pour Ca. On constate que  $Al_{\text{éché}}$  du minéral est mieux corrélé avec le flux de protons qu'avec le flux d'Al, ce qui semble indiquer que cet Al est essentiellement d'origine interne (endoaluminisation de HETIER et TARDY, 1969). Le calcium résiduel du minéral ne résulterait pas d'une fixation à partir des solutions, mais de la désaturation en milieu acide, ce qui ne saurait être le cas des éléments non présents initialement sur le complexe adsorbant.

La comparaison des écosystèmes feuillus et résineux montre les mêmes tendances quant aux relations minéral-solutions avec des corrélations significatives malgré le faible nombre d'échantillons (6). L'effet de l'essence est très net, puisque pour un drainage équivalent en volume, on observe une évolution beaucoup plus importante de la vermiculite sous le peuplement d'épicéa (cf figure 2), en liaison avec des solutions plus acides sous cette essence. Le mécanisme d'acidification lié à la percolation des eaux gravitaires est très nettement mis en évidence dans cet exemple, ainsi que son amplification par l'introduction de l'épicéa dans l'écosystème feuillus.



Dans le sous échantillon des traitements de fertilisation, on retrouve à nouveau les mêmes tendances. Les réactions d'acidification sont les plus intenses dans le traitement Azote, où elles se traduisent essentiellement par une désaturation. Dans les autres traitements apportant Ca sous forme peu soluble, la resaturation du minéral est limitée aux échantillons issus des horizons supérieurs du sol, ce qui est en accord avec les observations effectuées sur la phase solide (MOHAMED, 1988 ; NYS, 1989).

Les agents -acides organiques ou minéraux- responsables de l'évolution observée du minéral, n'ont pas été identifiés dans cette expérience. Les travaux de ROBERT *et al.* (1979), apportent quelques références expérimentales sur l'effet de la concentration et la nature de l'acide dans la désaturation de la vermiculite. On remarque en particulier le rôle du proton dans le contrôle de la désaturation et secondairement celui de la nature de l'acide (figure 5).

On explique alors aisément la corrélation observée entre le flux de protons et la désaturation du minéral-test situé dans le flux gravitaire.

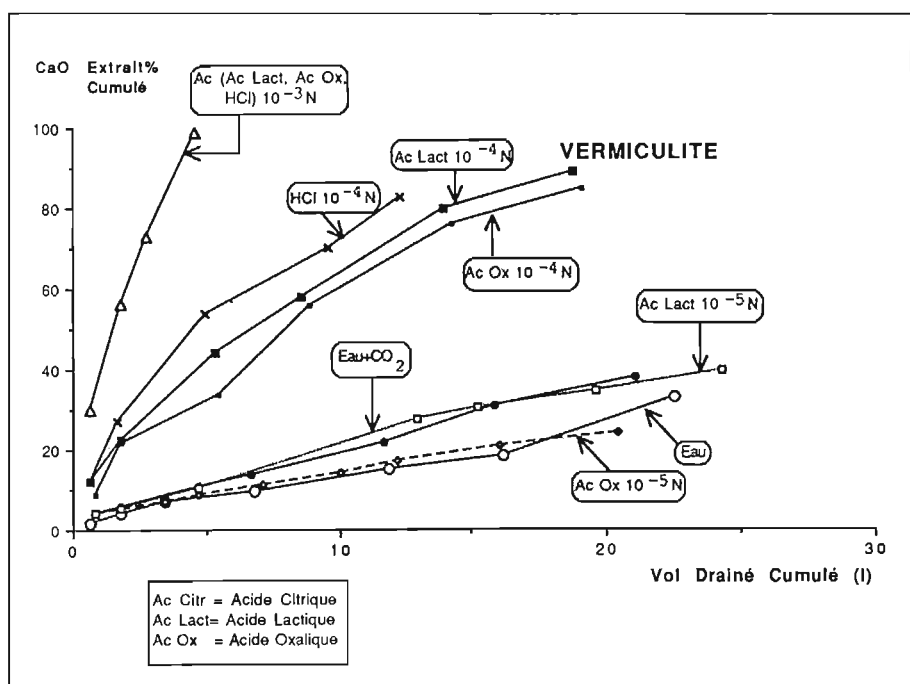


Figure 5 : Effet de différents acides à différentes concentrations sur la désaturation d'une vermiculite calcique (d'après ROBERT *et al.*, 1979).

*Effects of acid type and acid concentration on the desaturation of a Ca-saturated vermiculite (after ROBERT *et al.*, 1979).*

## 2. Relations entre l'évolution des vermiculites placées à l'émissaire des plaques lysimétriques et l'évolution des vermiculites placées dans les sols

Ces résultats concernent l'expérience de comparaison d'essences. Le minéral placé dans le flux gravitaire montre une évolution liée globalement au même mécanisme

d'acidification que celle observée pour le minéral placé dans le sol. Des différences importantes apparaissent entre ces deux situations, se traduisant pour la vermiculite placée dans le flux gravitaire par un pH assez nettement inférieur, une désaturation en Ca toujours nettement plus marquée, une fixation plus limitée de Mg dans les sols bruns, mais plus élevée dans le sol podzolique, une fixation moyenne plus faible d'Al libre, mais variable selon les types de sols, une CEC très généralement plus faible, et une stabilité plus grande de l'intergrade Al dans les sols bruns mais identique dans le sol podzolisé.

Les corrélations établies entre les variables des vermiculites placées dans les deux situations ne sont jamais significatives. Les mécanismes d'évolution sont pourtant de même type et conduisent dans les deux cas à une évolution par désaturation et transformation en milieu acide par aluminisation de la zone interfoliaire. L'examen des éléments analogues entre ces deux vermiculites montre que des relations se dessinent cependant par station, mais que rien de statistiquement significatif ne peut être démontré, compte tenu du dispositif expérimental.

### 3. Relations entre l'évolution des vermiculites placées à l'émissaire des plaques lysimétriques et celles introduites dans les sols, avec le chimisme des sols

L'observation des matrices de corrélation ne donne que très peu de relations significatives. Seules les relations mettant en jeu le pH ou l'acidité du sol sont ou ont tendance à être significatives, comme le montre la relation entre le pH du sol et  $Al_{éch}$  de la vermiculite des lysimètres ( $r = -0,439$ ,  $n=26$ ) (figure 6). Les variables du fonctionnement actuel du sol sont corrélées à l'évolution de la vermiculite, ce qui n'est pas le cas des variables qui cumulent les évolutions actuelles et passées (par exemple les éléments libres). On constate des corrélations sensiblement plus significatives entre l'évolution des vermiculites introduites dans les sols et les analyses de sols, que celles établies entre les vermiculites percolées par les solutions gravitaires et ces mêmes analyses de sols.

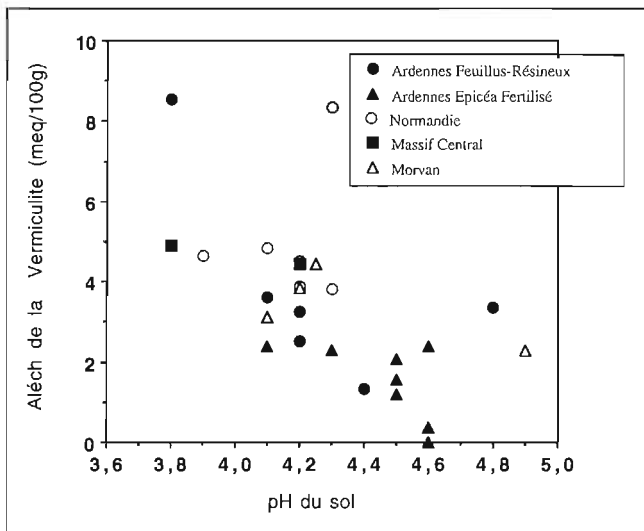


Figure 6 :

Relation entre le pH du sol et Al échangeable de la vermiculite placée à l'émissaire des plaques lysimétriques, pour l'ensemble des sites (liste au tableau I).

*Relationship between soil pH and exchangeable Al of the vermiculite placed into the outlet of the plate lysimeters, for all the sites (see list table I)*

Ces résultats montrent que ces deux approches ne rendent pas compte de mécanismes identiques du fonctionnement des sols.

## CONCLUSION

Des résultats de plus en plus nombreux montrent que le sol peut évoluer relativement rapidement, tout au moins en ce qui concerne l'état de sa garniture ionique (HILDEBRANDT, 1986 ; TAMM et HALLBÄCKEN, 1988 ; FALKENGREN-GRERUP et ERIKSSON, 1990 ; JOHNSON *et al.*, 1991), voire une modification des mécanismes de fonctionnement (MULDER *et al.*, 1989 ; RIGHI *et al.*, 1990 ; RANGER *et al.*, 1991 ; MOHAMED *et al.*, 1992).

L'approche expérimentale par la méthode des minéraux-test est un moyen indirect pour mettre en évidence les mécanismes actuels de fonctionnement des sols. Cette méthode est essentiellement qualitative. Une des difficultés réside dans la calibration expérimentale qui est réalisée avec des milieux simplifiés par rapport au milieu naturel. Le schéma proposé par ROBERT *et al.* (1979) ne peut prendre en compte toutes les conditions expérimentales (vitesse de percolation, réactions en milieu fermé ou ouvert, mélange d'acides dans l'espace ou dans le temps) ainsi que toutes les concentrations acides pouvant conduire à des situations intermédiaires. RAZZAGHE et ROBERT (1977) mettent en évidence le rôle de la température et du type de percolation sur l'évolution du minéral. GOH et HUANG (1984) montrent par exemple que la complexation de Al est conditionnée par le rapport citrate/Al, VINCENTE et ROBERT (1979) montrent que la valeur de la concentration en acide fulvique peut conduire à des systèmes particuliers. L'interprétation des résultats issus des milieux naturels sera plus complexe que le schéma expérimental qui doit sans cesse être amélioré.

Cette méthode a été appliquée ici pour comparer expérimentalement le fonctionnement global du sol (minéraux insérés dans le sol) avec celui du fonctionnement particulier induit par la phase à drainage rapide (minéraux placés dans le flux gravitaire).

Les minéraux-test insérés dans les horizons de sols, révèlent une évolution rapide. Dans l'échantillon de sols acides étudiés, le mécanisme d'acidification est général. Il se traduit par une désaturation importante en Ca et une forte diminution de la CEC du minéral, corrélée à la fixation d'Al hydroxylé et polymérisé sous forme non échangeable. La transformation minéralogique de la vermiculite montre la stabilité de cet intergrade qui n'est pas totalement destabilisé par le réactif de Tamura, pourtant hautement sélectif vis-à-vis de Al interfoliaire.

Les minéraux placés à l'émissaire des plaques lysimétriques révèlent la même évolution générale mais avec des différences importantes. La désaturation en Ca et la baisse de CEC sont significativement plus marquées. Les autres variations portant sur la fixation de Mg et d'Al (échangeable ou non), la stabilité de l'intergrade etc..., ne sont pas significatives sur l'échantillon total, mais dépendent du type de sol. On n'observe ainsi aucune corrélation significative sur l'ensemble de l'échantillon entre les variables minéral-test des sols et minéral-test placé dans le flux gravitaire.

Ces observations montrent que le minéral évolue dans des environnements différents suivant qu'il a été introduit dans la matrice du sol ou bien placé dans le flux d'eaux gravitaires. L'évolution des vermiculites implantées dans les sols dépend du type de sol (via les paramètres physiques, chimiques et minéralogiques) et de l'essence forestière (paramètre biologique), qui règlent les flux et les équilibres : cette évolution est caractéristique d'un milieu confiné où les réactions peuvent aboutir à un équilibre relatif entre des échanges soustractifs (prélèvement par les plantes, diffusion vers les solutions drainantes) et additifs (flux d'altération). Les vermiculites placées à l'émissaire des plaques lysimétriques évoluent en fonction des flux d'eau et d'éléments en solution, et en particulier du flux de protons, qui règlent les échanges. Dans les expériences en question, la modification du minéral-test rend compte de l'effet d'un flux assez peu différencié qualitativement, dans la gamme limitée de sols acides étudiés. Cette évolution s'opère dans un milieu ouvert, très agressif, dans lequel le minéral est en état de déséquilibre constant, malgré des apports non négligeables. La désaturation y est très importante et Al s'y accumule. Dans le cas particulier des sols bruns, la formation de vermiculite hydroxy-alumineuse stable indique cependant que l'évolution est limitée par la polymérisation de Al interfoliaire, vraisemblablement pendant les phases de dessiccation. On a affaire à un mécanisme particulier d'évolution soustractive sous l'influence d'une acidité minérale ou d'une acidité organique faible, sans complexation de Al qui peut s'accumuler pour partie en zone interfoliaire limitant l'évolution future du minéral ; c'est un mécanisme très différent de celui qui concourt à la formation des horizons éluviaux de podzols, par exemple (ROBERT *et al.*, 1979 ; 1987).

On peut schématiser le sol au plan des réactions chimiques, comme un milieu poreux hétérogène, composé d'une part d'une porosité grossière inter-agrégat, où circule la phase gravitaire mobile (BEVEN et GERMANN, 1982), et qui est le siège de réactions d'échanges rapides en milieu "ouvert", et d'autre part d'une porosité capillaire intra-agrégat, dans laquelle la phase liquide est peu mobile, et qui est le siège de réactions d'échange et d'altération tendant vers l'équilibre, en milieu confiné (TARDY *et al.*, 1974).

On montre ici expérimentalement la différence entre ces deux sous-systèmes du sol. Ces deux milieux présentent des rapports Ca/Al ou Mg/Al très différents dont l'importance a été mise en évidence au plan des relations sol-plante (ROST-SIEBERT, 1983 ; HUTTERMANN et ULRICH, 1984). Il est nécessaire toutefois d'être capable, dans un sol donné, de savoir à partir de quel type de solution s'alimente la plante. HANTSCHERL *et al.* (1988) ont montré le résultat de ces mécanismes divergents sur l'évolution de la phase solide du sol et la composition des solutions issues de percolation sur sol non perturbé ou sur sol broyé, en liaison avec les propriétés hydrauliques du sol.

Reçu pour publication : Janvier 1992

Accepté pour publication : Janvier 1993

## BIBLIOGRAPHIE

- ADAMS F., 1974 - Soil solution. *In : the plant root and its environment*. E.W. CARSON Ed., Univ. Press of Virginia, 441-481.
- ADAMS F., BURMESTER C., HUE N.V. and LONG F.L., 1980 - A comparison of column displacement and centrifuge methods for obtaining soil solutions. *Soil. Sci. Soc. Am. J.*, **44**, 733-735.
- BEVEN K. and GERMAN P., 1982 - Macropores and water flow in soils. *Water Resour. Res.*, **18**, 1311-1325.
- BONNE M., ANDREUX F., VEDY J.C. et SOUCHIER B., 1982 - Etude hydrochimique saisonnière dans trois sols acides : composition des eaux gravitaires et des solutions extraites à pH 4,4. *Science du Sol*, **4**, 275-292.
- FALKENGREN-GRERUP U. and ERIKSSON H., 1990 - Changes in soil, vegetation and forest yield between 1947 and 1988 in beech and oak sites of southern Sweden. *Forest Ecology and Management*, **38**, 37-53.
- Van GENUCHTEN M.Th., ROLSTON D.E. and GERMAN P., 1990 - Transport of waters and solutes in macropores. *Geoderma*, **46** (1-3) 297 p.
- GOH T.B. and HUANG E.M., 1984 - Formation of hydroxy-Al Montmorillonite complexes as influenced by citric acid. *Can. J. Soil Sci.*, **64**, 411-421.
- HANTSCHER R., KAUPENJOHANN M., HORN R., GRADL J. and ZECH W., 1988 - Ecologically important differences between equilibrium and percolation soil extracts, Bavaria. *Geoderma*, **43**, 213-227.
- HATTON A., RANGER J., ROBERT M., NYS C and BONNAUD P., 1987 - Weathering of a mica introduced into four acid forest soils. *J. Soil Sci.*, **38**, 179-190.
- HETIER J.M. et TARDY Y., 1969 - Présence de vermiculite Al, Montmorillonite Al et Chlorite Al et leur répartition dans quelques sols des Vosges. *C.R. Acad. Sci. Paris*, **268**, 259-261.
- HILDEBRANDT E.E., 1986 - Zustand und Entwicklung der Austauschigenschaften von Mineralböden aus Standorten mit erkrankten Waldbeständen. *Forstwiss. Zentralbl.*, **105**, 60-76.
- HUANG W.H. and KELLER W.D., 1970 - Dissolution of rock-forming silicate minerals in organic acids : simulated first stage weathering of mineral surfaces. *Am. Min.*, **55**, 2076-2094.
- HUTTERMANN A. and ULRICH B., 1984 - Solid phase-solution-root inter-actions in soils subjected to acid deposition. *Phil. Trans. Roy. Soc. London B*, **305**, 353-368.
- JACKSON M.L., 1962 - Interlayering of expandable layer silicates in soils by chemical weathering. *Clays and Clay minerals*, **11**, 29-46.
- JOHNSON D.W., CRESSER M.S., NILSSON I., TURNER J., ULRICH B., BINKLEY D. and COLE D.W., 1991 - Soils changes in forest ecosystems: evidence for and probable causes. *Proc. Roy. Soc. Edinburgh*, **97B**, 81-116.
- MEHRA O.P. and JACKSON M.L., 1960 - Iron oxide removal from soils and clays by a dithionite-citrate system with sodium bicarbonate. *Clays and Clay minerals*, **7<sup>th</sup>** Conf., Pergamon Press N.Y., 317-327.
- MERIAUX S., 1979 - Le sol et l'eau. *In Pédologie* tome II ; Constituants et propriétés des sols. BONNEAU M. et SOUCHIER B. Eds., 266-310.
- MOHAMED A.D., 1988 - Effet de la fertilisation sur les modifications physico-chimiques d'un sol brun acide des Ardennes (expérience de la Croix-Scaille). INRA CRF Nancy. Doc. Int. Station Sols Forestiers, 10 p.
- MOHAMED A.D., RANGER J., DAMBRINE E., BONNEAU M., GELHAYE D. and GRANIER A., 1993 - The current function of a spruce declining ecosystem assessed by the mass balance technique : effects of liming and fertilization on the soil nitrogen. *Forest Ecology and Management* (sous presse).

- MULDER J., VAN BREEMEN N. and EIJCK H.C., 1989 - Depletion of soil aluminium by acid deposition and implications for acid neutralization. *Nature*, 337 (6204) 247-249.
- NYS C., 1987 - *Fonctionnement du sol dans un écosystème forestier : étude des modifications dues à la substitution d'une plantation d'épicéa commun (Picea abies Karst) à une forêt feuillue mélangée des Ardennes*. Thèse Univ. Nancy I, 207 p.
- NYS C., 1989 - fertilisation, dépérissement et production de l'épicéa commun (*Picea abies* Karst.) dans les Ardennes. *Rev. for. fr.* XLI 4, 336-347.
- RANGER J. et ROBERT M., 1985 - Caractérisation du fonctionnement physicochimique des sols forestiers par une approche expérimentale utilisant l'évolution de minéraux primaires. *Agronomie*, 5 (2) 157-158.
- RANGER J., ROBERT M., BONNAUD P. et NYS C., 1990 - Les minéraux-tests : une approche expérimentale in-situ de l'altération biologique et du fonctionnement des écosystèmes forestiers. Effet des types de sols et des essences feuillues et résineuses. *Ann. Sci. For.*, 47, 529-550.
- RANGER J., DAMBRINE E., RIGHI D., ROBERT M. and FELIX C., 1991 - In-situ characterization of current soil forming processes by the mean of the mineral bags and the resin bags technique. *Geoderma*, 48, 335-350.
- RAZZAGHE-KARIMI M.H., 1976 - *Contribution à l'étude expérimentale des phénomènes d'altération en milieu organique. Application à l'évolution des micas et phyllosilicates 2/1*. Thèse Univ. Paris VI, 222 p.
- RAZZAGHE-KARIMI M.H. and ROBERT M., 1977 - A distinction between the main mechanisms governing weathering by organic compounds. In : *Proceedings of the 2<sup>nd</sup> Int. Symp. on "Water-rock interaction"* 08/1977, 250-255.
- RICH C.I., 1968 - Hydroxy-interlayers in expansible layer silicates. *Clays and Clay Minerals*, 16, 15-30.
- RIGHI D., BRAVARD S., CHAUVEL A., RANGER J. and ROBERT M., 1990 - In-situ study of podzolisation in an Oxisol-Spodosol sequence in Amazonia (Brazil). *Soil Science*, 150 (1) 438-445.
- ROBERT M., RAZZAGHE-KARIMI M.H., VINCENTE M.A. et VENEUG., 1979 - Rôle du facteur biochimique dans l'altération des minéraux silicatés. *Science du sol* (2-3) 154-174.
- ROBERT M., RAZZAGHE-KARIMI M.H. et RANGER J., 1987 - Etudes expérimentales sur le rôle du facteur biochimique dans la podzolisation. In : *Podzols et podzolisation*, RIGHI D. et CHAUVEL A. (Eds). INRA-AFES. 207-223.
- ROUILLER J., GUILLET B. et BRUCKERT S., 1980 - Cations échangeables acides et acidité de surface. *Science du Sol* (2) 161-178.
- ROST-SIEBERT K., 1983 - Aluminium-toxizität und -toleranz am Keimpflanzen von Fichte und Buche. *Allgem. Forstzeitschr.*, 5, 686-689.
- TAMM C.O. and HALLBÄCKEN L., 1988 - Changes in soil acidity in two forest areas with different acid deposition : 1920s to 1980s. *Ambio*, 17 (1) 56-61.
- TAMURA T., 1957 - Identification of the 14 Å clay mineral component. *Am. Mineralogist*, 42, 107-110.
- TARDY Y., BOCQUIER G., PAQUET H. et MILLOT G., 1974 - Formation of clay from granite and its distribution in relation to climate and topography. *Geoderma*, 10, 271-284.
- VINCENTE M.A. et ROBERT M., 1979 - Rôle des acides fulviques et humiques dans les premiers stades de l'altération des micas. In : *Migration organo-minérale dans les sols tempérés*, Colloques Internationaux du CNRS, N°303, Nancy, 24-28 sept, 305-312.
- ZABOWSKI D. and UGOLINI F.C., 1990 - Lysimeters and centrifuge soil solutions : seasonal differences between methods. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 54, 1130-1135.