ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUT OF TECHNOLOGY

AgroParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET INDUSTRIES DU VIVANT ET DE L'ENVIRONNEMENT
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY FOR LIFE, FOOD AND ENVIRONMENTAL SCIENCES

lorraine
conseil régional

ADEME
Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie

RP2E

Doctorat ParisTech

T H È S E

pour obtenir le grade de docteur délivré par

L'Institut des Sciences et Industries du Vivant et de l'Environnement

(AgroParisTech)

Spécialité : Sciences Forestières et du Bois

présentée et soutenue publiquement par

Gabriela RIOFRÍO-DILLON

le 28 juin 2013

ÉVOLUTION DE L'ACIDITÉ ET DE LA DISPONIBILITÉ EN AZOTE DES SOLS FORESTIERS FRANÇAIS AU COURS DU 20ème SIÈCLE

Une approche spatio-temporelle et multi-échelle basée sur le caractère bio-indicateur de la flore

Directeur de thèse : **Jean-Claude GÉGOUT**
Co-encadrement de thèse : **Romain BERTRAND** (CBTM, USR2936 CNRS)

Jury

M. Etienne DAMBRINE, Pr., UMR 042 Carrtel INRA, Université de Savoie	Rapporteur
M. Didier ALARD, Pr., UMR 1202 BIOGECO, Université de Bordeaux 1	Rapporteur
Mme. Anne PROBST, DR2, EcoLab-UMR 5245 CNRS-UPS-INPT, ENSAT	Examinateur
M. Bernard AMIAUD, Pr., UMR Nancy-Université, ENSAIA	Examinateur
M. Jean-Claude GÉGOUT, Pr., LERFoB (UMR1092 AgroParisTech-INRA), AgroParisTech Nancy	Directeur

AgroParisTech
Laboratoire d'Etude des Ressources Forêts-Bois
14 rue Girardet – CS 14216 – 54042 Nancy Cedex – France

À citer : Riofrío-Dillon G (2013) Evolution de l'acidité et de la disponibilité en azote des sols forestiers français au cours du 20ème siècle. Une approche spatio-temporelle et multi-échelle basée sur le caractère bio-indicateur de la flore. Ph.D. thesis, AgroParisTech, Nancy, France, 215 pp.

ÉVOLUTION DE L'ACIDITÉ ET DE LA DISPONIBILITÉ EN AZOTE DES SOLS FORESTIERS FRANÇAIS AU COURS DU 20ème SIÈCLE

Une approche spatio-temporelle et multi-échelle basée sur le caractère bio-indicateur de la flore

EVOLUTION OF THE ACIDITY AND NITROGEN AVAILABILITY IN FRENCH FOREST SOILS OVER THE 20th CENTURY

A spatiotemporal and multiscale approach based on the bioindicator character of plants

RÉSUMÉ

Les activités humaines ont, depuis plus d'une centaine d'années, influencé de plus en plus fortement les cycles géochimiques contrôlant les niveaux d'acidité et de disponibilité en azote dans la nature. Les dépôts acides et azotés conduisent à une modification des conditions du milieu et notamment à des changements sensibles de la composition des communautés d'espèces végétales.

L'objectif de cette thèse est de retracer l'évolution spatio-temporelle de l'acidité et de la disponibilité en azote des sols forestiers français au cours du 20ème siècle à partir du caractère bio-indicateur de la flore, à l'échelle locale ainsi qu'à l'échelle globale. L'utilisation de la flore comme bio-indicateur vise à pallier l'absence de données de mesures directes des conditions édaphiques et des dépôts atmosphériques acides et azotés couvrant une large emprise spatio-temporelle. Premièrement, les variations de pH (indicateur d'acidité) et C:N (indicateur de disponibilité en azote) bio-indiquées ont été calculées à partir d'environ 100 000 relevés floristiques temporaires réalisés dans toute la France de 1910 à 2010. Elles ont été analysées par une méthode novatrice de comparaison spatio-temporelle, en différenciant les zones forestières sur substrat acide et non-acide ainsi que les forêts de conifères et de feuillus. Dans un second temps, nous avons analysé les changements des conditions édaphiques entre 1972 et 2011 à l'échelle de la forêt de Villey-Le-Sec, et ceux de la flore qu'ils induisent en lien avec d'autres évolutions environnementales, toujours à partir du caractère bio-indicateur de la flore.

À l'échelle globale, nous avons observé une acidification des forêts françaises en milieu acide (-0.34 unités du pH en moyenne) et milieu non-acide (-0.19 unités du pH en moyenne), respectivement, jusqu'en 1984 et 1997. Nous avons ensuite mis en évidence, pour la première fois à notre connaissance, un arrêt dans l'acidification des sols forestiers et même une diminution de l'acidité sur substrat non-acide ainsi que un décalage temporel entre l'acidification des zones acides et non-acides. Cette évolution apparaît tout à fait cohérente avec celle connue des dépôts atmosphériques acidifiants en France depuis le début du 20ème siècle. Spatialement, nous confirmons la tendance temporelle, montrons une évolution régionalisée de l'acidification principalement sur substrat non-acide et soulignons la grande variabilité spatiale des changements de pH des sols forestiers. Concernant l'évolution de la disponibilité en azote, nous observons une diminution non attendue de celle-ci jusqu'en 1984 et 1997, respectivement, dans les forêts de conifères (+0.79 unités de C:N en moyenne) et de feuillus (+0.74 unités de C:N en moyenne). Une tendance à l'eutrophisation des sols forestiers

a ensuite été observée dans les forêts de conifères et de feuillus à partir de 1997 (-0.10 et -0.16 unités de C:N en moyenne, respectivement). Cette évolution apparaît décalée par rapport à celle des dépôts azotés en France. Deux raisons principales peuvent être avancées pour expliquer cette différence : (i) une inhibition des communautés microbiennes et de décomposeurs impliquées dans la minéralisation de l'azote due à l'acidification des sols, et (ii) le vieillissement et/ou développement des forêts. Spatialement, nos résultats montrent la diminution du C:N au cours de la période 1997-2007 ainsi que le caractère régional de l'eutrophisation, principalement dans les forêts de feuillus. À l'échelle locale, nous confirmons les évolutions mises en évidence à l'échelle globale. Nous montrons également que le remaniement de la flore s'est accéléré à partir de 1991 dans la forêt de Villey-Le-Sec sous l'effet principal de l'accentuation de son eutrophisation. Il ressort également de cette étude que le remaniement des communautés végétales sous l'effet des changements globaux est un processus complexe où bon nombre de changements environnementaux supplémentaires interviennent (e.g. changement climatique et de gestion sylvicole) et interagissent.

L'ensemble de nos résultats met en évidence que les sols et la flore forestière sont entrés dans une période caractérisée par le recouvrement des effets de l'acidification (subis jusqu'aux années 1990) et les premiers effets de leur eutrophisation. Notre travail montre l'intérêt de l'application de la bio-indication à de larges bases de données floristiques pour suivre l'évolution des changements de propriétés chimiques des sols et des impacts des polluants acidifiants et eutrophisants sur les écosystèmes forestiers, à long terme et sur de vastes zones géographiques mais aussi à des échelles plus locales où cette approche peut permettre de comprendre l'effet des changements globaux ainsi que leur interaction sur les changements floristiques.

Mots-clés

Acidification, bio-indication, changements globaux, décalage temporel, échelles nationale et locale, écosystème forestier tempéré, eutrophisation, évolution spatio-temporelle, flore, long terme, modélisation, niche écologique, pollution atmosphérique, recouvrement, remaniement des communautés végétales, sol.

ABSTRACT

Human activities have, over the last century, strongly influenced the cycles controlling the levels of acidity and nitrogen availability in nature. Acidifying and eutrophying deposition lead to a change in environmental conditions and particularly to sensitive changes in plant communities' composition.

The objective of this Ph.D work is to reconstruct the spatiotemporal evolution of the acidity and nitrogen availability in French forest soils over the 20th century using the bioindicator character of plants, into local and global scales. The use of plants as bioindicator seeks to mitigate the lack of direct measurements of soil conditions and atmospheric deposition, over a wide spatiotemporal extent. First, changes in bioindicated soil pH (indicator of acidity conditions) and C:N (indicator of nitrogen availability status) were computed from approximately 100 000 temporary floristic plots carried out throughout France from 1910 to 2010. They were analyzed using an innovative method of spatiotemporal comparison, where acidic and nonacidic forest areas and coniferous and broadleaved forests were differentiated. Secondly, and always from the bioindicator character of plants, changes in soil conditions between 1972 and 2011 across Villey forest as well as floristic changes they induce related with other environmental changes were analyzed.

At the global level, we observed acidification in acidic forest areas (-0.34 pH units on average) and in nonacidic areas (-0.19 pH units on average), respectively, until 1984 and 1997. We demonstrated for the first time (to our knowledge) a cessation of acidification of forest soils and even a decrease in acidity in nonacidic forest areas, as wella as a time lag for acidification between acidic and nonacidic areas. This trend is consistent with the trend of acidifying deposition in France since the early 20th century. Spatially, our results confirm the temporal trends, show a regional geographic pattern of acidification (mainly observed in nonacidic areas), and highlight the high spatial variability of soil pH changes. Concerning the evolution of nitrogen availability conditions, we observed an unexpected decrease in available nitrogen until 1984 and 1997, respectively, in coniferous (+0.79 C:N units on average) and broadleaved forests (+0.74 C:N units on average). A trend to eutrophisation of forest soils was then observed in coniferous and broadleaved forests since 1997 (-0.10 and -0.16 C:N units on average, respectively). This trend is not consistent with the trend of nitrogen atmospheric deposition in France. Two main raisons probably explain this difference: (i) an inhibition of the microbial and decomposer communities involved in nitrogen mineralization due to soil

acidification, and (ii) the aging and/or the development of forest. Spatially, our results show the decrease in soil C:N during the 1997-2007 period, and highlight a regional geographic pattern of eutrophication, mainly observed in broadleaved forests. At the local level, we confirm the changes shown on a global scale. We also show that changes in floristic composition have accelerated since 1991 in Villey forest mainly as a result of an enhanced eutrophisation. Moreover, the reshuffling of plant communities as a result of global changes is pointed out as a complex process where some environmental changes take place (climate change, forest management) and interact.

Our results highlight that forest soils and plants are entering a period characterized by the recovery from the effects of acidification (occurring until 1990s), and the first effects of eutrophisation. Moreover, our work stress the importance of the application of bioindication in large floristic databases for monitoring changes in soil chemical properties and impacts of acidifying and eutrophying pollutants on forest ecosystems in the long terme and over large geographic areas, but also to more local scales where this approach can help to understand the effect of global changes and their interaction on floristic changes.

Key words

Acidification, bioindication, global changes, time lag, national and local scales, forest temperate ecosystem, eutrophisation, spatiotemporal evolution, plant species, long term, ecological modeling, ecological niche, atmospheric pollution, recovery, reshuffling of floristic composition, soil.

RESUMEN

Las actividades humanas han venido influenciando, desde hace más de cien años, los ciclos que controlan los niveles de acidez y de disponibilidad de nitrógeno en la naturaleza. Los depósitos ácidos y de nitrógeno conllevan a un cambio en las condiciones medio ambientales y a una reorganización de la composición de las comunidades des especies vegetales.

El objetivo de esta tesis es reconstituir la evolución espacio-temporal de la acidez y de la disponibilidad de nitrógeno de los suelos forestales franceses durante el siglo XX a partir del carácter bio-indicador de la flora, a escalas local y global. El uso de la flora como bio-indicador busca mitigar la falta de datos medidos de las condiciones del suelo y de los depósitos atmosféricos ácidos y de nitrógeno, y permite cubrir una gran extensión espacio-temporal. Primeramente, las variaciones del pH (indicador de la acidez) y del C:N del suelo (indicador de la disponibilidad de nitrógeno) bio-indicados fueron calculadas a partir de aproximadamente 100 000 parcelas florísticas temporales llevadas a cabo en todo Francia entre 1910 y 2010. Dichas variaciones fueron analizadas mediante un método innovador de comparación espacio-temporal entre parcelas, diferenciando las zonas forestales sobre substrato ácido de aquellas sobre substrato no-ácido, así como también los bosques de coníferas de los caducifolios. En segundo lugar, y también a partir del carácter bio-indicador de la flora, se analizaron los cambios de las condiciones edáficas entre 1972 y 2011 en el bosque de Villey-Le-Sec y aquellos en la vegetación que éstos inducen en relación con otros cambios medio ambientales.

A escala global, una acidificación de los bosques franceses en medio ácido (-0.34 unidades de pH en promedio) y no-ácido (-0.19 unidades de pH en promedio) fue observada hasta 1984 y 1997, respectivamente. Además, fue demostrada, por primera vez a nuestro conocimiento, una interrupción de la acidificación de los suelos forestales e incluso una disminución de la acidez sobre substrato no-ácido, además de un desfase temporal entre la acidificación de las zonas ácidas y no-ácidas. Esta evolución es coherente con la de los depósitos atmosféricos acidificantes en Francia registrada desde inicios del siglo XX. Espacialmente, nuestros resultados confirman la tendencia temporal, muestran la evolución regionalizada de la acidificación, principalmente sobre substrato no-ácido, y ponen de relieve la gran variabilidad espacial de los cambios de pH de los suelos forestales. En lo que se refiere a la evolución de la disponibilidad de nitrógeno, una disminución inesperada de ésta hasta 1984 y 1997, respectivamente, en los bosques de coníferas (+0.79 unidades de C:N en promedio) y caducifolios (+0.74 unidades de C:N en promedio) fue observada. Una tendencia a la

eutrofización de los suelos forestales fue a continuación evidenciada en los bosques de coníferas y caducifolios a partir de 1997 (-0.10 y -0.16 unidades de C:N en promedio, respectivamente). Esta evolución aparece desfasada de aquella de los depósitos de nitrógeno en Francia. Dos razones principales pueden ser adelantadas para explicar esta diferencia: (i) una inhibición de las comunidades microbianas y de descomponedores, implicadas en la mineralización del nitrógeno, debido a la acidificación de los suelos, y (ii) el envejecimiento y/o el desarrollo de los bosques. Espacialmente, nuestros resultados muestran la disminución del C:N durante el período 1997-2007, así como también el carácter regional de la eutrofización principalmente en los bosques caducifolios. A la escala local, se confirman las tendencias de evolución señaladas a escala global. Además, se muestra una aceleración en la reorganización de la flora a partir de 1991 en el bosque de Villey-Le-Sec bajo el efecto principal de la acentuación de la eutrofización. Se desprende también de este estudio que la reorganización de las comunidades vegetales como resultado de los cambios globales es un proceso complejo en el que numerosos cambios ambientales adicionales intervienen (por ejemplo, el cambio climático y la gestión forestal) e interactúan.

Todos nuestros resultados ponen de relieve que los suelos y la flora forestales han entrado en un período caracterizado por la recuperación de los efectos de la acidificación (identificados hasta los años 1990) y los primeros efectos de la eutrofización. Nuestro trabajo muestra la importancia de la aplicación de la bio-indicación a grandes bases de datos florísticos para monitorear los cambios en las propiedades químicas del suelo y los impactos de los contaminantes acidificantes y eutrofizantes en los ecosistemas forestales, en el largo plazo y cubriendo grandes zonas geográficas, pero también a las escalas más locales donde este enfoque puede ayudar a entender el efecto de los cambios globales y su interacción en la reorganización de la composición florística.

PALABRAS CLAVES

Acidificación, bio-indicación, cambios globales, desfase temporal, escalas nacional y local, ecosistema de bosque templado, eutrofización, evolución espacio-temporal, flora, largo plazo, modelamiento, nicho ecológico, contaminación atmosférica, recuperación, reorganización de comunidades vegetales, suelo.

REMERCIEMENT

Tout d'abord, je remercie l'ADEME et le Conseil Régional de Lorraine d'avoir soutenu et financé ce projet de recherche. Merci à l'ingénieure de l'ADEME, Laurence Galsomies, qui a suivi ma thèse au cours de ces 3 ans (et demi).

Je tiens à remercier Jean-Claude Gégout, mon directeur de thèse, pour m'avoir confié ce projet et m'avoir accompagné (à ta façon) pour le mener à bien. Qui aurait imaginé que notre rencontre lors de mon passage au Chili allait me permettre d'explorer le monde de la recherche de si près et arriver jusqu'ici. J'espère que tu es, autant que moi, satisfait par les résultats. Le temps investi a donné ses fruits.

Merci aussi à Romain Bertrand, mon co-encadrant de thèse, pour son travail si consciencieux et constructif envers mon projet. Bien que nous ayons commencé à travailler ensemble pour des questions statistiques, ceci s'est vite transformé (heureusement pour moi) en un vrai travail d'équipe où ton investissement, ton enthousiasme et ta passion pour la recherche m'ont poussé à aller plus loin en quête de la rigueur scientifique sans me sentir seule, à trouver des réponses lors des moments de doutes et à avoir confiance en moi. Merci pour ton soutien (j'y reviendrai !) et surtout pour être présent. Merci également pour ton aide inestimable dans la relecture et correction de ce manuscrit (ça n'a pas été facile ni rapide…la langue française quoi !!!), ainsi que de mes articles, écrits et présentations.

Je remercie les membres de mes comités de thèse, Laurent Galsomies, Anne Probst, Jean-Marc Frémont. Vos commentaires avisés m'ont aidé à centrer mon travail et à avancer. Je remercie aussi les membres de mon jury de thèse pour avoir accepté d'évaluer mon travail. L'échange lors de la soutenance a été enrichissant et vos critiques constructives.

Merci également à tous ceux de l'équipe d'Écologie Forestière et de l'administration du centre AgroParisTech de Nancy : Bruno, Christian, Ingrid, Jean-Daniel, Bernard, Erwin (je garde plein de bons souvenirs de notre travail à Villey-Le-Sec et j'essaie de ne pas oublier la flore que tu m'as appris, merci !), Sébastien, Vincent, Fabien, Jean-Claude Pierrat, François, Meriem, Sophie, Isabelle Anselme, Evelyne Bourra, Nicole, Sylvie Geller, Anne-Sophie Nowak, Fatima.

Je n'oublie surtout pas les thésards et stagiaires, la partie cool du labo. Je suis contente d'avoir partagé cette expérience à vos côtés : Pierre, Marie et Raphael. Merci Pierre pour ton plaisir pour parler, tes gâteaux et pour me faire découvrir Nuf-Nuf et la girafe (oh non, oh mon

collier !!). Marie, merci pour ton oreille attentive et ta capacité de décrocher du boulot pour parler des autres choses. Nos journées 'ski' (en compagnie de Romain aussi) ont été bien sympas. J'avoue, ce n'est pas facile pour une équatorienne pure et dure comme moi d'apprendre ce sport mais j'étais ravie de partir avec vous trois, d'essayer, de regarder les gens, d'admirer le paysage vosgien, de rigoler toute seule par l'effet de me voir glisser ou par la peur, qui sait ?? Merci aussi à Raph pour tout ce qu'on a papoté : de la complexe statistique bayésienne à une simple tarte au pomme. Rien à voir bien sûr, c'est bien pour cela que j'ai autant profité. Un grand merci également aux stagiaires qui sont passés au LERFoB : Ellen, Nicolas, Raphael A., Jean-Baptiste, Benjamin, Simon, Paul, Emilien. Rien de mieux pour décompresser en milieu d'après-midi que notre pause thé.

Je remercie aux amis qui sont toujours ici pour moi. Merci Cris et Luka, vous n'imaginez pas l'importance de nos petites conversations au téléphone. Merci également à Xime, Santi, Fer, Karina, Canito ; Crispin, Lore, Malala, Fabri, Barbin ; Alvaro, Carlos, Romina, Leo ; Serge et Amélie, Coraline et Cédric, Bertrand, Citlalli, Nhu, Damien et Agathe, Clarita. L'amitié de vous tous me pousse à suivre. Je suis heureuse de vous avoir dans ma vie.

Un grand grand merci à ma belle-famille pour votre soutien moral et votre amour. Merci Claudie et Jean-Yves pour toute votre aide, pour avoir relu et corrigé la grammaire de ce manuscrit, pour être si gentils et généreux avec moi. Merci Emmeline, Franck, Emmy et Timéo. Vous êtes carrément ceux qui donnent le peps à la famille ! Et je reviens…merci Rom pour être le petit ami attentif et amoureux que tu es. Merci d'avoir pris soin de moi dans des moments douloureux, de me forcer à me faire confiance, d'avoir foi en moi, d'avoir partagé et profité avec moi de tant de choses et d'aventures, pour ton amour inconditionnel, et déjà merci pour tout ce qui nous attend ! J'ai reçu un beau cadeau en venant ici, toi.

Finalmente en estas últimas líneas (por fin en mi lengua materna) quiero agradecer y dedicar este trabajo a mis padres Carlos y Mirian, abuelos Víctor y Gladys, y hermanas Eli y Carla. La distancia no es fácil de manejar; sin embargo, ustedes han llegado a hacerla menos importante de lo que en verdad es. GRACIAS de todo corazón por su compañía, por su confianza, por su apoyo, por estar siempre aquí. Emocionalmente, ustedes me ayudan a mantenerme en equilibrio, a sentir que no estoy sola ni tan lejos! Gracias por cada uno de sus abrazos, de sus 'te quiero', gracias por decirme que se sienten orgullosos y por haberme enseñado a soñar y a caminar siempre hacia adelante, a volar alto, a agradecer por la vida y a sonreírle al mundo.

VALORISATION DES TRAVAUX DE THÈSE

Publications dans une revue internationale à comité de lecture

Riofrío-Dillon, G., Bertrand, R. & Gégout, J.-C. (2012) Toward a recovery time: Forest herbs insight related to anthropogenic acidification. Global Change Biology. 18(11): 3383-3394.

Riofrío-Dillon, G., Bertrand, R., Dupouey, J.-L. & Gégout, J.-C. Forest eutrophication does not slow down: evidence from the Northeastern France (*submitted to Journal of Vegetation Science*).

Riofrío-Dillon, G., Bertrand, R. & Gégout, J.-C. Decreasing before increasing: Evolution of nitrogen availability conditions in French forest ecosystems over the last century according to forest herbs (*in preparation for Environmental Pollution*).

Autres publications dans une revue internationale à comité de lecture

Bertrand, R., Lenoir, J., Piedallu, C., **Riofrío-Dillon, G.**, de Ruffray, P., Vidal, C., Pierrat, J.-C. & Gégout, J.-C. (2011) Changes in plant community composition lag behind climate warming in lowland forests. Nature, 479, 517-520.

Communications orales dans un colloque international

Riofrío-Dillon, G., Bertrand, R. & Gégout, J.-C. (2012) Towards a recovery time from acidification: French forest evidence. 55th symposium of the IAVS, Mopko, Korea.

Bertrand, R., **Riofrío-Dillon, G.**, Lenoir, J. & Gégout, J.-C. (2012) Understanding the current reshuffling of forest plant communities: amplifying and mitigating effects of secondary drivers on the impact of climate warming. 55th symposium of the IAVS, Mopko, Korea.

Communications orales dans un colloque national

Riofrío-Dillon, G., Bertrand, R. & Gégout, J.-C. (2012) Vers une sortie de la période d'acidification des sols forestiers : un aperçu à partir de la flore spontanée. EcoVeg8, Nancy, France.

Communications sous forme de poster

Riofrío-Dillon, G., Bertrand, R. & Gégout, J.-C. (2010) Evolution spatio-temporelle de l'acidité des sols forestières français au cours du 20ème siècle. Séminaire ED RP2E, Nancy, France.

TABLE DES MATIÈRES

ACRONYMES ET ABRÉVIATIONS i

GLOSSAIRE iii

1 INTRODUCTION 1

1.1 Contexte général 3

1.1.1 Les pollutions d'origine anthropique 3

1.1.2 Contrôle de la pollution atmosphérique et définition de charges critiques 5

1.1.2.1 Tendances des émissions et dépôts de soufre et d'azote avant et après la mise en place des accords pour contrôler la pollution atmosphérique 5

1.1.2.2 La définition des charges critiques des écosystèmes : une approche pour contrôler la pollution 8

1.2 Effets de la pollution atmosphérique d'origine anthropique sur les sols et la végétation 9

1.2.1 L'acidification 10

1.2.1.1 Impacts de l'acidification sur les sols 10

1.2.1.2 Impacts de l'acidification sur la végétation 12

1.2.2 L'eutrophisation 13

1.2.2.1 Impacts de l'eutrophisation sur les sols 14

1.2.2.2 Impacts de l'eutrophisation sur la végétation 16

1.2.3 L'acidification et l'eutrophisation en France : leurs impacts sur les écosystèmes forestiers 17

1.2.4 Le suivi des phénomènes d'acidification et d'eutrophisation 20

1.2.4.1 À travers des réseaux de surveillance 20

1.2.4.2 À partir de la flore 21

1.2.4.2.1 L'utilisation de la bio-indication 21

1.2.4.2.2 L'utilisation des approches observationnelle et expérimentale 23

1.2.4.3 Une question d'échelle : les étendues spatio-temporelles d'analyse 24

1.2.5 Après 50 ans d'une période de pollution atmosphérique intense, où en est-on ? 26

1.3 Cadre théorique de la bio-indication des conditions du sol par la flore 27

1.3.1 L'interaction espèces-environnement abordée à travers la niche écologique 27

1.3.2 Relation entre la niche écologique et la distribution des espèces 28
1.3.2.1 Conservation de la niche ou de la distribution chez les plantes 29
1.3.3 L'état du sol dérivé de l'autécologie des espèces 31
1.4 Cadre de travail de la thèse 33
1.4.1 Objectif 33
1.4.2 Hypothèses 34
1.4.3 Cadre théorique utilisé dans la thèse 34
1.4.4 Structure de la thèse 35
2 MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE 39
2.1 Les données floristiques 41
2.1.1 Les données issues d'EcoPlant 41
2.1.2 Les données issues de Sophy 42
2.1.3 Les données issues de l'inventaire forestier 42
2.1.4 Les données collectées dans la forêt de Villey-Le-Sec 43
2.2 Traitement des données floristiques 45
2.3 Les données modélisées des dépôts atmosphériques 46
2.4 Les méthodes de bio-indication : comparaison de trois approches 49
2.5 Cartographie du pH et C:N à partir des valeurs bio-indiquées 53
3 ÉVOLUTION SPATIO-TEMPORELLE DE L'ACIDIFICATION DES SOLS FORESTIERS FRANÇAIS AU COURS DU 20ème SIÈCLE À PARTIR DU CARACTÈRE BIO-INDICATEUR DES COMMUNAUTÉS VÉGÉTALES 57
3.1 Abstract 59
3.2 Introduction 60
3.3 Materials and methods 62
3.3.1 Study area 62
3.3.2 Floristic and environmental data 63
3.3.3 Training, validation and prediction floristic datasets 64
3.3.4 Weighted Averaging Partial Least Squares (WA-PLS) method to infer soil acidity from floristic assemblages 67
3.3.5 Temporal sampling for analysis of acidity trends 68
3.3.6 Sampling for analysis of temporal acidity trends by matching data 69
3.3.7 Sampling for analysis of the spatial variation of acidity in forest soils 72

3.4 Results 72
3.4.1 Analysis of temporal acidity trends by matching data 72
3.4.2 Analysis of spatial variation of acidity in forest soils 73
3.5 Discussion 76
3.5.1 On the method 76
3.5.2 Toward a recovery time from acidification 77
3.5.3 Lagged response and lower magnitude of pH change in non-acidic forest areas 78
3.5.4 Atmospheric deposition changes vs. bioindicated pH changes: no strong spatial relationship 80
3.6 Acknowledgements 81
3.7 References 81
4 ÉVOLUTION SPATIO-TEMPORELLE DE LA DISPONIBILITÉ EN AZOTE DES SOLS FORESTIERS FRANÇAIS AU COURS DU 20ème SIÈCLE À PARTIR DU CARACTÈRE BIO-INDICATEUR DES COMMUNAUTÉS VÉGÉTALES 85
4.1 Abstract 87
4.2 Introduction 88
4.3 Materials and methods 90
4.3.1 Study area 90
4.3.2 Floristic and environmental data 91
4.3.3 Training, validation and prediction floristic datasets 92
4.3.4 Weighted Averaging Partial Least Squares (WA-PLS) method to infer soil N availability from floristic assemblages 94
4.3.5 Temporal sampling for analysis of N availability trend 96
4.3.6 Sampling for analysis of temporal N availability trends by matching data 97
4.3.7 Sampling for analysis of the spatial variation of N availability in forest soils 99
4.4 Results 99
4.4.1 Analysis of temporal N availability trends by matching data 99
4.4.2 Analysis of spatial variation in N availability in forest soils 100
4.5 Discussion 102
4.5.1 On the indicator of N availability and the method 102
4.5.2 Decreasing N availability trend across French forest territory 104

4.5.3 Signals of eutrophication in coniferous and broadleaved forests 105
4.6 Conclusion 106
4.7 Acknowledgements 106
4.8 References 107
5 ÉVOLUTION DE LA VÉGÉTATION ET DES SOLS FORESTIERS À L'ÉCHELLE LOCALE : LE CAS DE LA FORÊT DE VILLEY-LE-SEC DANS LE NORD-EST DE LA FRANCE 111
5.1 Abstract 113
5.2 Introduction 114
5.3 Methods 117
5.3.1 Floristic data from the 1972, 1991, and 2011 surveys 117
5.3.2 Data analysis 118
5.3.2.1 Analysis of vegetation dynamics 118
5.3.2.2 Analyses of underlying environmental conditions 119
5.3.2.3 Analysis of environmental dynamics 120
5.4 Results 121
5.4.1 Vegetation dynamics 121
5.4.2 Environmental significance and dynamics 124
5.5 Discussion 126
5.6 Acknowledgements 129
5.7 References 129
6 DISCUSSION GÉNÉRALE 133
6.1 Évolution des valeurs bio-indiquées 135
6.1.1 Comparaison aux dépôts atmosphériques mesurés 135
6.1.2 Comparaison aux dépôts atmosphériques modélisés 136
6.1.3 Comparaison aux mesures de pH et C:N du sol 139
6.1.4 D'une période courte de mesures vers une période longue de valeurs bio-indiquées, quel est le niveau de confiance ? 143
6.1.5 La réponse de la flore aux conditions changeantes du sol est-elle décalée ? 146
6.2 Effet de l'interaction entre l'acidité et la disponibilité en azote des sols sur leurs évolutions bio-indiquées 148
6.3 Effet des autres facteurs sur la flore : climat, gestion et vieillissement des peuplements *vs.* acidification et eutrophisation 152

6.3.1 Les effets de la gestion sylvicole et du vieillissement des peuplements 152
6.3.2 Les effets du changement climatique 156
6.4 Estimation des facteurs du sol par bio-indication 157
6.4.1 Intérêt et pertinence globaux de la méthode de bio-indication 157
6.4.2 Les techniques de bio-indication 159
6.4.3 Les paramètres bio-indiqués : le pH et le C:N du sol 160
6.4.4 Les limites de la bio-indication 161
6.4.5 Qualité et exhaustivité des données 163
7 CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES 165
8 BIBLIOGRAPHIE 175
9 ANNEXES 203
9.1 Annexe 1 205
9.1.1 Abstract 205
9.1.2 Introduction 206
9.1.3 Methods summary 208
9.1.4 Results 209
9.1.5 Discussion 211
9.1.6 Acknowledgements 214
9.1.7 Author Contributions 214
9.1.8 References 215

ACRONYMES ET ABRÉVIATIONS

ADEME : Agence de l'Environnement et Maîtrise de l'Énergie.

CAA : Clean Air Act, 1970, États-Unis.

$CaCO_3$: carbonate de calcium

CATAENAT : Charge Acide Totale d'origine Atmosphérique sur les Écosystèmes NAturels Terrestres.

CLRTAP : Accord International sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance, 1979, Europe.

CITEPA : Centre Interprofessionnel Technique d'Études de la Pollution Atmosphérique.

EMEP : Programme européen de surveillance des retombées atmosphériques.

eq : mesure du quantité de matière. Un équivalent correspond à la masse d'un anion pur se combinant à 1 gramme d'ion hydronium (donc une mole d'ion H^+) ou à la masse d'un cation se combinant à 17 grammes d'ion hydroxyde (donc une mole d'ion HO^-).

H^+ : ion hydrogène.

HNO_3 : acide nitrique.

H_2SO_4 : acide sulfurique.

IGN : Institut national de l'information géographique et forestière.

LERFoB : Laboratoire d'Étude des Ressources Forêt-Bois.

MERA : MEsure des Retombées Atmosphériques.

N_2 : azote gazeux, diazote.

N_2O : oxyde nitreux.

NH_3 : ion ammoniacal. Substance liée à l'eutrophisation.

NH_4^+ : ion ammonium.

NO_3^- : ion nitrate

NO : oxyde nitrique.

NO_x : oxyde d'azote (NO_x = NO + NO_2). Substance liée à l'acidification et eutrophisation.

RENECOFOR : REseau National de suivi à long terme des ÉCOsystèmes FORestiers.

RMSE : racine de l'erreur quadratique moyenne (en anglais *root mean square erreur*).

SO_x : oxyde de soufre. Substance liée à l'acidification.

SO_2 : dioxyde de soufre.

SO_4^{2-}: ion sulfate.

Tg : téragramme. 1 Tg = 10^{12} grammes

GLOSSAIRE

Acide : substance pouvant donner un proton H^+.

Acides forts : qui se dissocient complètement en ions [H^+ et un anion] lorsqu'ils sont mélangés avec de l'eau ; par exemple, l'acide nitrique (HNO_3) et l'acide sulfurique (H_2SO_4).

Acidité : déterminée par la concentration en protons H^+ présente dans les systèmes et se mesure par son pH.

Acidification : l'acidification est définie comme une perte de la capacité des milieux (i.e. eau, sol) à neutraliser les entrées d'acides aboutissant à une diminution du pH du milieu. Les dépôts acides issues des émissions industrielles ont favorisés ce processus (Baker *et al.*, 1991).

Base : substance pouvant accepter un proton H^+.

Capacité à neutraliser les acides : *acid neutralizing capacity* (ANC) en anglais. Est la mesure de la capacité de l'eau ou du sol à neutraliser les entrées d'acides forts (Driscoll *et al.*, 2001).

Charges critiques : *critical loads* en anglais. « Estimation quantitative d'une exposition à un ou plusieurs polluants sous laquelle ne se produisent pas (en l'état actuel des connaissances) d'effets nocifs sur des éléments sensibles spécifiques de l'environnement » (Nilsson et Grennfelt, 1988).

Dénitrification : processus anaérobie qui réduit les oxydes d'azote, nitrates et nitrites en gaz diazote, oxyde nitrique et oxyde nitreux (Groffman *et al.*, 1999).

Dépassement des charges critiques : *critical loads exceedance* en anglais. Comparaison des dépôts de soufre et d'azote avec leurs charges critiques respectives. Si la charge critique d'un polluant *X* à un endroit donné est inférieure au dépôt de *X* à cet endroit, il est dit que la charge critique est dépassée. La différence est appelée dépassement (UBA, 2004).

Dépôts acides : transfert des acides forts et de substances acidifiantes (telles que le dioxyde de soufre, les oxydes d'azote et l'ammoniac) de l'atmosphère à la surface terrestre (Driscoll *et al.*, 2001; Bobbink *et al.*, 2010).

Eutrophisation : enrichissement en nutriments des écosystèmes, notamment en azote, carbone et phosphore (Falkengren-Grerup *et al.*, 2000)

Humification : transformation des ressources identifiables macromorphologiquement en composés humiques amorphes (Zech *et al.*, 1997).

Minéralisation : processus par lequel l'azote organique contenu dans la matière organique est transformé, par les microorganismes du sol responsables de l'oxydation, en azote inorganique utilisable par les plantes (Robertson *et al.*, 1999).

Nitrification : transformation de l'ammonium en nitrate par les bactéries nitrifiantes qui l'oxydent en nitrite puis en nitrate (Robertson et al., 1999)

pH : défini par -*log* $[H^+]$, où $[H^+]$ est la concentration en protons.

Pollution atmosphérique transfrontière : pollution qui franchit les frontières géographiques.

Pouvoir tampon : également appelée la capacité tampon d'un sol, est la capacité de certains sols de résister à des variations de pH.

Saturation en azote : disponibilité en excès en nitrate et ammonium dans les sols par rapport à la demande nutritionnelle totale des plantes et micro-organismes (Aber *et al.*, 1989).

Substances acidifiantes : qui libèrent des acides telles que le dioxyde de soufre, les oxydes d'azote et l'ammoniac.

1 INTRODUCTION

INTRODUCTION

1.1 Contexte général

1.1.1 Les pollutions d'origine anthropique

L'augmentation de l'acidité et de la disponibilité en azote dans les différents compartiments des écosystèmes est reconnue parmi les changements environnementaux globaux, au même titre que le changement climatique et le changement en l'occupation du sol (Vitousek, 1994). L'acidité et la disponibilité en azote de plusieurs régions dans le monde ont augmenté en raison de la production d'énergie et d'aliments pour soutenir la croissance de la population mondiale (**Fig. 1-1** ; Galloway, 1995; Dentener *et al.*, 2006a). Ces modifications sont liées à l'altération anthropique des cycles naturels du soufre (S) et de l'azote (N) dans les écosystèmes (Vitousek, 1994; de Vries *et al.*, 2007; Galloway *et al.*, 2008; Peñuelas *et al.*, 2012). Ces cycles biogéochimiques ont été, à leur tour, modifiés par la pollution agricole due à l'intensification de l'agriculture ainsi que par l'augmentation des dépôts de soufre et d'azote due à l'émission croissante de gaz polluants d'origine anthropique rejetés dans l'atmosphère (Aardenne *et al.*, 2001; Erisman *et al.*, 2008; Galloway *et al.*, 2008; Bobbink *et al.*, 2010).

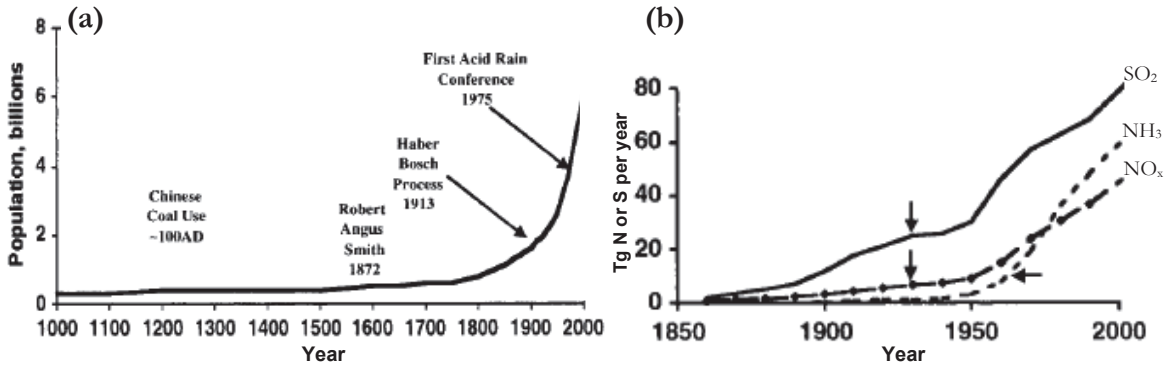


Figure 1-1 Évolutions des **(a)** de la population mondiale entre les années 1000 et 2000 et **(b)** émissions mondiales de NO_x, SO_2 et NH_3 entre les années 1850 et 2000. Des événements ayant marqué le secteur de la lutte contre les pollutions environnementales sont indiqués sur le graphique (a). Les flèches du graphique (b) spécifient, approximativement, l'année à partir de laquelle les émissions d'origine anthropique sont devenues égales puis supérieures aux émissions naturelles terrestres. Tg = 10^{12} grammes (tiré de Galloway, 2001).

L'agriculture intensive est soutenue depuis 1913 par la synthèse artificielle via le procédé Haber-Bosch puis l'augmentation de l'utilisation d'azote réactif (**Fig. 1-1**). L'utilisation mondiale de l'engrais azoté dans le secteur agricole est passée d'une centaine de milliers de kg

d'azote par an à actuellement environ 100 Tg d'azote par an (Erisman *et al.*, 2008). Une grande partie de cet azote agricole est perdue et reste dans l'environnement, entraînant la pollution accrue de l'eau et des sols, ainsi qu'un déséquilibre au sein des gaz à effet de serre, l'augmentation des émissions d'ammoniac et de particules et des dépôts d'azote, dont les effets nocifs aboutissent à la perte de la biodiversité (Erisman *et al.*, 2008; Galloway *et al.*, 2008).

Concernant la pollution atmosphérique, le premier secteur contributeur aux émissions de dioxyde de soufre (SO_2) a été, jusqu'en 2010, la transformation d'énergie comprenant la production d'électricité et le raffinage de pétrole (51% des émissions de la France métropolitaine d'après CITEPA, 2012). Les autres secteurs émetteurs sont l'industrie manufacturière (33%), le secteur résidentiel/tertiaire (11%), les autres transports hors routier (3%), l'agriculture/sylviculture (2%) (CITEPA, 2012). Concernant les rejets de NO_x dans l'atmosphère, le transport routier a été, jusqu'en 2010, le premier secteur émetteur avec 55% des émissions de la France métropolitaine, suivi par l'industrie manufacturière avec 14% des émissions, le secteur résidentiel/tertiaire avec 10% des émissions, et le secteur de l'agriculture/sylviculture avec 9% des émissions (CITEPA, 2012). L'ammoniac (NH_3) qui est une autre source de rejet d'azote dans l'atmosphère, est très majoritairement émis par l'agriculture (97% des émissions en France métropolitaine jusqu'en 2010). Les autres sources d'émissions pour ce composé sont l'industrie manufacturière (2%) et les transports routiers (1%) (CITEPA, 2012).

Les éléments polluants peuvent être transportées sur quelques dizaines à plusieurs milliers de kilomètres (Vitousek, 1994; Bobbink *et al.*, 2010). C'est ainsi que les dépôts acides peuvent provenir de la pollution atmosphérique lointaine et affecter de vastes zones géographiques (Odén, 1976; EMEP, 2011; Sebesta *et al.*, 2011). Les dépôts acides varient à travers l'espace et le temps, et impactent le fonctionnement des écosystèmes terrestres et aquatiques. Ils sont composés des ions, gaz, et particules dérivées des émissions gazeuses de SO_2, NO_x, NH_3, ammonium (NH_4^+) et de composés acidifiants et neutralisants (Reuss et Johnson, 1986). Ils peuvent être déposés sous forme humide (la pluie, la neige, la grêle sont autant de vecteurs des dépôts), sèche (des particules de l'air entrent en contact direct avec la végétation), ou sous forme de nuages ou de brouillards assez communs à haute altitude et près des côtes (Ulrich, 1983a; Driscoll *et al.*, 2001). On estime que 42%, 40% et 32% du NO_x, NH_y et SO_x émis respectivement au niveau mondial au début du 21ème siècle se sont déposés sur la végétation naturelle (Dentener *et al.*, 2006a). Ceci révèle l'importance du transport des polluants

atmosphériques des régions agricoles et industrielles émettrices vers les écosystèmes naturels environnants (Vitousek, 1994; Dentener *et al.*, 2006a).

1.1.2 Contrôle de la pollution atmosphérique et définition de charges critiques

1.1.2.1 Tendances des émissions et dépôts de soufre et d'azote avant et après la mise en place des accords pour contrôler la pollution atmosphérique

Entre 1930 et 1965 les émissions mondiales de soufre et d'azote d'origine anthropique ont dépassé les émissions provenant des processus naturels (**Fig. 1-1b** ; Galloway, 2001). L'augmentation des émissions et des dépôts de SO_x, NO_x et NH_3 identifiée par R.A. Smith en Angleterre au 19ème siècle, apparaît comme un problème écologique à la fin des années 1960 et début des années 1970 (Driscoll *et al.*, 2001). C'est ainsi que la pollution atmosphérique est devenue une préoccupation mondiale et demeure un problème d'actualité. La forte augmentation des émissions de soufre et d'azote et la démonstration de leurs conséquences nocives sur l'environnement et la santé humaine poussent les politiques à signer le « Clean Air Act Amendments » (CAAA) en 1970 aux États Unis ainsi que l'Accord International sur la Pollution Atmosphérique Transfrontière à Longue Distance (CLRTAP) en 1979 à Genève. Ce dernier fut ensuite complété par le Protocole de Göteborg en 1999 visant à réduire l'acidification, l'eutrophisation et l'ozone troposphérique. Ces accords ont été ratifiés pour contrôler et réduire la pollution de l'air en agissant sur les sources des émissions. À partir des années 1990, les mesures mises en place semblent démontrer leur efficacité avec l'amorce d'une baisse des dépôts. Une diminution d'environ 60% et 38% (par rapport aux teneurs maximales) des dépôts de soufre et d'azote est actuellement constatée en Europe (EMEP, 2011). Malgré cette baisse, l'évolution des dépôts azotés apparaît encore instable, présentant même une tendance à la hausse d'après certaines prédictions (Galloway *et al.*, 2004; Dentener *et al.*, 2006a).

En France, l'évolution des émissions de gaz polluants a été étudiée au cours de la période 1960-2010 (Ulrich *et al.*, 1993; CITEPA, 2012). Avant 1950, de faibles émissions de composés acides ont été reportés (Dambrine *et al.*, 1995). A l'instar de ce qui a été observé à l'échelle mondiale, les pollutions atmosphériques se sont intensifiées à partir de 1950. D'après le rapport du Centre Interprofessionnel Technique d'Études de la Pollution Atmosphérique (CITEPA) sur les inventaires d'émissions des substances polluantes dans l'atmosphère, les évolutions des émissions entre 1980 et 2010 sont dans une phase de décroissance caractérisée

par une réduction (i) très forte de SO_x (92%), (ii) importante de NO_x (44%), et (iii) significative de NH_3 (10%). Par rapport aux objectifs fixés dans les divers accords et directives, la France a montré que ses objectifs de réduction d'émissions ont été atteints en 2010, sauf pour le NO_x (CITEPA, 2012). En ce qui concerne les dépôts atmosphériques de soufre et d'azote, leurs pics ont été atteints au cours des années 1970 et 1980, respectivement (**Fig. 1-2**). L'évolution de ces dépôts a suivi la tendance européenne montrant une réduction de leurs niveaux à partir des années 1980 et 1990 d'à peu près 70% et 21% pour le soufre et l'azote, respectivement, en 2010 (EMEP, 2011). Si les dépôts de soufre ont diminué fortement, retournant aux niveaux des dépôts du début du 20ème siècle, ceux d'azote restent encore élevés (**Fig. 1-2**).

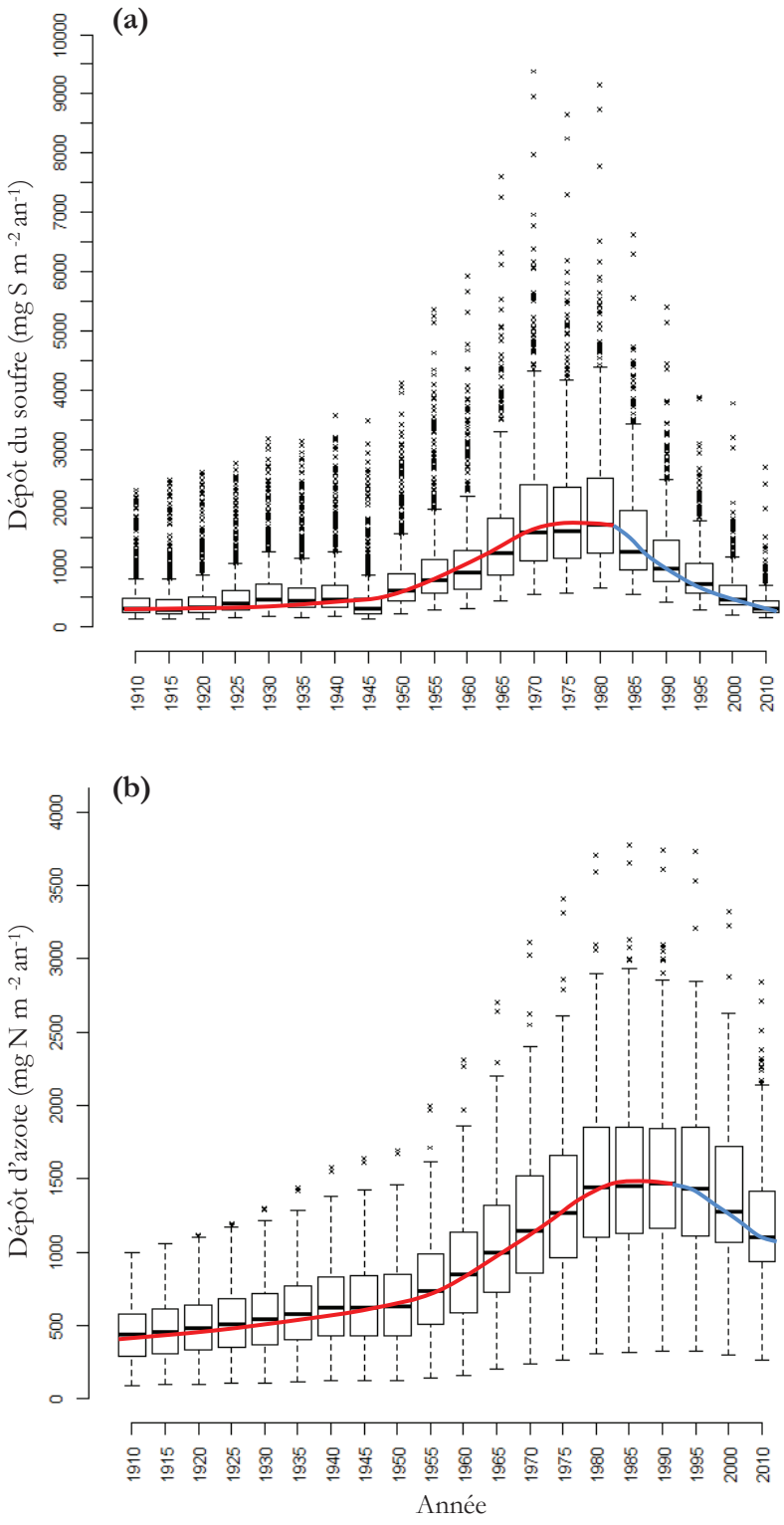


Figure 1-2 Évolution des dépôts **(a)** de soufre et **(b)** d'azote (réduit et oxydé) en France au cours du 20ème siècle et début du 21ème siècle. En rouge, les tendances des dépôts à la hausse atteignent leurs pics au cours des années 1970 et 1980, respectivement, pour le soufre et l'azote. En bleu, les tendances des dépôts à la baisse à partir des années 1980 et 1990, respectivement, pour le soufre et l'azote. Source de données: European Monitoring and Evaluation Programme (données issues de la modélisation, EMEP, 2011).

1.1.2.2 La définition des charges critiques des écosystèmes : une approche pour contrôler la pollution

Les charges critiques représentent un concept trouvant son origine en Scandinavie en 1986 lors d'une réunion du Conseil Nordique et qui a aidé les gouvernements européens à faire des progrès vers la réduction des entrées de soufre et d'azote dans des écosystèmes sensibles (Bobbink *et al.*, 2010). Les charges critiques ou seuils d'effets sont définis comme une estimation quantitative d'une exposition à un ou plusieurs polluants sous laquelle ne se produisent pas d'effets nocifs sur des éléments sensibles de l'environnement (Nilsson et Grennfelt, 1988). La préoccupation concernant les effets à long terme des dépôts élevés d'azote sur la santé humaine, celle des forêts, la qualité de l'eau, ainsi que le besoin d'une appréciation scientifique des niveaux de pollution tolérables pour les êtres humains et les écosystèmes ont conduit à la signature d'un protocole entre les États-Unis et la Communauté Européenne. Le but de ce protocole est de compléter les conventions pour la réduction des émissions atmosphériques déjà existantes et d'établir les charges critiques de soufre et d'azote tolérées par les écosystèmes sensibles (http://www.unece.org). C'est ainsi que le concept de charge critique a été adopté dans le cadre des activités de recherche des pays qui ont signé et ratifié la Convention de Genève (Galsomies et Probst, 2006).

Bien qu'il existe des limites méthodologiques et des incertitudes scientifiques dans les méthodes utilisées pour calculer les charges critiques empiriques, le dépassement de ces valeurs est clairement lié à la vulnérabilité des écosystèmes et des organismes vivants les composant partout dans le monde ainsi qu'à la diminution de la richesse en espèces végétales dans plusieurs écosystèmes (Bouwman *et al.*, 2002; Dentener *et al.*, 2006a; Bobbink *et al.*, 2010). Jusqu'à la fin des années 1990, malgré la réduction des dépôts atmosphériques, les charges critiques en soufre et azote étaient toujours dépassées (Blake *et al.*, 1999). En France, les charges critiques actuelles modélisées de soufre et d'azote en forêt varient avec la qualité des sols : de moins de 200 à plus de 1500 eq ha^{-1} an^{-1} (c.-à-d. de moins de 2.8 à plus de 21 kg ha^{-1} an^{-1}). Les régions des Landes, des Vosges, des Alpes ainsi que quelques zones du Massif Central ont été signalées comme les plus sensibles à l'acidification et à l'eutrophisation (**Fig. 1-3a, b**; Probst et Leguédois, 2008). La quasi totalité du territoire, sauf les régions de Bretagne et du Nord-Pas-de-Calais, n'excède pas le niveau de la charge critique pour le soufre (**Fig. 1-3c**). A l'inverse seules certaines zones au sud-ouest de la France et la vallée de la Rhône ont été signalées sans dépassement de la charge critique pour l'azote (**Fig. 1-3d**) (données issues de la modélisation, Hettelingh *et al.*, 2008).

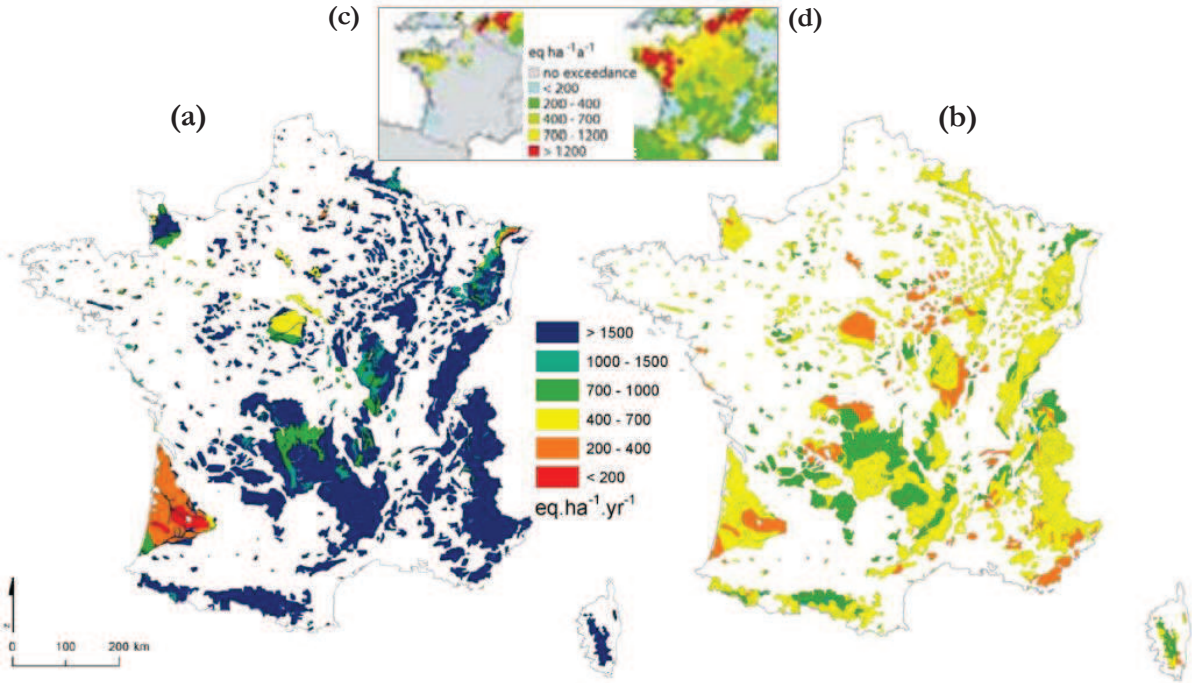


Figure 1-3 Cartes des charges critiques **(a)** du souffre et **(b)** d'azote issues de la modélisation à l'échelle du territoire français métropolitain (tiré de Probst et Leguédois, 2008). L'encadré en haut montre les zones à risque **(c)** sur le plan de l'acidification dues aux dépassements des charges critiques pour le soufre, et **(d)** sur le plan de l'eutrophisation dues aux dépassements des charges critiques pour l'azote, en fonction des dépôts modélisés pour l'année 2010 (tiré de Hettelingh *et al.*, 2008).

1.2 Effets de la pollution atmosphérique d'origine anthropique sur les sols et la végétation

Les pluies acides, l'acidification des sols et des eaux douces ressenties en Europe, principalement en Scandinavie, et aux États-Unis (Odén, 1976; Tamm, 1976; van Breemen *et al.*, 1982; Evans, 1984; Oppenheimer *et al.*, 1985; Driscoll *et al.*, 2001) ainsi que la saturation en azote des écosystèmes, principalement observée aux États-Unis (Aber *et al.*, 1989; Aber *et al.*, 1998), sont le résultat de la pollution atmosphérique. Des remaniements des communautés végétales ont été aussi constatés à cause des dépôts atmosphériques acidifiants (Falkengren-Grerup, 1986; McGovern *et al.*, 2011). L'impact des dépôts acidifiants et eutrophisants sur les sols et la composition d'espèces dans les écosystèmes est devenu une préoccupation majeure à la fin des années 1960 et début des 1970 (Reuss et Johnson, 1986; Aber *et al.*, 1998; Driscoll *et al.*, 2001; Galloway, 2001; Bobbink *et al.*, 2010).

En fonction des caractéristiques intrinsèques des différents écosystèmes (tels que les tourbières, les marais, les prairies, les landes, les forêts), les dépôts atmosphériques peuvent

représenter une menace à impact variable (Bobbink *et al.*, 1998). Les prairies, les zones humides et les forêts à caractère acide et faiblement tamponnées des zones tempérées sont reconnues comme les écosystèmes les plus sensibles aux effets acidifiants et eutrophisants de la pollution atmosphérique.

1.2.1 L'acidification

Tant le soufre que l'azote sont porteurs d'acidité (Dentener *et al.*, 2006a). Cette dernière est déterminée par la concentration en protons hydrogène (H^+) présente dans les systèmes, réagissant avec des substances contenues dans l'eau et le sol via la solubilisation de métaux, dissociation des acides organiques et aussi intervenant dans le fonctionnement biologique de nombreux organismes (Le Gall, 2004). L'acidité se mesure à l'aide de l'échelle des pH. Le pH du sol est un facteur déterminant de la structure et du fonctionnement des écosystèmes, et tout changement de pH peut avoir des effets significatifs sur ceux-ci (Kirk *et al.*, 2010). À partir d'un certain seuil d'acidité, un milieu a tendance à devenir oxydant et moins propice au développement d'organismes vivants (Le Gall, 2004).

1.2.1.1 Impacts de l'acidification sur les sols

La majorité des sols sont naturellement acides du fait de la nature de la roche (les roches siliceuses ont tendance à produire des sols acides) ainsi que de la production et de la décomposition de la matière organique. Les activités humaines ont contribué à rendre les sols encore plus acides (Galloway, 2001). La gestion forestière, par la fertilisation ou le prélèvement des rémanents modifient l'équilibre nutritionnel des sols forestiers (Tamm, 1976; Ulrich et Matzner, 1986; Blanco *et al.*, 2012). À plus large échelle, la récente acidification d'origine anthropique, survenue depuis le début des émissions industrielles il y a plus de 100 ans, a largement renforcé la perte de la capacité des sols à neutraliser des acides (Baker *et al.*, 1991). Les dépôts de soufre et d'azote participent à l'acidification des sols (**Fig. 1-4**). Leurs impacts sur la chimie des solutions du sol se manifestent principalement par une baisse du pH, une augmentation des concentrations de Al^{3+} , SO_4 et NO_3 (de Vries *et al.*, 1995), ainsi que par le lessivage des cations basiques : potassium [K], magnésium [Mg] et calcium [Ca] (Ulrich, 1983b; Reuss et Johnson, 1986; Aber *et al.*, 1989). Les changements du pH du sol et du contenu de cations basiques peuvent varier selon les sites, du fait de la teneur en matière organique, du pH initial et du pouvoir tampon potentiel du sol (Ulrich, 1983a; Bobbink *et al.*, 1998; Phoenix *et al.*, 2012). Les sols à faible concentration en carbonates (i.e. des sols acides) sont notamment

plus sensibles à des chutes plus importantes de pH que ceux riches en carbonates. De même, l'acidification du sol peut varier suivant la profondeur du sol considérée et en fonction de la forme chimique des dépôts de soufre ou d'azote (Blake *et al.*, 1999; De Schrijver *et al.*, 2006; Benham *et al.*, 2012).

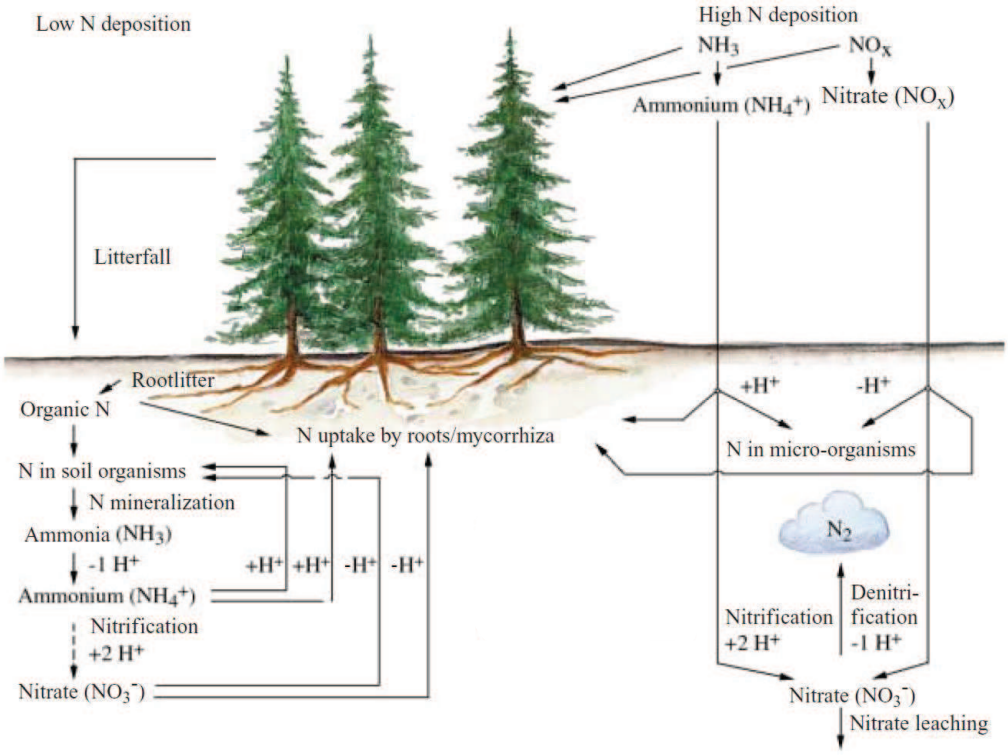


Figure 1-4 Effets du cycle de l'azote sur l'acidification du sol pour des niveaux bas et élevés des dépôts azotés. « +1 H^+ » signifie qu'une unité d'ions hydrogène est libérée et « –1 H^+ » signifie qu'une unité d'ions hydrogène est consommée par unité d'azote transformée. Chaque unité d'azote absorbée par les racines des plantes et stockée dans la biomasse de la plante est accompagnée par l'absorption de cations basiques contribuant également à l'acidification du sol. Le bilan de ce système à l'échelle de l'écosystème forestier révèle que la nitrification de l'ion ammonium issue des dépôts azotés ou de la minéralisation de la matière organique, favorise l'acidification des sols, tandis que la transformation des nitrates (e.g. par dénitrification) contrebalance l'acidification. Notons que le système a tendance à s'acidifier que ce soit sous l'effet des entrées naturelles ou anthropiques d'azote (tiré de Näsholm et Persson, 2000).

Les changements des sols causés par la pollution atmosphérique ont été identifiées soit via l'utilisation directe des mesures du pH comme indicateur d'acidité (Johnston *et al.*, 1986; Blake *et al.*, 1999; De Schrijver *et al.*, 2006; Kirk *et al.*, 2010) soit à travers la flore et son caractère bio-indicateur (Thimonier *et al.*, 1994; Diekmann et Dupré, 1997)(voir partie 1.2.4.2). Des études basées sur des échantillons de sols et leurs mesures de pH ont montré une acidification des

sols au cours du temps (Falkengren-Grerup, 1986; Johnston *et al.*, 1986; Blake *et al.*, 1999). Des changements de pH variant entre -0.1 et -0.8 unités de pH ont été signalés dans des zones spécifiques, généralement très locales, au sud de la Suède, dans le massif des Carpates, et en Chine, sur des périodes couvrant entre 20 et 60 ans (Falkengren-Grerup, 1989; Sebesta *et al.*, 2011; Yang *et al.*, 2012). Exceptionnellement, la station expérimentale Rothamsted (en Angleterre) possède des échantillons et mesures des sols depuis 1883. Celles-ci ont montré que l'apport de dépôts atmosphériques acidifiants serait passé de 30% à la fin du 19ème siècle à 80% vers les années 1980 (Johnston *et al.*, 1986; Blake *et al.*, 1999). Une tel accroissement a entraîné une sévère acidification des sols, de l'ordre de -2.5 et -1.0 unités du pH en forêts et prairies, respectivement (Blake *et al.*, 1999). Au Nord de la Chine une acidification des écosystèmes de prairies calcaires a été observée sur la période 1980-2000, avec une diminution moyenne du pH de -0.63 unités de pH (Yang *et al.*, 2012). De plus, un gradient décroissant d'acidification le long du profil de sol a été signalé dans différentes études, c.-à-d. que la baisse du pH dans l'horizon organo-mineral A a été plus forte que dans les horizons les plus profonds (Blake *et al.*, 1999; De Schrijver *et al.*, 2006; Hédl *et al.*, 2011). Ce gradient décroissant d'acidification est très certainement la conséquence du processus aérobie de nitrification de l'ammonium qui stimule l'acidification dans les horizons supérieurs du sol (De Schrijver *et al.*, 2006). Il démontre aussi que les dépôts d'azote sont sans doute à l'heure actuelle l'agent principal d'acidification (Dirnböck *et al.*, 2007).

1.2.1.2 Impacts de l'acidification sur la végétation

Les communautés végétales naturelles sont des entités écologiques composées de plusieurs espèces, chacune possédant des caractéristiques physiologiques et des exigences légèrement différentes (Chapin III *et al.*, 1987) sur le plan des conditions thermiques, nutritionnelles, et de la disponibilité d'eau, principalement (e.g. Chapin III *et al.*, 1987; Bertrand et Marage, 2012). L'acidité du sol joue un rôle clé dans la répartition des espèces dans les forêts tempérées (Falkengren-Grerup *et al.*, 1995). L'exposition prolongée aux dépôts acides a entraîné des dégâts dans les forêts, signalés dès les années 1970 (Tamm, 1976), et une modification de la composition de la végétation (Hédl, 2004; Sebesta *et al.*, 2011). Pour évaluer l'impact des dépôts atmosphériques, les réponses d'espèces de bryophytes (Zechmeister *et al.*, 2007), de lichens (Tamm, 1976; Power *et al.*, 2006), et d'herbacées (Nordin *et al.*, 2005; van Dobben et de Vries, 2010) ont été étudiées car elles sont considérées comme les espèces les plus sensibles aux polluants atmosphériques (Falkengren-Grerup *et al.*, 2000; Gilliam, 2007;

Phoenix *et al.*, 2012). Certaines espèces à tendances acidiphiles telles que *Galeopsis tetrahit* et *Dryopteris carthusiana* ont été signalées comme plus fréquentes dans certaines régions forestières (Thimonier *et al.*, 1992; Diekmann et Dupré, 1997), tandis que les espèces typiques de pH intermédiaire telles que *Polygonatum multiflorum* et *Galium sylvaticum* sont moins fréquentes d'après des travaux ayant étudié l'incidence des dépôts atmosphériques sur la strate herbacée (Falkengren-Grerup, 1986; Thimonier *et al.*, 1992; Thimonier *et al.*, 1994). Les effets de la pollution transfrontière sur des écosystèmes naturels éloignés des sources directes de pollution ont été observés. Dans les Carpates orientales, des dépôts de 10 et 5.6 kg ha^{-1} an^{-1} de soufre et d'azote, respectivement, ont été relevés en 2008. Ceux-ci étaient certainement plus élevés dans les années 1980 provoquant l'acidification des sols et en réponse à celle-ci une augmentation de la fréquence de taxons acidophiles (Sebesta *et al.*, 2011).

Les dépôts acides entraîneraient également des dommages sur les systèmes racinaires à cause de l'aluminium (Oulehle *et al.*, 2010), ainsi que la défoliation, la décoloration de feuilles (jaunissement), la diminution de la croissance, et le dépérissement des arbres en forêt (Tamm, 1976; Sverdrup et Warfvinge, 1993; Landmann et Bonneau, 1995). De plus, la forte augmentation des concentrations de NH_4^+ (eutrophisation) couplée à une baisse du pH (acidification) pourrait agir sur la performance des espèces (Van Den Berg *et al.*, 2005) ainsi que sur la diversité de celles-ci, en spécialisant et appauvrissant la richesse spécifique des communautés (Stevens *et al.*, 2006).

1.2.2 L'eutrophisation

À partir des années 1980, les dépôts atmosphériques d'azote ont pris le pas sur les dépôts de soufre sur le plan des préoccupations environnementales (Aber *et al.*, 1989; Persson, 2000). Ces dépôts ont eu pour effet d'enrichir en nutriments azotés les écosystèmes (Falkengren-Grerup *et al.*, 2000), processus nommé eutrophisation. Si l'on se réfère au fonctionnement des écosystèmes et au cycle de l'azote, cet enrichissement aboutit à la saturation en azote lorsque la disponibilité en ammonium et nitrate excède la demande nutritionnelle totale des plantes et micro-organismes (Aber *et al.*, 1989; Aber *et al.*, 1998). Au cours du temps, l'azote a donc pu s'accumuler dans les écosystèmes de telle sorte que même des taux relativement faibles de dépôts d'azote peuvent entraîner des réponses écologiques (Phoenix *et al.*, 2012).

1.2.2.1 Impacts de l'eutrophisation sur les sols

Étant donné que les roches à l'origine de la formation des sols ne contiennent pas d'azote, l'apport de ce dernier est principalement d'origine biologique (par fixation microbienne du N_2 de l'air (Smith *et al.*, 1999), ainsi que par décomposition de la matière organique et minéralisation, nitrification, et humification (Ulrich et Matzner, 1986; Andrianarisoa, 2009). Ces transformations dans les sols fournissent une quantité d'azote disponible pour couvrir les besoins des arbres et autres plantes via leurs systèmes radiculaires. À cause de la pollution atmosphérique, l'apport d'azote est plutôt d'origine atmosphérique. Les sols sont capables de retenir l'azote, ce qui constitue un service écosystémique important, limitant la pollution des écosystèmes aquatiques et des eaux souterraines (Aber *et al.*, 1993; Phoenix *et al.*, 2012). Ce stockage peut être plus élevé si l'apport en ammonium excède celui en nitrate (Aber *et al.*, 1998).

La capacité des sols forestiers en milieu tempéré à accumuler les dépôts d'azote est toutefois limitée (Aber *et al.*, 1989). La réponse de cet écosystème soumis à une saturation croissante en azote sous l'effet des dépôts atmosphériques chroniques se traduit par des étapes progressives : (i) une diminution de l'immobilisation du NO_3 par les micro-organismes du sol et un début de lessivage de ce composé, (ii) puis une production accrue de NH_4^+ et (iii) enfin une augmentation de la nitrification nette (**Fig. 1-5**, Aber *et al.*, 1989; Aber *et al.*, 1998; Emmett, 2007). La nitrification dans un peuplement saturé en azote peut être traduite par une concentration élevée en nitrates et sa perte par lessivage (Aber *et al.*, 1989; Andrianarisoa, 2009). Il est reconnu que l'augmentation du lessivage des cations des sols et des nitrates mènerait à la réduction de la fertilité du sol et à une augmentation de l'acidité (Reuss et Johnson, 1986; Aber *et al.*, 1989). Certaines régions de la Suède sont considérées comme proches de la saturation après avoir reçu des charges azotées moyennes à élevées au cours des dernières décennies (Akselsson *et al.*, 2010). De même, une étude a révélé que des forêts d'*Abies alba* du massif vosgien (nord-est de la France) ont connu une saturation en azote due aux dépôts azotés élevés à partir des années 1970 (Pinto *et al.*, 2007). Cela implique, par ailleurs, que d'autres ressources essentielles, telles que l'eau ou le phosphore, deviendront limitant pour la croissance des plantes et des micro-organismes (Aber *et al.*, 1989; Peñuelas *et al.*, 2012), et donc, une disparition du contrôle de l'azote sur la croissance des forêts cédant la place à d'autres facteurs limitant tels que la toxicité aluminique des sols et le climat (Pinto *et al.*, 2007). Le changement le plus important par rapport à un écosystème saturé en azote se situe

au niveau de son fonctionnement, il ne s'agira plus d'un puits d'azote mais plutôt d'une source nette de cet élément (Aber *et al.*, 1989).

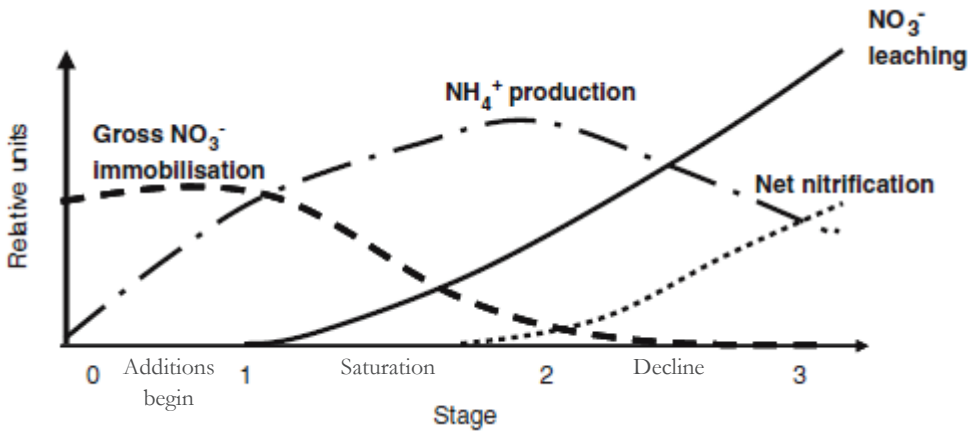


Figure 1-5 Évolution hypothétique des changements des principaux processus du cycle de l'azote en réponse à l'accumulation chronique d'azote dans les écosystèmes forestiers (décrit initialement par Aber *et al.* (1989), et revisité par Emmett 2007). Les variations relatives sont indiquées pour l'immobilisation microbienne brute du nitrate, la production d'ammonium, la nitrification nette, et lessivage des nitrates (tiré de Emmett, 2007).

La disponibilité en azote est souvent mesurée par différents paramètres biogéochimiques tels que le rapport carbone organique sur azote total du sol (C:N), le taux de nitrification, le rapport NH_4^+:NO_3^- (Aber *et al.*, 1989; Emmett, 2007; Andrianarisoa *et al.*, 2009). Elle est aussi indirectement déterminée par des indicateurs des besoins nutritionnels des plantes (valeur indicatrice N, Ellenberg *et al.*, 1992; valeurs indicatrices du C:N, Gégout *et al.*, 2005). Le rapport C:N du sol est considéré comme un indicateur de la quantité d'azote minéral qui est disponible pour l'absorption et le lessivage (Gundersen *et al.*, 1998; Emmett, 2007; Nave *et al.*, 2009), ainsi que comme un paramètre important des modèles de la chimie du sol (Emmett, 2007). De plus, il montre une bonne corrélation avec le pourcentage de nitrification (Andrianarisoa *et al.*, 2009), et est une variable qui fournit des informations sur l'évolution relative de stockage de carbone et d'azote dans les sols (Nave *et al.*, 2009; Emmett *et al.*, 2010). D'après Andrianarisoa *et al.* (2009), le C:N du sol est fortement lié à la composition des communautés végétales. Par conséquent, le rapport C:N reflète les conditions du climat, la productivité et la composition des espèces (Adams *et al.*, 2004). En revanche, le C:N du sol a été aussi signalé comme un mauvais indicateur de la disponibilité accrue en azote qui entraîne des changements dans la richesse et/ou composition d'espèces (Stevens *et al.*, 2004; Emmett *et al.*, 2010), et du taux de dépôt atmosphérique (Stevens *et al.*, 2011b). Ces déficiences sont probablement dus au retard dans les changements du C:N du sol au fur et à mesure que les

dépôts d'azote augmentent (Emmett, 2007), et/ou à la variabilité du contenu en matière organique des sols (Stevens *et al.*, 2004).

1.2.2.2 Impacts de l'eutrophisation sur la végétation

L'azote est un nutriment dont les plantes ont besoin en grande quantité, et dans de nombreux écosystèmes, tels que les forêts tempérées, sa disponibilité est normalement un facteur limitant pour la production végétale (Tamm, 1991; Högberg *et al.*, 2000). C'est à cause de la disponibilité accrue en azote durant les dernières décennies que les espèces résidentes adaptées à une sévère limitation de ce nutriment ont été remplacées par d'autres qui sont plus compétitives face à la haute disponibilité en azote (Bertills et Näsholm, 2000). Ainsi, comme l'ont signalé différentes études, les communautés végétales d'Europe et d'Amérique du Nord ont pu être remaniées vers des communautés typiques de conditions à haute disponibilité en azote (Thimonier *et al.*, 1994; McNulty *et al.*, 1996; Bobbink *et al.*, 1998). Des espèces à caractère nitrophile telles que *Rubus idaeus*, *Epilobium angustifolium*, *Urtica dioica*, ont tendance à être plus fréquentes dans les forêts européennes, ainsi que d'autres un peu moins exigeantes au niveau nutritionnel que les trois premières telles que *Lamium galeobdolon* et *Geum urbanum*, comme l'ont montré des études en Allemagne, au Pays Bas, en Suède, Écosse, France, et Ukraine (Falkengren-Grerup, 1986; Thimonier *et al.*, 1992; Diekmann et Dupré, 1997; Pitcairn *et al.*, 1998; Sebesta *et al.*, 2011). Les seuils d'effet pour les dépôts azotés varient entre 5 et 15 kg ha^{-1} an^{-1} dans les prairies et entre 7 et 20 kg ha^{-1} an^{-1} dans les forêts. Même dans les écosystèmes où les dépôts azotés ont été historiquement faibles (5-10 kg N ha^{-1} an^{-1}), comme en Europe du Nord, leur augmentation au fils du temps a entraîné des changements dans la diversité végétale, ainsi que dans le fonctionnement des écosystèmes (Brunet *et al.*, 1998; Falkengren-Grerup *et al.*, 2000; Akselsson *et al.*, 2010; Bobbink *et al.*, 2010; Stevens *et al.*, 2010). Le fort déclin de richesse spécifique en lichens et bryophytes causé par de faibles doses cumulées d'azote conforte l'hypothèse que des changements importants de composition en espèces peuvent se produire dès le début de la séquence de saturation en azote (Emmett, 2007; Bobbink *et al.*, 2010; Phoenix *et al.*, 2012). Stevens *et al.* (2004) ont estimé la disparition d'une espèce par quadrat (de 4 m^2) tous les 2.5 kg N ha^{-1} an^{-1} de dépôts d'azote dans des prairies acides de Grande Bretagne. De plus, l'appauvrissement en espèces des communautés végétales à long terme, voire l'extinction des espèces locales (McClean *et al.*, 2011; Bahr *et al.*, 2012), l'homogénéisation des communautés (Hülber *et al.*, 2008; Keith *et al.*, 2009), et une augmentation de la sensibilité aux stress abiotiques et biotiques tels que le gel, la sécheresse et

les infestations d'insectes ou parasites (Krupa, 2003; Strengbom *et al.*, 2003; Bobbink *et al.*, 2010) ont été aussi mis en évidence comme des conséquences vraisemblables d'une disponibilité accrue en nutriments. Cette diminution de la diversité des espèces végétales dans les forêts tempérées des États-Unis et d'Europe due aux dépôts atmosphériques d'azote est cohérente avec l'hypothèse d'homogénéité en azote (en anglais *nitrogen homogeneity hypothesis*) de Gilliam (2006). Celle-ci prédit une perte de la biodiversité de la végétation de sous-bois dans les écosystèmes forestiers qui ont subi une augmentation chronique de dépôts azotés due à une diminution de la haute hétérogénéité spatiale naturelle de la disponibilité en azote dans le sol. Cette dernière contribue au maintien de la haute diversité des espèces de sous-bois (Gilliam, 2006). De même, la couverture des espèces de sous-bois peuvent être affectées par des taux de charges d'azote relativement bas (5- 10 kg N ha^{-1} an^{-1}, ou encore 3-5 kg N ha^{-1} an^{-1}) si les apports d'azote se poursuivent pendant assez longtemps (Bobbink *et al.*, 2010; Phoenix *et al.*, 2012). A l'inverse, les sites qui ont historiquement subi l'addition de charge azotée à des taux élevés (c.-à-d. ~20 kg N ha^{-1} an^{-1}) peuvent déjà avoir perdu leurs espèces les plus sensibles et apparaissent de ce fait moins sensibles aux apports actuels d'azote (Gilliam, 2006; Emmett, 2007; Phoenix *et al.*, 2012). La réduction des dépôts d'azote à partir des années 1990 n'a encore pas permis d'observer un recouvrement de l'effet de l'eutrophisation sur les écosystèmes, le niveau d'azote restant encore élevé (Nordin *et al.*, 2005; Vanguelova *et al.*, 2010; Pihl Karlsson *et al.*, 2011).

1.2.3 L'acidification et l'eutrophisation en France : leurs impacts sur les écosystèmes forestiers

Alors que de nombreuses études réalisées dans la région nord-est de la France indiquent que les dépôts acides ont profondément modifié les propriétés chimiques des sols, des eaux, le cycle des éléments nutritifs, et la dynamique de la végétation dans les écosystèmes forestiers (e.g. Thimonier *et al.*, 1992; Dambrine *et al.*, 1995; Landmann et Bonneau, 1995; Probst *et al.*, 1999; van der Heijden *et al.*, 2011), peu d'informations sont disponibles sur le reste du territoire (Landmann, 1995). Les études réalisées sur le massif vosgien ont montré que l'acidité des sols et des cours d'eau des bassins granitiques à faible contenu en bases a augmenté, tandis que les réserves en cations basiques ont diminué, acidifiant ainsi les écosystèmes sous l'effet des dépôts atmosphériques principalement (Probst *et al.*, 1992; Dambrine *et al.*, 1998). Une diminution du pH des sols déjà acides (Δ moyenne = -0.07 unités du pH), un stockage d'azote dans l'horizon supérieur du sol et une diminution du rapport C:N

ont aussi été observés (Probst *et al.*, 1999). Thimonier *et al.* (2000) ont également montré d'importantes pertes en Ca, Mg, K échangeables sur une période de 20 ans dans des peuplements de feuillus du nord-est de la France. Les changements d'acidité des sols forestiers ont été eux aussi étudiés à partir de la flore sur une période de 20 ans et des analyses diachroniques qui portent sur quatre massifs forestiers du nord-est de la France (**Table 1-1**). Pour pallier au manque (au moins partiellement) d'observations dans les autres régions françaises, l'approche modélisatrice a été utilisée (Party *et al.*, 2001; Probst et Leguédois, 2008). La modélisation des charges critiques ou des dépôts atmosphériques, a permis de souligner l'effet probable des pollutions pour plusieurs régions de France : les Ardennes, l'Alsace, la Moselle, l'est du Massif Central, les Landes, le sud-ouest de l'Ile de France, la Bretagne, la Normandie, le rebord ouest du Massif Central, les Pyrénées (Croisé *et al.*, 2005; Probst et Leguédois, 2008). Moncoulon *et al.* (2007) ont montré, par l'utilisation du modèle dynamique *'Soil Acidification in Forest Ecosystems*–SAFE' (Warfvinge *et al.*, 1993), que les charges critiques acides ont été dépassées à plusieurs reprises entre 1880 et 2010 dans le bassin parisien, les Vosges et les Landes.

L'eutrophisation, agissant simultanément avec l'acidification dans certains cas, est considérée comme le facteur « moteur » des changements de végétation et de l'état nutritionnel des forêts en France (Thimonier *et al.*, 1992; Thimonier *et al.*, 1994). Une augmentation de la fréquence des plantes ayant des exigences élevées en nutriments a été observée sur la période 1970-1990. Il a été aussi observé la régression d'espèces peu exigeantes en azote comme *Hypericum pulcrum, Veronica officinalis, Deschampsia flexuosa, Calluna vulgaris* (Thimonier, 1994). Parmi les espèces dont la fréquence a augmenté, Andrianarisoa *et al.* (2009) ont montré que certaines indiquaient un pourcentage de nitrification élevé (*Fissidens taxifolius*, *Circaea lutetiana*, *Potentilla sterilis*, *Stachys sylvatica*, *Scrophularia nodosa*, *Ajuga reptans*, *Brachypodium sylvaticum*, *Carex flacca*, *Geum urbanum*, *Ranunculus ficaria*) alors que d'autres traduisaient une minéralisation potentielle nette d'azote élevée (*Carex pilulifera*, *Sambucus racemosa* et *Rubus ideaus*). Ces résultats confirment l'eutrophisation des hêtraies du nord-est de la France. Les changements de composition d'espèces et l'érosion de la biodiversité observés seraient aussi en partie liés à la gestion forestière (Thimonier *et al.*, 1992; Decocq *et al.*, 2005; Van Calster *et al.*, 2008).

Table 1-1 Description des massifs forestiers français où les phénomènes d'acidification et/ou eutrophisation en conséquence des dépôts atmosphériques ont été étudiés à partir des communautés végétales.

Massif forestier	Localisation	Dates d'échantillonnage	*n*	Surface (ha)	Type de données	Étude
Forêt d'Amance	À l'est de Nancy	1971, 1990	221	1000	- Relevés floristiques - Échantillons de sol (horizon A) - Mesure du pH du sol	Thimonier *et al.*, 1992
Villey-Le-Sec	À l'ouest de Nancy	1972, 1991	47	350	- Relevés floristiques - Échantillons de sol (horizon A), uniquement en 1991 - Mesure du pH du sol, uniquement en 1991	Thimonier *et al.*, 1994
Forêts sur Rhétien	Entre Mirecourt et Lamarche	1969, 1992	53	10 000	- Relevés floristiques - Échantillons de sol - Mesure des paramètres du sol: pH, teneur en N, C, Ca, Mg, K, CEC, uniquement en 1992	Thimonier, 1994
Hêtraies du nord-est *	Départements de Meuse, Haute Marne, Côte d'Or, Meurthe-et-Moselle, Vosges, Bas-Rhin	1970, 1991	100	-	- Relevés floristiques - Échantillons de sol (horizon A1) - Mesure des paramètres du sol: pH, teneur en N, C, Ca, Mg, K, CEC.	Thimonier *et al.*, 2000
Thiérache	Au nord-est du département d'Aisne	Entre 1839 et 1958, 2005	-	167300	- Relevés floristiques	Van Calster *et al.*, 2008

n = nombre cumulé de placettes échantillonnées sur les deux campagnes de terrain.

* Les hêtraies du nord-est ont été subdivisées en: hêtraies de l'Argonne, des plateaux calcaires, du plateau lorrain, des collines sous-vosgiennes et des Basses-Vosges sur grès triasique, de moyenne altitude (entre 500 et 900 m d'altitude) sur le socle rocheux cristallin, et sommitales des Vosges (entre 900 et 1250 m d'altitude) sur le socle rocheux cristallin des Hautes-Vosges.

1.2.4 Le suivi des phénomènes d'acidification et d'eutrophisation

1.2.4.1 À travers des réseaux de surveillance

Le suivi à long terme des mécanismes qui affectent la santé des écosystèmes, comme la pollution atmosphérique, est particulièrement difficile à cause de la quantité limitée des données disponibles comprenant des mesures physico-chimiques du sol (Dengler *et al.*, 2011). À ma connaissance, les sites de mesure *'Park Grass Experiment'* et '*Geescroft Wilderness'* au sein de la station expérimentale Rothamsted, au sud-est de l'Angleterre, sont les plus anciens d'Europe. Ils ont été respectivement mis en place en 1856 et 1883 (http://www.rothamsted.ac.uk/). Aux États-Unis, la forêt expérimentale Hubbard Brook a été mise en place en 1955 à l'Est du pays (http://www.hubbardbrook.org). En Scandinavie et Grande-Bretagne, des réseaux de plus de 60 et 17 stations de mesures ont respectivement vu le jour vers la fin des années 1950. Leurs objectifs (entre autre) sont les mesures de la chimie des sols et des pluies, ainsi que la modélisation de la distribution spatiale de l'acidité des précipitations et des dépôts atmosphériques et la caractérisation de ses possibles effets dans les composants de l'environnement : eaux, sols, végétation (Barrett et Brodin, 1955; vu en Mészáros, 1981). En Grande-Bretagne, le réseau '*Countryside Survey*' est composé d'environ 600 sites couvrant l'ensemble du territoire à une résolution d'1 km² (http://www.countrysidesurvey.org.uk/home). Des campagnes d'échantillonnage ont été effectuées à des intervalles de temps réguliers depuis 1978. Jusqu'à présent cinq campagnes ont été effectuées : 1978, 1984, 1990, 1997, 2007. Le '*Countryside Survey*' fournit des données de suivi de l'état ou la «santé» des écosystèmes semi-naturels de Grande-Bretagne au cours du temps incluant des analyses de sols réalisées en laboratoire et des inventaires de végétation. Dans le cas de la France, aucun des réseaux existants n'est réellement apte à remonter de longs pas de temps et donc à détecter des changements historiques au sein des écosystèmes car ils ont été mis en place assez tardivement. Le réseau de surveillance de la chimie des précipitations et des dépôts humides et totaux MERA (MEsure des Retombées Atmosphériques) a démarré en 1990 avec 13 stations réparties en milieu rural sur le territoire national (**Fig. 1-6a**; Ulrich *et al.*, 1993). Le réseau RENECOFOR (REseau National de suivi à long terme des ECOsystèmes FORestiers) a été mis en place en 1992, avec pour objectif principal d'analyser l'impact des dépôts atmosphériques sur les écosystèmes forestiers. Des mesures des dépôts atmosphériques hors couvert et sous couvert forestier sont collectées dans 26 stations reparties sur l'ensemble de la France, dans son sous-réseau CATAENAT (Charge

Acide Totale d'origine Atmosphérique sur les Ecosystèmes NAturels Terrestres) (**Fig. 1-6b**; Ulrich *et al.*, 1993). Il existe aussi le réseau 16 x 16 km ou Réseau européen de niveau 1 couvrant tous les pays européens dont la France, et qui a été mis en place en 1989 par le Programme International d'évaluation et de suivi des effets de la pollution atmosphérique en forêt (ICP-Forests) (**Fig. 1-6c**; Badeau et Landmann, 1996). Malgré le peu de recul dont ils disposent, ces réseaux de surveillance sont intéressants car ils permettent le suivi des conditions environnementales (e.g. atmosphériques et édaphiques) à partir de placettes permanentes, et sont donc très utiles pour en déduire des évolutions temporelles (Bussotti et Ferretti, 1998). Même si leurs stations sont bien réparties sur le territoire français métropolitain (**Fig. 1-6**), ils ne sont pas représentatifs de la diversité des milieux. Pour le territoire français l'information est donc devenue disponible seulement vers la fin des années 1980, date à laquelle les dépôts de soufre avaient déjà commencé à diminuer (**Fig. 1-2**; EMEP, 2011) en réponse aux accords et actions de prévention et de limitation des émissions des gaz polluants de la Convention de Genève de 1979.

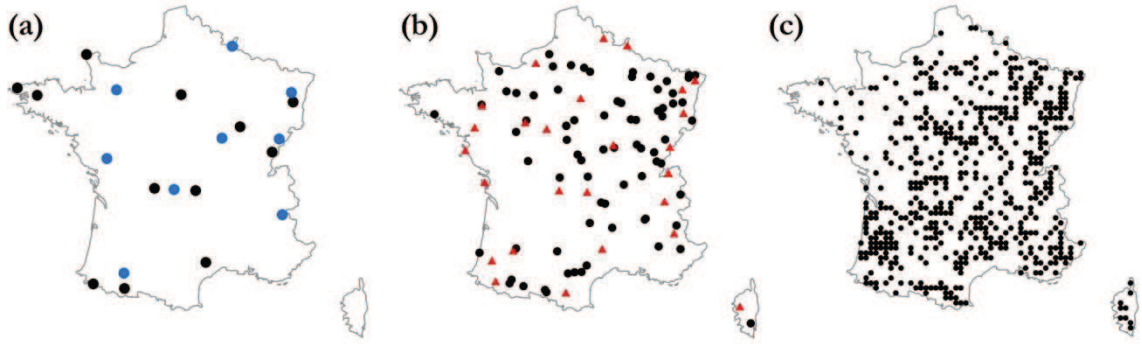


Figure 1-6 Réseaux de surveillance mis en place en France : **(a)** réseau MERA à partir de 1990 (n = 21 placettes totales dont 9 placettes seulement opèrent encore aujourd'hui (cercles bleus)), **(b)** réseau RENECOFOR à partir de 1992 (n = 102 placettes totales dont 26 placettes (triangles rouges) forment le sous-réseau CATAENAT), et **(c)** réseau 16 x 16 km à partir de 1989 (n = 542 placettes).

1.2.4.2 À partir de la flore

1.2.4.2.1 L'utilisation de la bio-indication

D'après le concept de la niche écologique, les conditions environnementales sont connues pour déterminer, au moins en partie (d'autres facteurs y contribuent tel que la dispersion, la fragmentation spatiale de l'habitat, les interactions biotiques, et la gestion

humaine notamment ; e.g. Marage *et al.* (2008), Normand *et al.* (2011), Bertrand (2012), Meier *et al.* (2012), Wisz *et al.* (2013)) la distribution géographique des espèces et leur assemblages dans les communautés (Hutchinson, 1957; Chase et Leibold, 2003; Bertrand et Marage, 2012). C'est sur cette base de déterminisme environnemental des espèces que la bio-indication a été développée (e.g. Diekmann, 2003). Ainsi, des valeurs indicatrices d'espèces ont été estimées à dire d'expert (Landolt, 1977; Ellenberg *et al.*, 1992) ou calculées en modélisant leur niche écologique (Braak et Dame, 1989; ter Braak *et al.*, 1993; Gégout *et al.*, 2003). Celles-ci sont déclinées pour chaque espèce et correspondent aux valeurs d'un gradient environnemental reflétant la préférence de chaque espèce vis-à-vis de ce gradient. Elles permettent notamment de reconstruire ou estimer les conditions environnementales locales en calculant par exemple la moyenne des valeurs indicatrices d'une communauté d'espèces observées sur une placette (Diekmann, 2003). Les valeurs indicatrices sont aussi utiles pour la caractérisation écologique des communautés végétales et la typologie des stations forestières (de Tillesse et Devillez, 1995; Dzwonko, 2001; Gégout et Krizova, 2003; Coudun et Gégout, 2005), ainsi que pour l'évaluation du remaniement des communautés végétales induit par les pollutions (Diekmann et Dupré, 1997; Smart *et al.*, 2003; Hülber *et al.*, 2008; Van Landuyt *et al.*, 2008; Keith *et al.*, 2009). Les valeurs indicatrices des conditions nutritionnelles et d'acidité du sol ont été souvent utilisées pour indiquer l'évolution des milieux (semi-) naturels et définir l'impact des dépôts sur la flore et le sol (Thimonier *et al.*, 1992; Andrianarisoa *et al.*, 2009; Duprè *et al.*, 2010; Stevens *et al.*, 2010; Sebesta *et al.*, 2011; Verheyen *et al.*, 2012). L'utilisation de la flore comme un outil de suivi au même titre que les réseaux de mesures est une approche largement exploitée en Europe. D'après une recherche dans le moteur de recherche bibliographique *Web of Science*, 429 études (entre 1979 and 2013, utilisation du mot clé « bioindication ») ont utilisé la bio-indication par la flore pour évaluer les conditions des milieux (par exemple, parmi les études trouvées on compte Ellenberg *et al.*, 1992; Thimonier *et al.*, 1994; Diekmann et Dupré, 1997; Diekmann et Falkengren-Grerup, 1998; Falkengren-Grerup, 1998; Diekmann *et al.*, 1999; Lawesson et Mark, 2000; Diekmann, 2003; Smart *et al.*, 2003; Coudun et Gégout, 2005; Wamelink *et al.*, 2005; Chytrý *et al.*, 2009; Duprè *et al.*, 2010; Stevens *et al.*, 2010; Bertrand *et al.*, 2011b; McClean *et al.*, 2011; McGovern *et al.*, 2011; Sebesta *et al.*, 2011; Verheyen *et al.*, 2012; Payne *et al.*, 2013).

Puisque la majorité de la biodiversité végétale de la forêt tempérée est représentée par la végétation herbacée et que celle-ci est sensible aux changements environnementaux sur de larges échelles temporelles et spatiales, la végétation peut être considérée comme un bon

indicateur des conditions environnementales (Dupouey *et al.*, 1999). Sa dynamique sur le long terme peut refléter l'état des forêts et l'évolution de plusieurs paramètres clés des écosystèmes tels que le niveau de nutrition en azote, l'acidité du sol, le bilan hydrique (liste non exhaustive) (Thimonier *et al.*, 1992; Cluzeau *et al.*, 2001; Gilliam, 2007). Bobbink e*t al* (1998) suggèrent que la composition des communautés herbacées est affectée même à des charges d'azote faibles (5-10 kg ha^{-1} an^{-1}) mettant ainsi en évidence leurs sensibilité aux dépôts atmosphériques et autres pollutions connus pour modifier les propriétés nutritionnelles des sols. Pour ces raisons, de nombreuses études ont utilisé, et continuent d'utiliser, la flore de sous-bois comme bio-indicateur des phénomènes d'acidification et d'eutrophisation des écosystèmes (Diekmann et Dupré, 1997; Baeten *et al.*, 2009; Van Den Berg *et al.*, 2011; Thimonier *et al.*, 2012).

1.2.4.2.2 L'utilisation des approches observationnelle et expérimentale

L'absence de relevés permanents sur de long pas de temps nécessite d'avoir recours à des comparaisons spatiales ou temporelles. Les réponses de la végétation et du sol aux dépôts atmosphériques ont ainsi été déterminées le long de gradients de dépôts, c'est-à-dire par comparaison spatiale (Smart *et al.*, 2003; Duprè *et al.*, 2010; Stevens *et al.*, 2011a), ou via le suivi de placettes permanentes ou semi-permanentes, c'est-à-dire par comparaison temporelle, mais dans ce cas à des échelles locales à régionales et/ou sur un nombre réduit d'observations (Diekmann *et al.*, 1999; Hédl, 2004; McGovern *et al.*, 2013). La comparaison spatiale est basée sur le fait que la dimension spatiale peut se substituer à la dimension temporelle car elle couvre une gamme large de dépôts comparable à celle que les écosystèmes peuvent expérimenter au cours du temps. En d'autres termes, il est supposé que ce que l'on observe sur un gradient spatial de dépôts équivaut à ce que l'on observera au fil du temps à un endroit donné. Par exemple, Stevens *et al.* (2011a) ont étudié les changements de la végétation à partir de 153 relevés répartis sur la région biogéographique atlantique européenne (qui comprend l'Irlande, la Grande-Bretagne, l'île de Man, la France, la Belgique, les Pays-Bas, l'Allemagne, la Norvège, le Danemark et la Suède) entre 2002 et 2007. Le suivi des placettes consiste lui en une analyse historique qui compare les conditions biotiques et/ou abiotiques de placettes (semi-) permanentes, c.-à-d. en l'observation et la prise de données répétées dans le temps sur un même réseau de placettes. Pour détecter de possibles changements dans les écosystèmes et déterminer les facteurs environnementaux qui les influencent, la plupart des études ont comparé deux campagnes de terrain. Par exemple, Baeten *et al.* (2009) ont étudié les changements dans la composition de la strate herbacée dans une forêt mélangée couvrant une aire de 13 km^2 en Belgique entre 1954 et 2000 (n = 20 relevés). Sebesta *et al.* (2011) ont évalué

les changements de la végétation dans des forêts naturelles couvrant une aire de 90 km^2 dans les montagnes des Carpates d'Ukraine entre 1938 et 1997/2006 (n = 141 relevés). De même, Falkengren-Grerup et Eriksson (1990) ont conclu que la disponibilité élevée en azote a fortement influencé la composition herbacée de 19 placettes forestières échantillonnées en 1947/52 et 1988 dans le sud de la Suède. Dans des forêts du nord-est de la République Tchèque couvrant une aire de 276 km^2, Hédl (2004) a ré-échantillonné 22 relevés en 1998, établis originellement en 1941, lui permettant la mise en évidence de changements de végétation et des conditions du milieu dus, entre autre, aux dépôts atmosphériques. Les résultats obtenus à partir de ces deux types d'étude et protocoles ont contribué à démontrer le remaniement des communautés végétales vers des assemblages de plantes nitrophiles et/ou tolérant l'acidité sous l'effet des dépôts atmosphériques (Falkengren-Grerup et Eriksson, 1990; Stevens *et al.*, 2004; Van Landuyt *et al.*, 2008; Thimonier *et al.*, 2012).

D'autres études, cette fois expérimentales, basées sur la réponse de la flore au chaulage, à la fertilisation ou à l'acidification confirment aussi la réponse des plantes aux changements des conditions du sol. Ces études expérimentales montrent également que la réponse de la végétation a lieu à peu près dans les cinq ans qui suivent les traitements (Fehlen et Picard, 1994; Hallbäcken et Zhang, 1998; Dulière *et al.*, 1999; Spiegelberger *et al.*, 2006). Certains cas ont montré que les espèces réagissent à l'augmentation du pH du sol de manière semblable en condition expérimentale et *in situ* (Falkengren-Grerup et Tyler, 1993).

1.2.4.3 Une question d'échelle : les étendues spatio-temporelles d'analyse

Malgré l'évolution lente des sols et de la végétation forestière, les effets de la pollution atmosphérique sur les forêts peuvent être visibles après quelques mois ou années suivant les dépôts. A l'inverse, les premiers signes de recouvrement de la végétation après un épisode de pollution peuvent n'être visibles qu'après quelques années ou décennies suivant la diminution des dépôts (**Fig. 1-7**, Galloway, 2001). Cette différence d'échelle temporelle dans la réponse de la végétation souligne l'importance de remonter loin dans le temps pour retracer l'évolution la plus complète possible des conditions environnementales du milieu qui ont pu impacter les espèces. Si les changements temporels de composition des espèces sont étudiés sur des périodes de temps relativement courtes, les tendances observées risquent de ne pas être claires (Thimonier *et al.*, 2011; Thimonier *et al.*, 2012). D'autre part, et comme détaillé précédemment, la plupart des études ayant indiqué l'eutrophisation et/ou l'acidification des sols, et/ou des changements de la composition floristique vers des communautés à caractère acidiphile et/ou

nitrophile dus à la pollution atmosphérique ont analysé de longs pas de temps (entre 20 et 60 ans). Ils se sont toutefois concentrés sur un nombre faible de répétitions et/ou des aires géographiques restreintes : placettes de surveillance, bassin versants, massif forestiers isolés ou aires spécifiques (Johnston *et al.*, 1986; Thimonier *et al.*, 1994; Dambrine *et al.*, 1998; Hédl, 2004; McGovern *et al.*, 2011; van der Heijden *et al.*, 2011). Bien que ces études aient fortement contribué à la compréhension des facteurs impactant les conditions biotiques et abiotiques des écosystèmes à l'échelle locale, l'analyse temporelle à large échelle des effets des dépôts atmosphériques reste peu abordée.

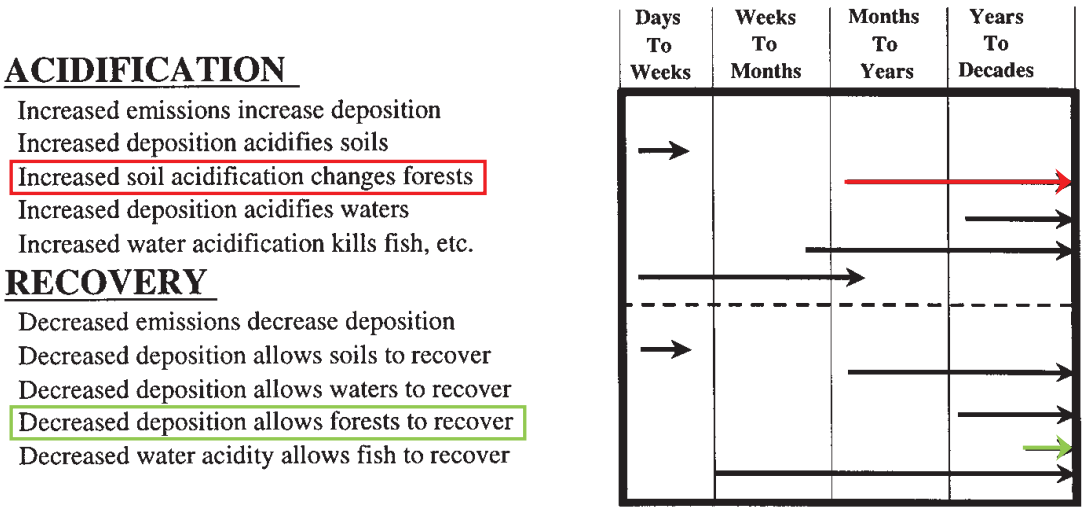


Figure 1-7 Échelles de temps de la réponse de quelques écosystèmes aux variations d'intensité des dépôts acides (tiré de Galloway, 2001).

La détection de leurs effets à large échelle est nécessaire car la pollution atmosphérique et ses conséquences écologiques opèrent aussi à des échelles nationale, régionale et/ou globale (Bouwman *et al.*, 2002; Smart *et al.*, 2003; Galloway *et al.*, 2008). Les données compilées à partir des réseaux de surveillance peuvent contribuer à déterminer l'effet des dépôts atmosphériques car elles couvrent uniformément de vastes territoires comme c'est le cas du '*Countryside Survey*' en Grande Bretagne. Parmi les études réalisées à large échelle, on compte celles réalisées le long des gradients de dépôts et celles couvrant tout un pays ou régions assez vastes, qui ont mené des évaluations sur les conditions changeantes des composants flore et sol des écosystèmes (Stevens *et al.*, 2004; Akselsson *et al.*, 2010; van Dobben et de Vries, 2010; Yang *et al.*, 2012).

1.2.5 Après 50 ans d'une période de pollution atmosphérique intense, où en est-on ?

Les programmes de contrôle d'émissions nationaux et internationaux ont conduit à d'importantes diminutions des dépôts acides, et donc à la perspective d'un recouvrement des effets de l'acidification (Skjelkvåle *et al.*, 2005; Vanguelova *et al.*, 2010). Comme indiqué précédemment les dépôts de soufre et d'azote ont diminué d'à peu près 70% et 21% entre 1990 et 2010, respectivement, en France (EMEP, 2011). Cependant, le recouvrement plausible des écosystèmes vis-à-vis le processus d'acidification conduit par la baisse des dépôts de soufre serait retardée à cause de l'accumulation historique des dépôts dans les sols conduisant à leur libération progressive vers les eaux de surface (Driscoll *et al.*, 1998) ainsi qu'en raison de la moindre diminution des dépôts azotés. Concernant ces derniers, les effets pourraient se poursuivre encore longtemps (Duprè *et al.*, 2010; Maskell *et al.*, 2010; Graf Pannatier *et al.*, 2011). Il a été suggéré que puisqu'ils doivent d'abord s'accumuler dans les sols pour que la nitrification se mette en place, l'acidification par les composés azotés n'est pas aussi directe et rapide que l'acidification par le soufre (Dise et Wright, 1995; Horswill *et al.*, 2008). De plus, l'azote déposé est d'abord retenu dans le sol, puis minéralisé à moyen ou long terme, signifiant que le sol est une source différée de nitrate, retardant ainsi les effets attendus de la réduction des dépôts (Thimonier *et al.*, 2012). Le recouvrement pourrait donc être un processus complexe, à double phase dans lequel le recouvrement chimique précède la régénération biologique (Driscoll *et al.*, 2001). Ceci signifie qu'une fois le recouvrement chimique accompli, (i) le retour d'espèces sensibles à l'acidification (qui ont pu être éliminées par ce changement) et (ii) d'un fonctionnement biologique non altéré par l'acidification seraient possibles (Skjelkvåle *et al.*, 2005; Vanguelova *et al.*, 2010; McGovern *et al.*, 2011).

Au cours de la dernière décennie, peu d'études ont montré un recouvrement des écosystèmes aquatiques ou terrestres en réponse au ralentissement présumé de l'acidification (par exemple, Skjelkvåle *et al.*, 2005; Kirk *et al.*, 2010). Des analyses basées sur des mesures de pH du sol en Angleterre et au Pays de Galles ont montré une diminution de l'acidité du sol à partir du moment où les dépôts acides ont commencé à diminuer jusqu'à nos jours (Kirk *et al.*, 2010). D'autres ont aussi indiqué que les sols semblent se rétablir des effets historiques des dépôts de soufre montrant une augmentation du pH (Power *et al.*, 2006; McGovern *et al.*, 2011). Des lacs et ruisseaux sensibles aux acides en Europe et en Amérique du Nord ont été analysés, révélant une tendance générale à des améliorations significatives de la chimie des eaux de surface acidifiées, grâce à la diminution des dépôts de soufre (Skjelkvåle *et al.*, 2005).

En ce qui concerne l'eutrophisation, quelques preuves de recouvrement des écosystèmes aquatiques ou terrestres du phénomène d'eutrophisation ont été signalées (e.g. O'Sullivan *et al.*, 2011; Dudley *et al.*, 2012). Celles-ci proviennent en partie d'études expérimentales, par exemple, O'Sullivan *et al.* (2011) ont signalé que la réduction des taux des dépôts d'azote peut inverser l'eutrophisation, même dans les sols ayant subi des taux élevés et prolongés de dépôts. Ils ont montré des signes de recouvrement dans les processus du cycle de l'azote du sol dans les années qui ont suivi la cessation des traitements. De plus, dans des lacs qui ont subi l'eutrophisation, des changements dans des communautés de plantes aquatiques en terme de richesse spécifique et équitabilité ont laissé entrevoir des signes d'un recouvrement des communautés vers l'état enregistré au début du 20ème siècle (Dudley *et al.*, 2012). Des changements qui ne semblent pour l'heure pas encore perceptibles dans les communautés végétales forestières.

Tandis que les études citées montrent un recouvrement des écosystèmes vis-à-vis de la pollution atmosphérique, d'autres, au contraire, montrent encore les effets négatifs des dépôts polluants sur les sols ou la végétation. Les conditions nuisibles du sol relatives à la nutrition en magnésium et calcium et au stress dues à l' aluminium ne sont pas facilement réversibles par le dépôt décroissant de substances acidifiantes (Alewell *et al.*, 2000). La couverture végétale et l'activité microbienne réagissent beaucoup plus lentement que le pH et plus généralement la chimie du sol (Power *et al.*, 2006; McGovern *et al.*, 2011), ce qui pourrait indiquer que les effets écologiques vont persister pendant de nombreuses années après la diminution des dépôts. La minéralisation de l'azote à moyen ou long terme pourrait également expliquer pourquoi le caractère nitrophile de la végétation du sous-bois a augmenté à partir de la période où les émissions de polluants azotés atteignaient un pic et qu'un déclin relatif s'amorçait (Thimonier *et al.*, 2012).

1.3 Cadre théorique de la bio-indication des conditions du sol par la flore

1.3.1 L'interaction espèces-environnement abordée à travers la niche écologique

Les dépôts acides et azotés ont modifié les conditions des milieux et ces changements ont entraîné des déplacements d'espèces végétales. Ceux-ci sont explicables dans le cadre théorique de la niche écologique formalisée en 1957 par Hutchinson. Toutefois les premières perspectives d'une telle théorie ont été développée par Grinnell (1917), qui considère que des

conditions environnementales particulières sont nécessaires au développement d'une espèce. En 1927, Elton définit la niche écologique de manière plus fonctionnelle, c'est-à-dire en tenant compte de la place de l'espèce dans son environnement (e.g. producteur primaire, secondaire et prédateur). On se retrouve ainsi avec une dualité de la définition de la niche : dans la première (celle de Grinnell) l'environnement biotique et abiotique influencent la présence de l'espèce, dans la seconde (celle d'Elton) c'est l'espèce et ses fonctions qui influencent l'environnement et donc les espèces qui coexistent dans les écosystèmes. Cette dualité est à l'origine de la confusion qui règne encore aujourd'hui autour de ce concept.

En 1957, Hutchinson formalise le concept de la niche qu'il décrit comme un hyper volume à *n* dimensions, où *n* représente les facteurs limitant (biotiques ou abiotiques) ou les ressources pour une espèce (Hutchinson, 1957). Une formalisation qui se rapproche plus de l'idée proposée par Grinnell que celle d'Elton. Hutchinson distingue deux types de niche écologique : (i) la niche fondamentale qui correspond à l'ensemble des conditions abiotiques permettant à l'espèce de croître, se reproduire, et exister indéfiniment, et (ii) la niche réalisée qui considère en plus les interactions interspécifiques (négative : prédation, compétition ; positive : mutualisme et facilitation). *In situ*, c'est celle-ci que l'on peut observer. D'autres théories ont participé au débat autour de la pertinence du concept de niche écologique comme celle basée sur le concept de la métapopulation ou « *source-sink theory* » qui soutient que la migration d'individus d'une population source (défini comme une population où le taux de croissance de la population est supérieur à 0) peut maintenir à elle seule les populations des puits (défini comme une population où le taux de croissance de la population est inférieur à 0) (Pulliam, 1988; Pulliam, 2000), ou encore la théorie neutre ou « *unified neutral theory of biodiversity and biogeography* » de Hubbell (2001) qui considère que c'est la similarité, et non les différences, entre espèces qui explique la diversité et la composition des communautés. Cette dernière est souvent considérée comme l'hypothèse nulle du concept de niche écologique.

1.3.2 Relation entre la niche écologique et la distribution des espèces

La distribution observée d'une espèce correspond à la portion de territoire occupée par l'ensemble des populations de cette espèce dans la zone étudiée. Les facteurs environnementaux modulant la distribution des espèces varient suivant l'échelle considérée (Pearson et Dawson, 2003). C'est ainsi que les facteurs climatiques (température, précipitation) et géologiques (roche mère, composition lithologique) sont plus importants à large échelle, tandis que les processus d'interactions (dispersion, parasitisme), les facteurs liés aux ressources

consommables (lumière, eau, nutriments) ainsi que la physiographie du milieu (pente, exposition) sont considérés aux échelles locales et régionales (Guisan et Zimmermann, 2000; Willis et Whittaker, 2002; Pearson et Dawson, 2003).

Pour déterminer les habitats favorables à la survie des populations d'une espèce via l'identification de ses besoins environnementaux, des approches de modélisation de la distribution de l'espèce (en anglais *species distribution models*, SDMs) sont utilisées : approche corrélative et mécaniste (Guisan et Zimmermann, 2000; Pearson et Dawson, 2003; Kearney, 2006; Soberón et Nakamura, 2009). Dans l'approche corrélative (la seule abordée ici car elle est (i) la plus proche des méthodes employées dans ce travail de thèse et (ii) la plus couramment utilisée) les observations *in situ* de l'espèce et les conditions environnementales (principalement abiotiques) sont reliées via des modèles statistiques. Cette relation statistique est projetée au sein des régions pour lesquelles les données spatiales sont disponibles afin de prédire les zones de forte probabilité d'occurrence de l'espèce (Peterson *et al.*, 2002; Raxworthy *et al.*, 2003; Thuiller, 2003; Bertrand *et al.*, 2012). Ces modèles prédictifs basés sur des jeux de données de terrain prédisent ce que l'on peut considérer comme une estimation de la niche écologique réalisée (Guisan et Zimmermann, 2000; Austin, 2002).

1.3.2.1 Conservation de la niche ou de la distribution chez les plantes

Une grande partie de la théorie de l'écologie des communautés a été construite autour de l'idée que la présence d'une espèce dans une zone donnée indique que celle-ci est adaptée aux conditions locales. Face aux changements des conditions environnementales y compris des sols, deux types de réponses sont possibles chez les espèces végétales (cf. Bertrand, 2012) :

(i) La conservation de la distribution de l'espèce, c.-à-d. persister pour rester dans son aire de distribution géographique en adaptant ses exigences écologiques aux nouvelles conditions environnementales par modification de la niche.

(ii) La conservation de la niche écologique de l'espèce, c.-à-d. conserver ses exigences écologiques en suivant la redistribution spatiale des conditions environnementales nécessaires au développement de l'espèce (ce qui implique un changement de distribution par migration).

La conservation de la distribution implique des stratégies liées à la génétique et aux caractéristiques phénotypiques :

L'**adaptation génétique** peut refléter une adaptation évolutive de l'espèce face aux changements environnementaux, et est liée à la modification du génotype de l'espèce (Taylor, 1978; Jump et Peñuelas, 2005). C'est un processus basé sur la sélection où les individus les mieux adaptés aux conditions environnementales à un instant *t* ont un avantage reproducteur qui leur permet de maximiser le transfert de leurs gènes aux générations futures. Du fait de la rapidité à laquelle les changements environnementaux se sont opérés, surtout dans la deuxième moitié du 20ème siècle, il est peu probable que les espèces végétales disposent de suffisamment de temps pour s'adapter génétiquement. De plus, le système génétique des plantes est vraisemblablement trop stable pour qu'une adaptation génétique se produise rapidement (Bradshaw et Hardwick, 1989).

La **plasticité phénotypique** est liée à la variabilité des traits de vie biologiques des individus d'une même espèce. Pour un trait de vie particulier, la variabilité morphologique ou physiologique observée entre les individus de la même espèce permet à certains d'entre eux de faire face à des variations rapides de leur environnement. La plasticité phénotypique peut permettre aux plantes d'utiliser des stratégies d'évitement vis-à-vis de facteurs de stress (Stanton *et al.*, 2000) ou de la distribution hétérogène d'un polluant, par exemple les racines vont éviter les horizons du sol où les polluants sont retenus (Dickinson *et al.*, 1991). Même si les plantes possèdent la capacité potentielle de répondre phénotypiquement au stress, le temps dont elles ont besoin pour le faire peut compromettre cette capacité (Dickinson *et al.*, 1991).

La conservation de la niche est étroitement liée aux capacités de dispersion et d'installation des espèces qui vont déterminer leur vitesse de migration et leur capacité à suivre spatialement les changements environnementaux :

La **migration** chez les végétaux implique un processus de dispersion des graines et d'installation des populations dans des situations devenues plus favorables au-delà de la limite de l'aire de répartition de l'espèce. Le succès de cette migration dépend des caractéristiques biologiques des espèces telles que la fécondité, la viabilité des graines, la croissance des jeunes semis et la nature des mécanismes de dispersion. La capacité des espèces à suivre les changements environnementaux par migration est modulée principalement par (i) la distance de dispersion des graines, (ii) le *turnover* générationnel

(les espèces à courte durée de vie mettront moins de temps à se reproduire et donc à migrer) et (iii) la structure spatiale des conditions environnementales, par exemple, la qualité des sols varie plus localement que le climat, et de leurs changements au cours du temps (Pearson et Dawson, 2003; Lenoir, 2009; Bertrand, 2012; Bertrand *et al.*, 2012).

L'hypothèse sous-jacente de la modélisation de la niche écologique, et précisément dans le transfert des prédictions de la niche dans l'espace ou dans le temps, est que les niches sont conservées (Soberón et Nakamura, 2009). Les niches des espèces semblent évoluer assez lentement dans les lignées (Soberón et Nakamura, 2009) comme l'ont montré des études sur l'évolution conservatrice des niches écologiques (Peterson *et al.*, 1999), et sur la capacité de prédire le potentiel géographique des invasions d'espèces (Dirnböck *et al.*, 2003). La perte de biodiversité en réponse aux dépôts atmosphériques constitue une autre preuve du changement lent (ou même nul) de la niche écologique des espèces face aux nouvelles conditions environnementales (Stevens *et al.*, 2004; Gaudnik *et al.*, 2011; McClean *et al.*, 2011).

1.3.3 L'état du sol dérivé de l'autécologie des espèces

Si les caractéristiques physico-chimiques d'une aire géographique n'autorisent le développement que d'un groupement phytosociologique particulier, l'inverse montre que l'étude phytosociologique peut aboutir à évaluer directement certaines des caractéristiques physico-chimiques qui déterminent les qualités trophiques d'un sol (de Tillesse et Devillez, 1995). La bio-indication peut être définie comme l'utilisation des réponses spécifiques des organismes à leur environnement (Diekmann, 2003). Sans mesures anciennes des facteurs environnementaux, la bio-indication est fréquemment utilisée pour estimer les conditions environnementales et retracer ou prédire leurs changements (c.f. ter Braak et van Dam, 1989; Birks *et al.*, 1990; Brady *et al.*, 2010). Le but de son utilisation est d'estimer une variable environnementale que l'on a pas mesuré sur le terrain car elle est difficile à évaluer, coûteuse ou peu fiable (cf. Diekmann *et al.*, 1999). L'utilisation de la bio-indication repose sur l'hypothèse que les espèces répondent immédiatement et sans frein de migration aux changements environnementaux, c'est-à-dire se place dans une stratégie de conservation de la niche (décrite ci-dessus). Cette méthode sera donc fiable si la composition d'espèces évolue de manière réactive au fur et à mesure que changent les conditions de milieu, c'est-à-dire que le

changement de flore opère sans décalage temporel (**Fig. 1-8**). Cette réponse rapide des espèces est à la base du reflet fidèle de l'état de l'environnement par la bio-indication.

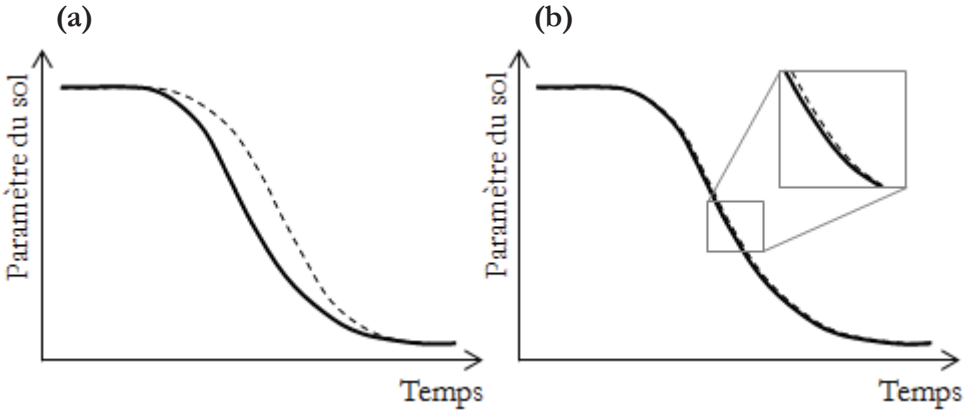


Figure 1-8 Représentation schématique de l'évolution d'un paramètre du sol (par exemple le pH) au cours du temps sous l'hypothèse d'une réponse **(a)** décalée et **(b)** non décalée entre les valeurs mesurées et bio-indiquées (traits pleins et pointilles, respectivement).

La bio-indication peut être centrée sur l'espèce ou la communauté, et leur réponse aux différentes conditions environnementales. Si elle est centrée sur l'espèce, la bio-indication est basée sur l'estimation de valeurs indicatrices des espèces qui correspondent à l'optimum de présence ou de développement le long d'un gradient environnemental. Le système à dire d'expert le plus utilisé est celui d'Ellenberg. Des valeurs indicatrices d'espèces ont été établies pour la lumière (L), l'humidité du sol (F), la disponibilité en azote dans le sol (N), le pH du sol (R), la température (T), et la continentalité (K) (Landolt, 1977; Ellenberg *et al.*, 1992). Les valeurs indicatrices de L, N, R, T, K varient entre 1 et 9, et le coefficient F entre 1 et 12, où les valeurs basses indiquent une faible disponibilité du facteur analysé et les valeurs élevées indiquent une haute disponibilité du facteur. Le calcul de la valeur moyenne des valeurs indicatrices des espèces présentes dans un relevé floristique permet d'obtenir une valeur bio-indiquée qui estime les conditions environnementales du relevé. Les valeurs indicatrices calculées par la modélisation de la niche écologique des espèces peuvent correspondre à l'optimum de la présence d'une espèce déterminé à partir de sa niche écologique, c.-à-d. à la valeur du gradient d'acidité/disponibilité en azote maximisant la probabilité de prédire la présence des espèces dans les relevés floristiques (voir partie 2.4).

Si la bio-indication est centrée sur la communauté, alors elle se base sur une fonction de transfert via une approche dite inverse permettant la prédiction directe des conditions

environnementales à partir des assemblages d'espèces observés *in situ* (Braak et Juggins, 1993; ter Braak, 1995).

Une variation de la valeur bio-indiquée au cours du temps indique qu'un remaniement des communautés a eu lieu et que les nouvelles conditions du milieu ont provoqué l'extinction ou colonisation d'espèces au sein des communautés (sous réserve que la variabilité spatiale des relevés au cours du temps soit contrôlée, Bertrand *et al.*, 2011b; Bertrand, 2012). Du fait de la capacité potentielle des plantes à bio-indiquer les conditions environnementales, des changements des conditions du milieu peuvent être identifiés en utilisant les assemblages d'espèces disponibles dans une période de temps quelconque. Ce type d'approche a été utilisé pour reconstruire le pH des lacs sur plusieurs milliers d'années à partir des cortèges de diatomées, ainsi que pour reconstruire la température sur plusieurs dizaines de milliers d'années à partir du pollen, ou sur quelques décennies à partir des cortèges floristiques (Braak et Juggins, 1993; ter Braak, 1995; Birks, 1998; Bertrand *et al.*, 2011b).

1.4 Cadre de travail de la thèse

1.4.1 Objectif

Étant donnée (i) l'importance du sol et de ses paramètres physico-chimiques pour la viabilité des écosystèmes terrestres et (ii) la méconnaissance des phénomènes d'acidification et eutrophisation des sols occasionnés par les activités anthropiques, ce travail de thèse vise à comprendre comment les sols et la végétation forestière française ont répondu aux variations de pollution atmosphérique au cours du 20ème siècle et au début du 21ème siècle.

Les exemples concrets cités précédemment sur les réponses des sols et de la flore à la pollution atmosphérique (voir partie 1.2) mettent en évidence de nombreux manques de connaissance scientifique concernant la compréhension spatio-temporelle des processus impliqués en raison de l'absence de mesures des paramètres édaphiques à large échelle spatio-temporelle. C'est ainsi que l'objectif général de cette thèse consiste à retracer l'évolution spatio-temporelle de l'acidité et de la disponibilité en azote des sols forestiers français, à différentes échelles spatiales, au cours du 20ème siècle à partir du caractère bio-indicateur de la flore.

1.4.2 Hypothèses

Basés sur le fait que l'acidification et l'eutrophisation, causées par les dépôts atmosphériques de soufre et d'azote, ont modifié les caractéristiques chimiques des sols et influencé le remaniement des communautés végétales dès la révolution industrielle et plus fortement à partir des années 1950, mon travail repose sur deux hypothèses principales :

(i) le déterminisme de la distribution des espèces par la niche écologique. Nous considérons que la présence des espèces est déterminée par leur environnement abiotique y compris les conditions du sol. Par conséquent, la relation espèce-environnement peut être utilisée de manière inverse afin de caractériser les conditions environnementales à partir des cortèges floristiques.

(ii) La conservation de la niche écologique induisant un changement de distribution des espèces en réponse aux changements globaux récents. Dans le contexte de changement global actuel, les espèces ont deux possibilités: la conservation de leur niche ou la conservation de leur distribution. Parce que l'intensité et la rapidité des changements environnementaux ne semble guère pouvoir être amorties par les capacités évolutives des espèces végétales (essentiellement pérennes), la stratégie de conservation de la distribution de ces espèces est peu probable. Nous assumons que les espèces répondent principalement dans le court terme via des processus de colonisation locale/extinction et donc que la flore est toujours en équilibre avec le milieu.

1.4.3 Cadre théorique utilisé dans la thèse

Le cadre théorique général dans lequel nous avons travaillé pour retracer l'évolution de l'acidité et de la disponibilité en azote des sols forestiers passe, dans un premier temps, par l'hyper volume défini par Hutchison (1957). Plus particulièrement, nous nous sommes intéressés à la partie de la niche définie par les conditions édaphiques de pH et C:N. Cela signifie que la distribution que nous observons pour chaque espèce nous indique à la fois un déterminisme global vis-à-vis de chacun de ces facteurs (niche fondamentale) et un déterminisme local lié à la compétition pour certaines gammes de pH et C:N (niche réalisée). Dans un second temps, en considérant les réponses des espèces végétales face à ce déterminisme nutritionnel et en passant par des fonctions de transfert des caractéristiques de la flore vers l'état du sol (bio-indication), nous cherchons à reconstruire l'évolution des

conditions de pH et C:N du sol au cours d'une période où la pollution atmosphérique a fortement changé. Nous avons fait l'hypothèse que la réponse des assemblages d'espèces au pH et C:N du sol était capable de refléter l'évolution des conditions d'acidité et de disponibilité en azote, respectivement, en supposant que les espèces conservaient leur niche édaphique et modifiaient sans délai leurs distributions en fonction des changements des conditions du sol (Fehlen et Picard, 1994; Hallbäcken et Zhang, 1998).

1.4.4 Structure de la thèse

Après avoir détaillé le contexte, le cadre théorique, l'état de l'art, les hypothèses et les objectifs du présent travail de thèse dans une partie introductive, nous poursuivons par un second chapitre présentant les données floristiques et environnementales, produites et utilisées dans le cadre de cette thèse, ainsi que les méthodes testées et finalement employées. Les trois parties suivantes (chapitres 3, 4, et 5) regroupent les principaux résultats présentés au format d'articles scientifiques.

Le chapitre 3 aborde l'étude des changements spatio-temporels de l'acidité du sol dus aux effets des dépôts acidifiants. Nous nous sommes focalisés sur le territoire forestier français (i.e. à l'échelle globale), les 100 dernières années (i.e. à long terme), et avons utilisé le caractère bio-indicateur de la végétation spontanée pour retracer l'évolution de l'acidité des sols. Étant donné que les caractéristiques biogéochimiques des milieux peuvent varier en réponse aux dépôts atmosphériques d'origine anthropique (Kirk *et al.*, 2010; O'Sullivan *et al.*, 2011), nous avons comparé deux types de substrats, acide et non-acide. Puis nous avons confronté des relevés floristiques anciens et récents au sein du même substrat. Cette étude est centrée sur des aspects scientifiquement méconnus touchant à la réponse différentielle des milieux à l'acidification et au retour à un état moins acide des sols après la diminution récente des émissions acidifiantes. Les questions posées sont :

(i) Dans le contexte d'une importante diminution des dépôts acidifiants de soufre et d'azote, les changements de l'acidité du sol pourraient-ils montrer une cessation de l'acidification au cours des dernières décennies ?

(ii) Les changements spatio-temporels sont-ils liés au type de milieu (acide ou non-acide) ?

(iii) Existe-t-il une régionalisation de l'acidification liée au milieu, et est-t-elle liée à l'évolution spatio-temporelle des dépôts atmosphériques modélisés par l'EMEP ?

Toujours à l'échelle globale et sur de longs pas de temps (1910-2010), nous avons, au chapitre 4, évalué les changements spatio-temporels de la disponibilité en azote du sol dus aux effets des dépôts azotés. De manière semblable aux méthodes qui ont été mises en place au chapitre 3, nous avons utilisé la bio-indication pour déterminer l'évolution du rapport C:N au cours du temps, et nous avons contrôlé le potentiel biais spatial lié à l'analyse de placettes temporaires. Nous avons comparé les relevés floristiques au sein du même type de peuplement en considérant que la disponibilité en azote dans un peuplement de conifères pouvait différer de celle d'un peuplement de feuillus, et que leurs réponses aux dépôts atmosphériques diffèrent (Aber *et al.*, 1998; van Dobben *et al.*, 2006; Emmett, 2007). Les questions posées sont :

(i) Quelle est la tendance de la disponibilité en azote sur long terme dans les forêts françaises ?

(ii) Considérant la diminution des dépôts azotés depuis les années 1980, les changements de disponibilité en azote du sol pourraient-ils refléter une diminution de l'azote disponible ?

(iii) Les changements spatio-temporels de la disponibilité en azote sont-ils liés au type de peuplement (conifères ou feuillus) ?

(iv) Existe-t-il une régionalisation de la disponibilité en azote liée au type de peuplement ?

Le chapitre 5 vise à évaluer les changements de végétation à l'échelle locale au cours de la période 1972-2011, d'en déterminer le ou les facteurs moteurs et la contribution des changements de propriété du sol. Cette étude est réalisée à partir de l'analyse de la composition en espèces de placettes semi-permanentes, soit une analyse diachronique. Les facteurs environnementaux entraînant probablement les changements de la végétation ont été analysés à partir des valeurs indicatrices d'Ellenberg des conditions de lumière, d'humidité, de l'état nutritionnel et de pH du sol, et de température de l'air, et leurs dynamiques et tendances temporelles déterminées. L'étude de l'effet des changements environnementaux globaux sur la végétation est généralement conduite par comparaison de deux campagnes d'observation et menée sur un nombre restreint de gradients environnementaux. Le travail réalisé ici porte sur l'analyse de trois dates d'observation de la flore (1972-1991-2011), ce qui nous permet a priori de déterminer plus précisément la dynamique des changements de végétation et

environnementaux ainsi qu'identifier la période pendant laquelle ceux-ci ont été les plus marqués. Les questions posées sont :

(i) Un remaniement des communautés forestières peut-t-il être détecté au cours des 40 dernières années à l'échelle d'un massif forestier, c.-à-d. locale ?

(ii) Si oui, ce remaniement est-il lié aux changements de disponibilité en azote et/ou d'acidité des sols ?

(iii) Est-ce que d'autres facteurs, tels que le type de gestion forestière, la dynamique naturelle des forêts et/ou le climat ont-ils également pu conduire le remaniement des communautés végétales ?

(iv) Est-ce que les trois campagnes d'observation sont suffisantes pour permettre de distinguer la période à laquelle les changements floristiques et environnementaux ont principalement eu lieu ainsi que leurs vitesses de changements au cours du temps ?

Le chapitre 6 discute les trois chapitres de résultats. Cette discussion vise à établir un bilan de la pertinence des méthodes employées et des différents résultats obtenus. Le lien entre l'évolution spatio-temporelle des valeurs bio-indiquées du pH et du rapport C:N et l'évolution des mesures des dépôts des polluants atmosphériques au cours du temps est discuté, ainsi que la relation entre l'évolution de l'acidité et de la disponibilité en azote sur le long terme. L'effet d'autres facteurs associés à la dynamique de la végétation est également abordé.

Finalement, dans le chapitre 7 les conclusions générales de ce travail sont synthétisées et des perspectives présentées.

2 MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE

MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE

2.1 Les données floristiques

Pendant le déroulement de cette thèse nous avons utilisé trois bases de données floristiques et écologiques afin de suivre et spatialiser l'évolution de l'acidité et la disponibilité en azote, la base EcoPlant (Gégout *et al.*, 2005), la base Sophy (Brisse *et al.*, 1995), et l'Inventaire Forestier National (Robert *et al.*, 2010). Elles constituent les plus grosses bases de relevés floristiques forestiers créées à l'échelle de la France.

2.1.1 Les données issues d'EcoPlant

La base de données EcoPlant regroupe des relevés floristiques forestiers accompagnés de paramètres écologiques (notamment des analyses de sol). L'objectif de cette base est d'étudier et de modéliser la distribution des espèces végétales forestières, ainsi que leur comportement et caractère indicateur vis-à-vis des facteurs climatiques et édaphiques (Gégout *et al.*, 2005). Les données sont issues de catalogues des stations forestières, des réseaux de suivi des écosystèmes forestiers européens ainsi que des travaux de thèse ou de recherche. Chaque relevé a été réalisé, dans la plupart des cas, sur des placettes d'une surface de 400 m^2. Pour chaque placette il existe une description floristique ainsi que des caractéristiques pédologiques, géographiques (notamment la localisation) et topographiques réalisée à la date de l'observation. Les placettes correspondent donc à des unités représentant l'espace et le temps. Parmi l'information contenue dans chaque placette de la base EcoPlant , on retrouve un relevé floristique exhaustif où soit la présence soit l'abondance/dominance des espèces est renseignée (suivant la méthode de Braun-Blanquet (1932) dans ce dernier cas). Les coordonnées géographiques des sites sont déterminées soit par localisation GPS soit par estimation à partir des cartes topographiques ou des descriptions précises des sites. La précision de localisation et l'altitude sont aussi renseignées. Un profil de sol, et des analyses physico-chimiques (plus ou moins complètes) sont réalisés pour la majorité des relevés. Les analyses chimiques du sol comprennent (entre autre) une mesure de l'acidité (pH), la teneur en Al^{3+} et $CaCO_3$, le taux de saturation en bases, l'azote total, le carbone organique et le phosphore assimilable. À ce jour, la base contient 6266 placettes avec des relevés floristiques.

2.1.2 Les données issues de Sophy

La base Sophy a été réalisée en recueillant les relevés phytosociologiques contenus dans de nombreuses publications scientifiques. Son objectif est de décrire les groupes socio-écologiques des végétaux (Brisse *et al.*, 1995). Elle comporte actuellement plus de 100 000 relevés obtenus sur la totalité du territoire français, soit en milieu ouvert ou forestier. Les relevés sont dans la plus part des cas réalisés sur des placettes de 400 m^2. Parmi l'information contenue dans la base de données Sophy, on retrouve un relevé floristique exhaustif codé en présence/absence ou en abondance/dominance. Il est également renseigné les coordonnées géographiques du relevé ainsi que la précision de leur estimation. Aucune analyse physico-chimique du sol n'est fournie.

2.1.3 Les données issues de l'inventaire forestier

L'inventaire forestier, géré par l'Institut National de l'information Géographique et forestière (IGN), collecte des données permettant de connaître l'état et l'évolution au cours du temps de la ressource forestière française (http://inventaire-forestier.ign.fr/spip/spip.20php?rubrique149). La méthode d'échantillonnage de l'inventaire forestier entre 1976 et 2004 consistait en cycles d'inventaires successifs couvrant département par département, et suivant une grille systématique (1 x 1 km), le territoire forestier français métropolitain. Selon ce protocole la totalité du territoire est couverte tous les 10-12 ans (Robert *et al.*, 2010). Des relevés phytoécologiques ont été intégrés aux inventaires dendrométriques de l'inventaire forestier à partir de 1987, puis généralisés sur l'ensemble de la France à partir de 1992. En 2004, une nouvelle méthode d'échantillonnage a été adoptée, couvrant la totalité du territoire forestier français chaque année. L'avantage de cette nouvelle méthode est d'être plus souple et de s'adapter facilement à de multiples découpages spatiaux. Elle se base sur une grille systématique de 10 x 10 km, qui est déplacée de 2 kms par an, assurant ainsi une couverture kilométrique tous les 10 ans (Robert *et al.*, 2010). En d'autres termes, ce nouveau protocole procure un échantillonnage régulier dans l'espace et dans le temps. Il est fractionné en échantillons annuels présentant la même propriété de répartition uniforme dans l'espace (**Fig. 2-1**). Sur chaque placette forestière de 700 m^2, l'IGN réalise des prélèvements concernant le peuplement forestier, la végétation codée en présence/absence pour chacune des espèces végétales présentes et les conditions géographiques et physiques (pente, exposition, sol, etc.). Ceci s'accompagne également de mesures sur les arbres (hauteur, diamètre, etc.) et un

descriptif des peuplements. Dans ce travail de thèse nous avons utilisé la totalité des relevés échantillonnés et géoréférencés entre 1987 et 2009, soit 142 429 placettes floristiques.

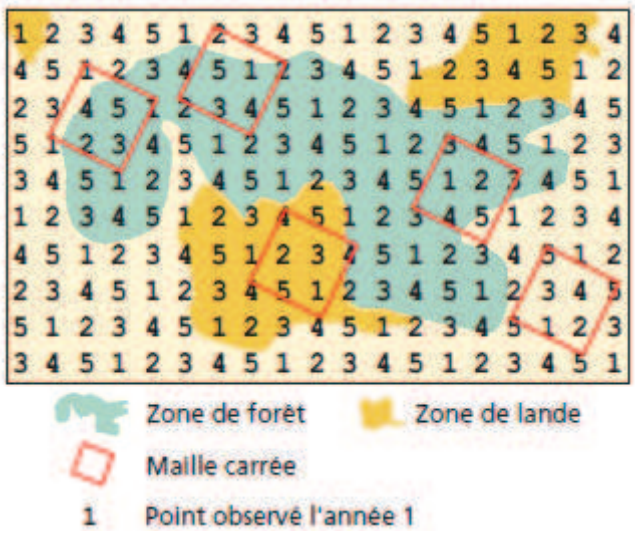


Figure 2-1 Échantillon complet systématique dans l'espace et dans le temps. Indifféremment de l'année, la maille est la même (tiré de http://inventaire-forestier.ign.fr/spip/spip.php?20rubrique25).

2.1.4 Les données collectées dans la forêt de Villey-Le-Sec

Un échantillonnage systématique initiale a été réalisée à la fin de juillet 1972 dans le massif forestier de Haye (y comprise la forêt de Villey-Le-Sec, située à l'ouest du massif de Haye) dans le nord-est de la France lors d'une étude précédente (Becker, 1979). L'échantillonnage se basait sur une grille de 250 x 250 m. À chaque intersection de cette grille un inventaire floristique complet a été mené sur une placette circulaire de 400 m^2. L'abondance/dominance des espèces a été renseignée suivant la méthode de Braun-Blanquet (1932). De toutes les placettes établies sur le massif de Haye, un total de 57 placettes était localisé dans la forêt de Villey-Le-Sec. 47 de ces placettes ont été ré-échantillonnées en mai 1991 (Thimonier *et al.*, 1994), puis au cours de cette thèse en juin/juillet 2011. Lors de cette dernière campagne, seules les 40 placettes pour lesquelles aucune perturbation majeure d'origine anthropique (e.g. coupes, sentiers de randonnées) et/ou naturelle (tempêtes Lothar et Martin de 1999) n'a été observée depuis 1991 ont été ré-inventoriées. Des marques de peinture laissées sur les arbres à l'issue de la campagne de 1972 et la cartographie des placettes inventoriées lors de la campagne de 1991 ont permis l'identification et la localisation précises des relevés durant les campagnes de 1991 et 2011, respectivement. Les relevés floristiques réalisés tant en 1991 qu'en 2011 ont suivi la méthodologie de l'étude initiale de 1972 (Becker,

1979). Des mesures de pH (H_2O) du sol ont été réalisées en complément en 1991 (Thimonier *et al.*, 1994) et 2011. En 1991, ces mesures ont été obtenues à partir d'échantillons de l'horizon supérieur de sol (Thimonier *et al.*, 1994). En 2011, le pH des placettes forestières a été mesuré à partir d'échantillons de sol prélevés en trois points différents (choisis aléatoirement) dans chaque placette de 400 m^2. Lors de cette dernière campagne, les relevés ont été complétés par de nombreuses mesures des propriétés physico-chimiques du sol (**Table 2-1**), la description des peuplements (renseignant notamment sur la gestion sylvicole) et des données topographiques.

Table 2-1 Présentation sommaire des données collectées lors des différentes campagnes de terrain dans la forêt de Villey-Le-Sec.

Campagne	Date	*n* placettes	Données disponibles	Auteur
1	Juillet 1972	57	- Inventaire floristique	Becker, 1979
2	Mai 1991	47	- Inventaire floristique	Thimonier *et al.,* 1994
			- pH (H_2O)	
3	Juin/Juillet 2011	40	- Inventaire floristique	Riofrío-Dillon, 2013
			- pH (H_2O)	
			- Carbonne organique	
			- Azote total	
			- Éléments grossiers	
			- Graviers	
			- Sables grossiers	
			- Sables fins	
			- Limons grossiers	
			- Limons fins	
			- Argiles	
			- Calcaire total	
			- Calcaire actif	
			- Calcium échangeable	
			- Magnésium échangeable	
			- Potassium échangeable	
			- Sodium échangeable	
			- Aluminium échangeable	
			- Manganèse échangeable	
			- Fer échangeable	
			- Protons échangeables	
			- CEC pH sol	
			- Matière organique (g/kg)	

2.2 Traitement des données floristiques

Étant donné la nature des bases de données, nous avons sélectionné les relevés spécifiquement forestiers en excluant ceux de milieu ouvert. Tout d'abord, nous nous sommes basés sur le territoire forestier défini par CORINE Land Cover (pour les années 1990, 2000 et 2006, à échelle 1 : 1 000 000), c.-à-d. les forêts de feuillus (code 311), les forêts de conifères (code 312) et les forêts mélangées (code 313), pour estimer la couverture spatiale des forêts françaises. Ensuite, les relevés géoréférencés et le territoire forestier (défini comme ci-dessus) furent croisés en prenant en compte la date de l'actualisation de CORINE Land Cover la plus proche de celle des relevés. Les relevés localisés dans la zone forestière ont été sélectionnés. La couverture du territoire forestier la plus ancienne dont nous disposons date de 1990, ce qui se traduit par une imprécision dans la sélection des relevés forestiers échantillonnés précédemment. Pour limiter cette incertitude nous avons conservé les relevés pré-sélectionnés sur lesquels au moins une essence forestière était inventoriée.

Finalement, nous avons extrait d'EcoPlant 6196 relevés forestiers géoréférencés compris entre 1910 et 2010, et issus de 142 études différentes, dont 3280 et 2816 placettes contiennent en outre des analyses physico-chimiques comprenant l'acidité et la disponibilité en azote du sol, respectivement, déterminées en laboratoire (**Fig. 2-2a**). De la base Sophy, nous avons extrait 32 330 relevés forestiers géoréférencés sur la période 1915-2000 (**Fig. 2-2b**). En tout, notre base de données forestière, comprenant également les placettes de l'inventaire forestier (**Fig. 2-2c**), regroupe un total de 180 955 relevés floristiques sur la période 1910-2010.

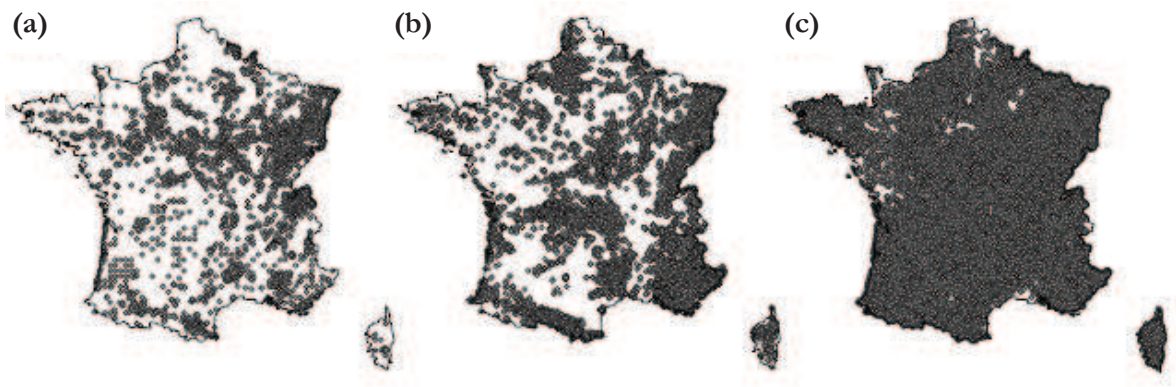


Figure 2-2 Répartition spatiale des données floristiques forestières issues des bases de données **(a)** EcoPlant (n = 6196 placettes), **(b)** Sophy (n = 32 330 placettes), et **(c)** de l'inventaire forestier national (n = 142 429 placettes).

Comme chaque base de données a été réalisée à partir d'une nomenclature taxonomique différente, une procédure d'homogénéisation des noms d'espèces a été effectuée afin de vérifier et, si nécessaire, les mettre à jour. À l'origine, nous avons compté 6887 noms d'espèces (ou sous-espèce et variété différentes) dans les trois bases de données et pour lesquels nous avons créé une nomenclature commune. Pour vérifier les synonymes des noms de plantes nous avons utilisé une base de synonymes interne au LERFoB complétée d'après la Base de Données Nomenclaturale de la Flore de France (BDNFF version 4 réalisée par Benoît Bock et Michel Kerguelen), la base Baseflor (Julve, 1998), et les trois tomes de la Flore Forestière Française (Rameau *et al.*, 1989; Rameau *et al.*, 1993; Rameau *et al.*, 2008). À la fin du traitement taxonomique, nous avons obtenu 5491 noms d'espèces (ou sous-espèce et variété différentes). Pour éviter les problèmes concernant des erreurs d'identification, nous nous sommes concentrés sur le niveau taxonomique de l'espèce, soit un pool de 4257 espèces.

2.3 Les données modélisées des dépôts atmosphériques

Il existe peu de données mesurées pour documenter les réponses de l'environnement aux dépôts atmosphériques depuis l'époque de la révolution industrielle (cf. Johnston *et al.*, 1986). Face à ce manque, des données modélisées des dépôts atmosphériques (e.g. EMEP, 2011) sont fréquemment utilisées pour estimer les effets de l'acidification et de la disponibilité en azote passés et futurs sur les écosystèmes terrestres et aquatiques (Driscoll *et al.*, 2001; Dentener *et al.*, 2006a). Dans cette thèse, les données des dépôts atmosphériques de soufre et d'azote total modélisées par l'EMEP (**Fig. 2-3**) sur la période 1910-2010 ont été utilisées pour établir la relation spatio-temporelle entre l'acidité et la disponibilité en azote bio-indiquées par la flore et les dépôts acidifiants et eutrophisants. L'EMEP est un réseau européen, qui a rassemblé et centralisé des données sur les dépôts atmosphériques à partir des réseaux nationaux. Le modèle de l'EMEP est un modèle eulérien des dépôts atmosphériques (Simpson *et al.*, 2003) intégrant des données d'émissions nationales, les vents stratosphériques et atmosphériques sur l'Europe et les données météorologiques pour déterminer les dépôts des polluants tels que ceux de soufre et d'azote sur une grille de 50 x 50 km. En France, 13 stations opérationnelles sont utilisées par l'EMEP pour mesurer des composés acides dans les dépôts secs et humides (http://www.nilu.no/projects/ccc/emepdata.html).

Croisé *et al.* (2005) ont également modélisé les données des dépôts hors couvert de soufre, nitrate, et ammonium (entre autres ions), à partir des observations du CATAENAT (sous-réseau du réseau RENECOFOR). Basés sur une approche géostatistique, le krigeage utilisant

la structure spatiale des données de dépôts atmosphériques ainsi que des précipitations comme variable auxiliaire, les dépôts atmosphériques ont pu être estimés sur une grille de 10 × 10 km couvrant la totalité du territoire français. Les dépôts moyens annuels de 1993 à 1998 (**Fig. 2-4**), et de 1999 à 2004 (Croisé *et al.*, données non publiées) ont été utilisés pour la modélisation. À la différence du modèle EMEP, l'approche présentée par Croisé *et al.* (2005) est simple et n'inclut pas d'étude des mouvements des masses d'air ou d'analyses physiques/chimiques de l'atmosphère ou de polluants atmosphériques.

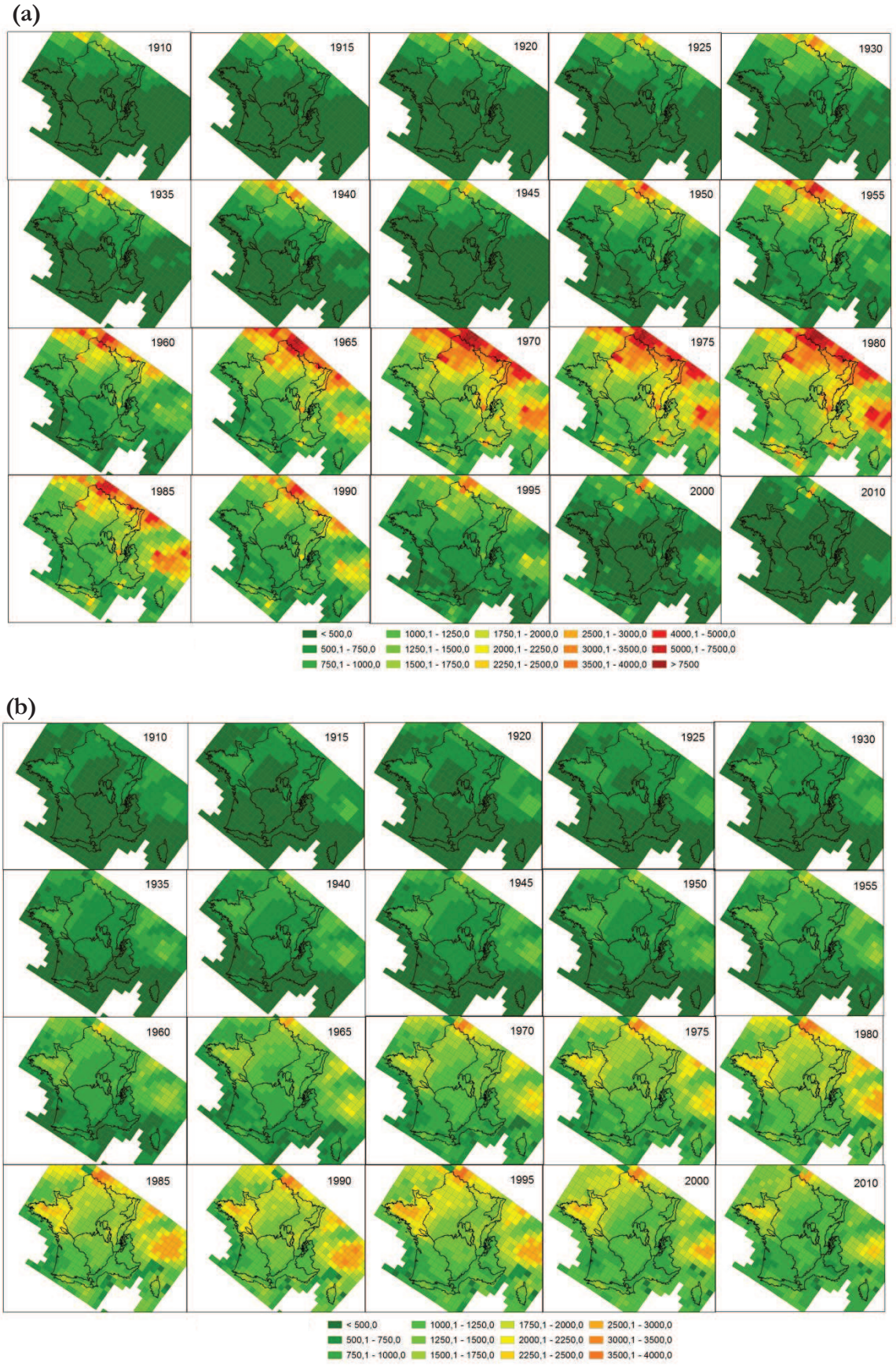


Figure 2-3 Distribution spatiale des données des dépôts atmosphériques de **(a)** soufre et **(b)** d'azote total au cours du 20ème siècle modélisées par l'EMEP. Unité : mg m^{-2}.

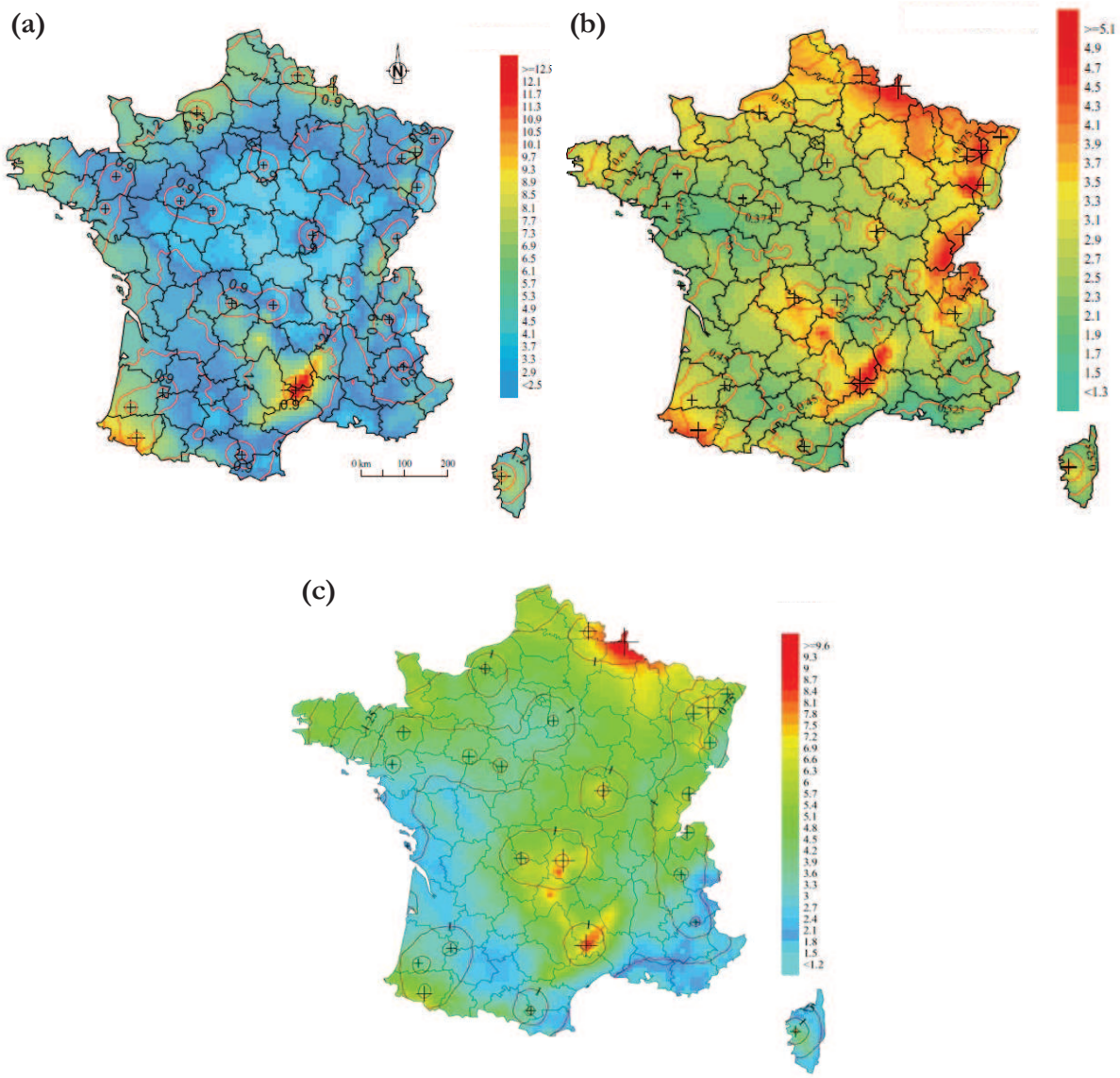


Figure 2-4 Distribution spatiale des données modélisées des dépôts hors couvert **(a)** de soufre de l'ion sulfate (S-SO_4) **(b)** d'azote des nitrates (NO_3) et **(c)** d'azote de l'ion ammoniacal (N-NH_4), basée sur les dépôts mesurés moyens annuels de la période 1993-1998 et les précipitations en tant que variable auxiliaire. Les croix représentent les placettes du sous-réseau CATAENAT (n = 27 placettes) utilisées pour ajuster le modèle et les traits rouges l'écart-type du krigeage. Unité : kg ha^{-1} an^{-1} (tiré de Croisé *et al.*, 2005).

2.4 Les méthodes de bio-indication : comparaison de trois approches

L'utilisation des réactions spécifiques des organismes à leur environnement est la base de la bio-indication (Diekmann, 2003). En raison de la capacité des plantes à indiquer les conditions environnementales (Bertrand *et al.*, 2011b; Verheyen *et al.*, 2012; Payne *et al.*, 2013), notamment dans un contexte d'acidification et d'eutrophisation à long terme des écosystèmes (Falkengren-Grerup, 1989; Diekmann et Dupré, 1997; Hédl *et al.*, 2011), les conditions

d'acidité et de disponibilité en azote du sol ainsi que leurs changements au cours du temps sous l'influence des activités anthropiques peuvent être estimées en utilisant les données floristiques disponibles pour toute période de temps (cf. Wamelink *et al.*, 2005; Gégout, 2008).

Les méthodes de bio-indication ont évolué tant sur le plan de l'entité considérée (espèce ou communauté), que de leur performance statistique. Dans cette thèse nous avons testé trois approches de bio-indication : la moyenne des optimums, le maximum de vraisemblance et le *Weighted Averaging-Partial Least Squares* (WA-PLS). L'objectif était de les comparer dans le but de sélectionner celle caractérisée par un bon compromis entre qualité de l'ajustement et l'erreur de prédiction, mais aussi celle qui semble la plus pertinente sur le plan écologique.

La **moyenne des optimums** (OPT) est une méthode centrée sur les espèces. Elle repose sur la modélisation de la niche écologique des espèces et l'estimation des optimums d'acidité (pH) et de nutrition azotée (C:N) de la présence des espèces à partir des modèles de niche. L'optimum est la valeur d'une variable donnée (pH ou C:N dans le cas présent) pour laquelle la probabilité de présence de l'espèce est maximale. En calculant la moyenne des optimums des plantes observées sur un relevé on estime les valeurs de pH et C:N bio-indiquées du lieu (ter Braak et Barendregt, 1986) (**Fig. 2-5**).

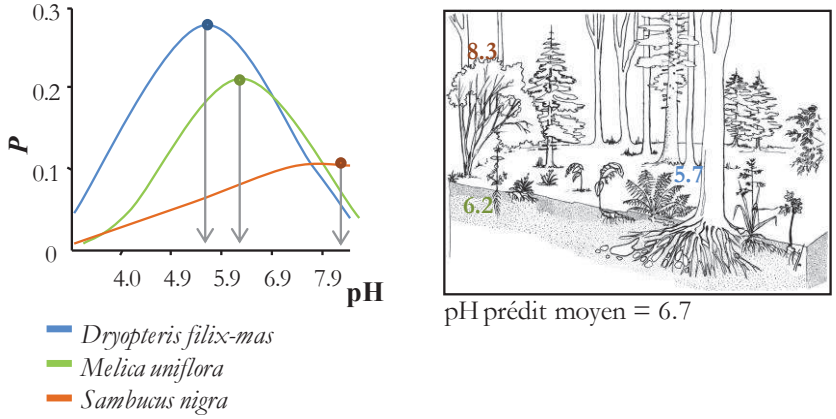


Figure 2-5 Représentation de la prédiction d'une variable écologique à partir des valeurs indicatrices des espèces.

Le **maximum de vraisemblance** (maxL) est une méthode centrée sur les espèces. Elle se base aussi sur la modélisation de la niche écologique, mais à la différence de la méthode précédente, elle examine toute la courbe de réponse pour estimer la valeur bio-indiquée. Celle-ci représente donc la valeur du gradient environnemental maximisant la probabilité de prédire (i) la **présence** des espèces dans les relevés floristiques (maxL P) ou (ii) la **présence et**

l'absence des espèces dans les relevés floristiques (maxL PA). Ce point particulier du gradient d'acidité et de disponibilité en azote dans notre cas est déterminé par maximum de vraisemblance.

La bio-indicación à partir du modèle ***Weighted Averaging-Partial Least Squares*** (WA-PLS) est une méthode centrée sur les communautés. Celle-ci est la combinaison de la méthode *Weighted Averaging* – WA (ter Braak et Barendregt, 1986) et du modèle de régression *Partial Least Square* (PLS) (ter Braak, 1995). La WA-PLS se base sur l'ajustement d'une fonction de transfert reliant la composition spécifique des communautés aux gradients d'acidité et de disponibilité en azote (dans le cas présent). Ce modèle est considéré une approche inversée (*inverse approach*) impliquant des prédictions directes des conditions environnementales à partir de l'ajustement d'une fonction des assemblages d'espèces observés à un endroit donné avec une erreur associée (ter Braak, 1995). La WA-PLS est appropriée pour la calibration lorsque les relations espèces-environnement sont unimodales (i.e. présence d'un seul optimum dans l'espace de la niche écologique), et/ou lorsque les variables explicatives du modèle (i.e. les espèces) sont binaires (i.e. présence/absence) (ter Braak, 1995). La procédure d'ajustement du modèle est la suivante :

(i) Le jeu de données de calibration est transformé afin de linéariser les relations entre les espèces et l'environnement. Les assemblages d'espèces sont tout d'abord pondérés par le nombre d'espèces présentes dans chaque relevé et par la fréquence des espèces sur l'ensemble des relevés (matrice x^*). La variable environnementale à prédire est aussi pondérée par le nombre d'espèces (y^*).

(ii) Une régression PLS est conduite à partir du jeu de données de calibration transformé. Elle consiste à rechercher les combinaisons linéaires ou composantes principales (*f()*) des prédicteurs (x^*) qui maximisent la prédiction de la variable environnementale : $y^* = f(x^*) + error$. Les prédictions calculées sur la première composante principale correspondent à la moyenne pondérée des optimums des espèces composant les communautés (i.e. correspond au même résultat obtenu par la méthode WA ou à des résultats proches de la méthode OPT détaillée ci-dessus à la différence que les optimums ici sont déterminés en tenant compte de l'ensemble des espèces). Les composantes principales suivantes sont ajustées de manière à optimiser les prédictions de la variable environnementale (y^*) en utilisant les résidus de la composante précédente pour affiner l'estimation de l'optimum des

espèces (ter Braak, 1995; Brady *et al.*, 2010). Cela signifie que chaque nouvelle composante est orthogonale aux précédentes.

(iii) Les données ayant été transformées au départ, les prédictions du modèle WA-PLS sont modifiées pour revenir à la variable environnementale originale (pour plus de détails consulter Braak et Juggins, 1993 et ter Braak, 1995). Le nombre de composantes principales maximisant l'ajustement de la WA-PLS est sélectionné à partir d'une évaluation de la performance prédictive du modèle conduite sur un jeu de données indépendant. La dernière composante sélectionnée est celle dont le biais moyen et l'erreur de prédiction sont faibles, et dont la qualité de la relation entre les prédictions et les observations (R^2) est maximale et significative.

La **Table 2-2** synthétise les résultats de l'ajustement issus de la comparaison des trois méthodes. Cette comparaison a été réalisée à partir d'un même échantillon indépendant au jeu de données de calibration. Dans ce travail de thèse nous avons choisi d'utiliser la WA-PLS comme méthode de bio-indication du fait de sa performance statistique globale (valeur de R^2 acceptable et erreur de prédiction la plus faible, **Table 2-2**) et de sa pertinence écologique (i.e. il semble plus logique d'ajuster un modèle directement à partir des communautés d'espèces qu'un modèle indépendant pour chaque espèce).

Table 2-2 Comparaison de la qualité prédictive de différentes méthodes de bio-indication des conditions d'acidité et de disponibilité en azote. La comparaison est réalisée sur un jeu de données de validation indépendant pour le pH (n = 422 placettes) et le C:N (n = 400 placettes). Les valeurs bio-indiquées ont été confrontées à celles de pH et C:N mesurées pour déterminer la qualité prédictive de chaque méthode (à partir du R^2 et la RMSE ; cette dernière quantifie l'erreur moyenne des prédictions). Pour le calcul des valeurs bio-indiquées, il y a une espèce minimum par relevé.

Méthode	pH		C:N	
	R^2	RMSE	R^2	RMSE
OPT *	0.641	0.803	0.498	4.198
maxL P *	0.586	1.053	0.332	6.203
maxL PA *	0.596	1.095	0.303	7.377
WA-PLS c5 ‡	0.78	0.626	0.283	3.192

* Méthode centrée sur les espèces. ‡ Méthode centrée sur les communautés.

OPT : moyenne des optimums de pH et C:N des espèces ; maxL P : bio-indication par maximum de vraisemblance de la probabilité de présence des espèces ; maxL PA : bio-indication par maximum de vraisemblance de la probabilité de présence et d'absence des espèces ; WA-PLS c5 : bio-indication estimée par un modèle WA-PLS ajusté à partir de 5 composantes principales.

2.5 Cartographie du pH et C:N à partir des valeurs bio-indiquées

Afin d'obtenir la répartition spatiale de l'acidité et de disponibilité en azote des sols forestiers français, nous avons interpolé par krigeage les valeurs bio-indiquées de pH et C:N prédites sur chacun des relevés (ayant au moins 3 espèces indicatrices présentes, n_{pH} = 117 563 ; $n_{C:N}$ = 110 923) par le modèle WA-PLS correspondant. La **figure 2-6** schématise la procédure suivie pour cartographier les conditions d'acidité et de disponibilité en azote des sols à partir des données issues de la bio-indication. Les analyses spatiales et géostatistiques (e.g. krigeage) du pH et du C:N ont été réalisées à l'aide du logiciel ArcGIS (version 10.1; ESRI Inc., Redlands, CA, USA).

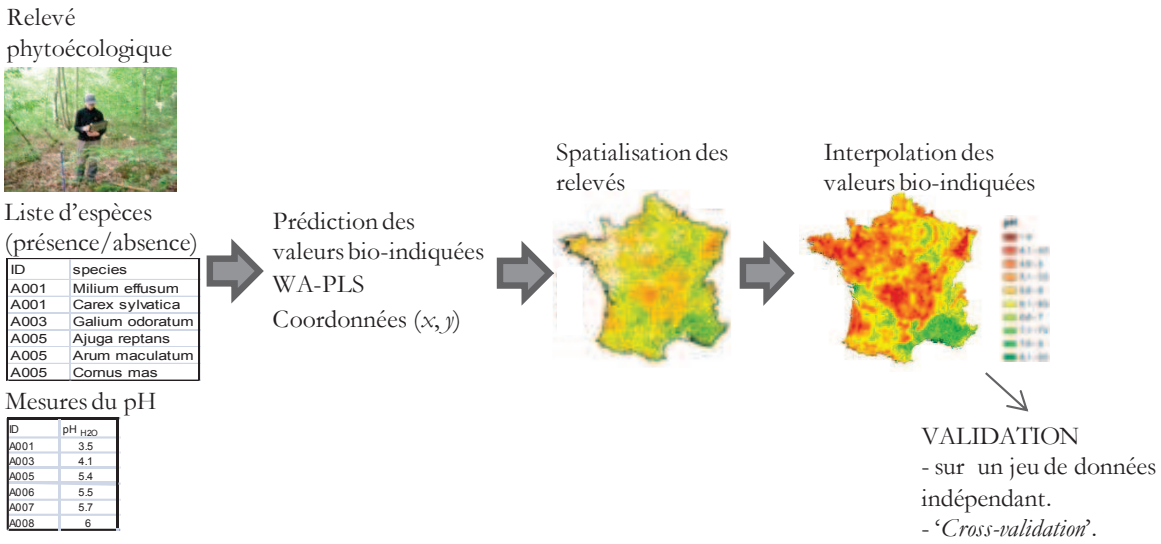


Figure 2-6 Schématisation du processus de cartographie des conditions d'acidité et de disponibilité en azote des sols forestiers français à partir des valeurs bio-indiquées.

L'ensemble des relevés de notre base de données conduit à une densité de placettes, en particulier du fait du nombre important de relevés floristiques issus de l'inventaire forestier national utilisés. Les cartes obtenues illustrent également la variabilité spatiale des valeurs de pH et C:N estimée à partir de la flore sur la période 1910-2010 (année moyenne de la représentation = 1996) (**Fig. 2-7**). On distingue notamment des régions pauvres en nutrition azotée (C:N élevé) et à caractère siliceux (pH faible) tels que le Massif Vosgien, le Massif Central, l'Aquitaine, la Bretagne. On observe également les plateaux calcaires du bassin parisien, le Jura, et la région méditerranéenne riches en azote et caractérisés par des valeurs de pH élevées. L'ensemble de ces observations démontre la pertinence générale des prédictions spatiales du modèle.

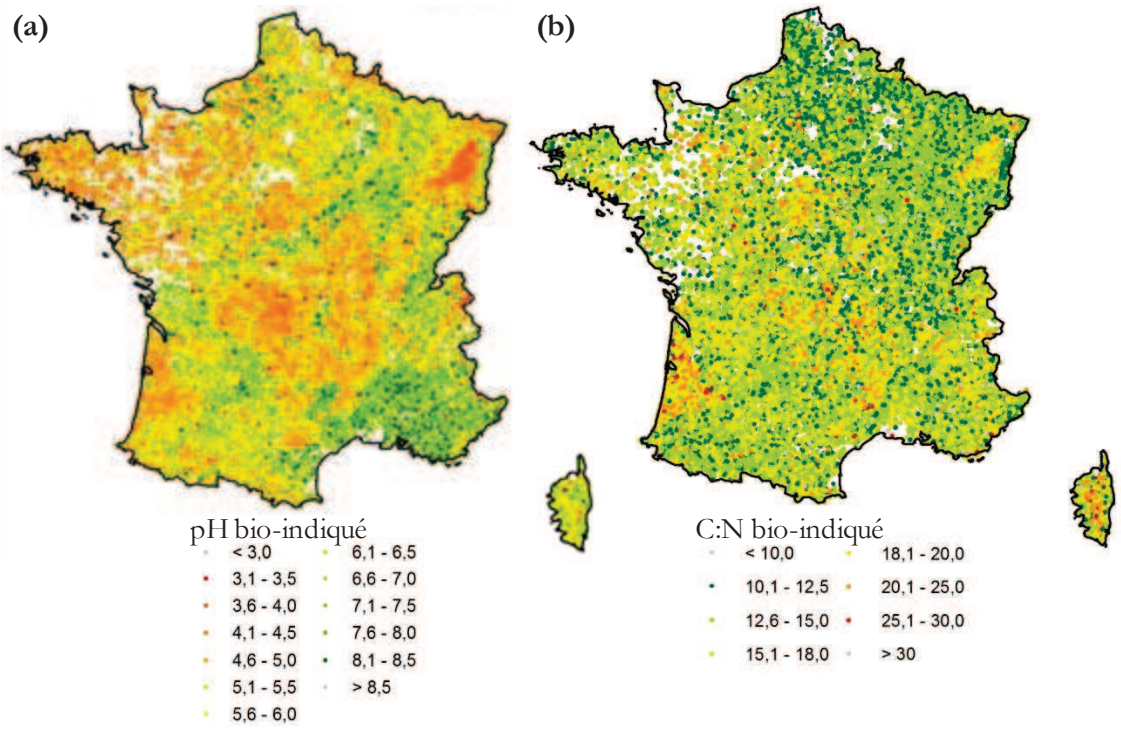


Figure 2-7 Distribution spatiale des valeurs bio-indiquées prédites sur les relevés floristiques (ayant au minimum trois espèces indicatrices par relevé) classées par intervalle de **(a)** 0.5 unités de pH (n = 117 563) et **(b)** 2.5 unités de C:N (n = 110 923).

Les paramètres du krigeage des valeurs bio-indiquées ont été optimisés par validation croisée (**Table 2-3**) dans le but, d'améliorer les prédictions et de diminuer l'erreur associée. Les cartes de répartition des valeurs de pH et du C:N issues de cette méthode sont présentées à la **figure 2-8**. Les prédictions réalisées semblent tout à fait cohérentes. On observe de vastes régions à sols acides et mauvaise nutrition azotée comme la Bretagne, les Landes, la Sologne (cohérentes avec les connaissances actuelles) ainsi que des petites zones à forte acidité comme les alluvions de la Moselle ou la forêt de Fontainebleau (également cohérente avec les connaissances actuelles de ces zones) (**Fig. 2-8**).

Table 2-3 Paramètres utilisés pour cartographier le pH et le C:N des sols forestiers français via la méthode du krigeage (*Ordinary kriging*).

		pH	**C:N**
Données en entrée	*n*	117 563	116 688
	Condition	*n*SpVI≥3	*n*SpVI≥3
Voisinage de la recherche	Type	Standard	Standard
	Nombre de voisins	24	24
	Géométrie du voisinage	Complet	Complet
	Angle	0	0
	Demi-axe majeur	20000	25000
	Demi-axe mineur	20000	25000
Variogramme	Nombre de *'lags'*	50	60
	Taille du *'lag'*	500	500
	Effet de pépite	0.357	3.905
	Erreur de mesure	0	0
	Type de modèle	Exponentiel	Exponentiel
	Portée	24982.49	29985.41
	Anisotropie	No	No
	Palier	0.500	2.427

n : nombre de placettes utilisées pour la prédiction du pH et C:N.
*n*SpVI : nombre minimal d'espèces requis pour le calcul de la valeur bio-indiquée de chaque relevé.

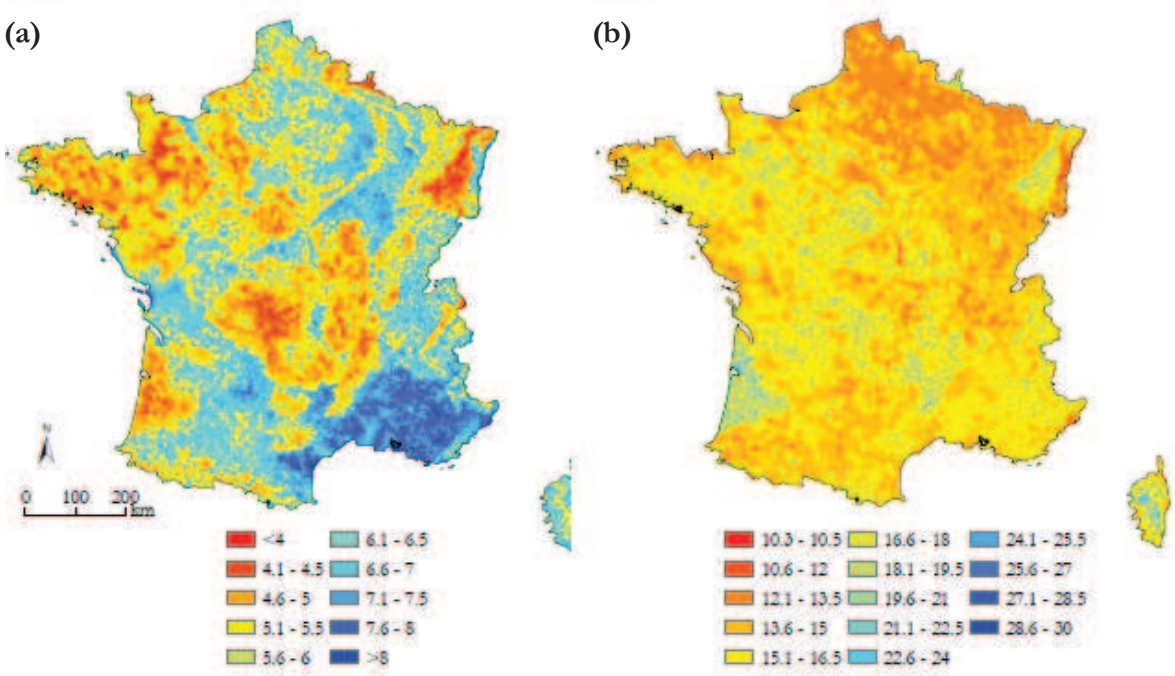


Figure 2-8 Cartes du **(a)** pH et **(b)** du C:N de l'horizon A du sol interpolées (par krigeage) à partir de leurs valeurs bio-indiquées respectives.

La précision de la prédiction d'estimation du pH et du C:N fournie par le krigeage a été calculée par validation croisée. Pour le pH, la valeur de RMSE est égale à 0.761 correspondant à un écart entre la valeur krigée et la valeur bio-indiquée supérieur au pH estimé directement sur un site à partir de son cortège floristique. Pour le C:N, la valeur de RMSE est égale à 2.253 correspondant à un écart entre la valeur krigée et la valeur bio-indiquée inférieur au C:N estimé directement sur une placette à partir de son cortège floristique.

3 ÉVOLUTION SPATIO-TEMPORELLE DE L'ACIDIFICATION DES SOLS FORESTIERS FRANÇAIS AU COURS DU 20ème SIÈCLE À PARTIR DU CARACTÈRE BIO-INDICATEUR DES COMMUNAUTÉS VÉGÉTALES

[ARTICLE 1]

Toward a recovery time: Forest herbs insight related to anthropogenic acidification

Gabriela Riofrío-Dillon [1, 2, 3], Romain Bertrand[1,2] & Jean-Claude Gégout[1,2]

Global Change Biology 18 (2012), pp. 3383-3394, DOI: 10.1111/gcb.12002

3.1 Abstract

Atmospheric deposition is a global concern contributing to soil acidification and biodiversity changes in forest ecosystems. Although acidifying deposition has decreased in the last decades in Europe, few evidence of ecosystem recovery from acidification has been reported until now. The objective of this study was to reconstruct spatio-temporal changes in soil pH across the entire French forest territory over the last 100-year period through herb species assemblages. Data were collected from floristic databases resulting in a total of 120 216 plots covering French forests and spanning from 1910 to 2010. To define acidity figures, pH values were inferred from herb assemblages for each plot of the prediction dataset based on a WA-PLS model (R^2 = 0.80, SD = 0.59 for the validation dataset). Spatio-temporal trends of mean pH changes were obtained by comparing plots with respect to the period (mean year of the period =1933, 1966, 1984, 1997, 2007) and substrate (acidic and non-acidic forest areas).

Bioindicated pH highlighted a decrease of soil pH in both acidic and non-acidic forest areas. The sharpest and most significant pH decrease occurred before 1984 in acidic areas, reaching 0.34 pH units. Subsequently, no significant changes were observed, with a tendency toward stabilization. By contrast, the pH decrease reached 0.19 pH units in non-acidic areas, only reaching significance between 1984 and 1997. Thereafter we observed a slight and significant pH increase. Spatially, pH trends revealed a regionalized character of acidification regarding the substrate, which could not be related to the extent of deposition modeled by the European Monitoring and Evaluation Programme. Both temporal and spatial trends highlight the lagged responses of non-acidic areas compared to acidic areas. Hence, floristic reconstructed pH

[1] AgroParisTech, ENGREF, UMR1092 Laboratoire d'Etude des Ressources Forêt-Bois (LERFoB), 14 rue Girardet, F-54000 Nancy, France.

[2] INRA, Centre de Nancy, UMR1092 Laboratoire d'Etude des Ressources Forêt-Bois (LERFoB), F-54280 Champenoux, France.

[3] French Environment and Energy Management Agency, 20 avenue du Grésillé-BP 90406, 49004 Angers Cedex 01, France.

trends demonstrate a gradual cessation and recovery from acidification of French forests after a period of intense atmospheric pollution.

Keywords: acidic and non-acidic forest areas, bio-indication, France, pH, recovery, spatiotemporal trends of soil acidity, species assemblages.

3.2 Introduction

The acidity of many regions of the world has increased as a consequence of food and energy production to sustain a growing global population (Galloway, 1995). These factors have led to enhanced emissions of air pollutants which in turn lead to increased long-range transport and deposition of sulfur (S) and nitrogen (N). Both are carriers of soil acidity (Dentener *et al.*, 2006a). By approximately the mid-20th century, global S and N emissions from anthropogenic processes overtook emissions from natural processes (Galloway, 2001). The effects of atmospheric pollution are widespread and appear in a number of ways including acidification of freshwater systems (Probst *et al.*, 1999), changes in soil chemistry (De Schrijver *et al.*, 2006), damage to vegetation (Bobbink *et al.*, 2010), and changes in forest ecosystems leading to vegetation changes (Falkengren-Grerup, 1986). Most natural soils are acidic due to both organic matter production and decomposition, but human activities have contributed to making them more acidic (Galloway, 2001).

Atmospheric deposition is a global concern and a current issue. After the peak of S in the 1970s and N in 1980s, and the demonstration of its negative consequences for the environment and human health, measures were implemented to control and reduce air pollution. As a result, S and N deposition within the European area decreased significantly from 1990s to our days, by approximately 60% and 38% , respectively (EMEP, 2011). In France, S and N deposition has followed the European tendency for reduction from their levels in the 1990s (1216 mg $S.m^{-2}$ and 1530 mg $N.m^{-2}$, computed from modeled data), decreasing by approximately 70% and 21 %, respectively, in 2010 (EMEP, 2011). While S deposition has declined sharply, returning to the deposition levels of the early 20th century, N deposition has remained elevated. Although acidifying deposition has substantially decreased in the last decades, few evidence of ecosystem recovery has been reported until now (see Skjelkvåle *et al.* (2005) for freshwater evidence). A likely recovery according to Driscoll *et al.*

(2001) will be a complex, two-phase process in which chemical recovery precedes biological recovery.

The impact of increased acidifying inputs on soils and the species composition of forest ecosystems has been a major concern in North America and Europe (Aber *et al.*, 1998). Since the soils in which forests grow change slowly and forests themselves grow slowly, the effects of acidic deposition on forests may not be manifested for years to decades (Galloway, 2001). As a consequence, detection of the long-term effects on vegetation and environment is needed to better understand how are they interact (Sebesta *et al.*, 2011). Similarly, the detection of such effects over a large scale area is also necessary, because potential drivers and their ecological consequences operate at national and continental scales (Smart *et al.*, 2003). However, such studies are scarce (e.g. Blake *et al.*, 1999; Emmett *et al.*, 2010; Kirk *et al.*, 2010), and the majority of existing works have reported the magnitude of changes over time but covered only small regions or specific plots (De Schrijver *et al.*, 2006; van der Heijden *et al.*, 2011).

Tracking long-term environmental changes is particularly difficult due to the limited historical data with measurements of soil parameters, which in turn is related to the low number of measured sites or monitoring programs (Dengler *et al.*, 2011). Without historical measurements, bioindicator values have become an option to determine the values of environmental parameters and to monitor their change (c.f. Braak et Dame, 1989; Birks *et al.*, 1990). Bio-indication can be defined as making use of specific reactions of organisms to their environment (Diekmann, 2003). Because of the potential ability of plants to indicate the values of environmental variables (Bertrand *et al.*, 2011b), significant insight into soil acidity changes can be identified using the available floristic data for any time period (Wamelink *et al.*, 2005). Forest inventories (mainly started up in the 1980s) and phytosociological studies providing valuable ancient floristic information (e.g. Braun, 1915) represent an important background to long-term research for detecting the impacts of long-range air pollution on vegetation. As most of the plant biodiversity in temperate forest ecosystems is represented by the herb layer, which responds sensitively to disturbances across broad spatial and temporal scales, its dynamics reflect the evolution of forest status (Thimonier *et al.*, 1992; Gilliam, 2007). Previous studies have shown significant shifts in the forest herb layer due to acidification (Diekmann et Dupré, 1997; Baeten *et al.*, 2009; Van Den Berg *et al.*, 2011). In France, while ample evidence from the northeastern region indicates that acidic deposition has deeply altered chemical soil properties, nutrient cycling and vegetation dynamics in forest ecosystems

(e.g. Thimonier *et al.*, 1994; van der Heijden *et al.*, 2011), studies from other French regions are relatively scarce (Landmann, 1995).

Here, we investigated the temporal and spatial changes in soil acidity across the entire French forest territory over the last 100-year period using the bioindicator character of forest herb assemblages. We based our study in a large number of floristic plots (n = 120 216) spread across the whole forest territory of Metropolitan France and spanning from 1910 to 2010. It allowed us to reconstruct spatio-temporal changes in forest soil pH, likely due to the effects of acidifying deposition, with respect to the substrate. We assumed that species assemblages mirrored acidity conditions. If acidification occurred, species assemblages would have reshuffled over time (Keith *et al.*, 2009), possibly in response to increasing atmospheric loads. It means we assumed that species conserve their edaphic niche, but they change their distribution in accordance with changes in soil conditions (Fehlen et Picard, 1994; Thimonier *et al.*, 1994; Hallbäcken et Zhang, 1998; Dulière *et al.*, 1999). We addressed the following questions: (i) In the context of a marked decrease of acidifying S and N deposition, do changes in soil acidity show a cessation of acidification over recent decades? (ii) Are spatio-temporal changes in soil acidity related to the nature of the geological substrate (acidic or non-acidic)? (iii) Is there a regionalized acidification related to the substrate and does it relate to the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) extent of deposition changes?

3.3 Materials and methods

3.3.1 Study area

A large-scale study was realized spanning the entire French forest territory. This territory occupies a surface of 161 000 km^2 (29.2% of Metropolitan France as determined from the national grid of CORINE Land Cover 2006) covering a pH gradient from very acidic (3 pH units) to base-rich (>8 pH units) conditions. French forest substrate consists of bedrocks of varying base status and soils of different types and depths, which cover the whole acidity gradient. To define the substrate in which forests are located, geological information was extracted from a geological French map at scale 1:1 000 000 (Rabu et Chantraine, 2004) and then classified according to lithological composition into acidic (i.e. those with siliceous character: granite, sandstone, basalt, conglomerates) and non-acidic forest areas (i.e. those with

calcareous character: limestone, marlstone, chalk). These areas occupied 51% and 49% of total forest territory, respectively (**Fig. 3-1a**).

The French forest territory has been affected by S and N deposition over time (Landmann, 1995). A natural low deposition was registered before the industrial era, and a strong anthropogenic deposition occurred during the second half of the 20th century, ranging from 445 mg S m^{-2} and 446 mg N m^{-2} in 1910 to maximal values of 1983 mg S m^{-2} and 1515 mg N m^{-2} in the 1970s and 1980s, respectively (EMEP, 2011).

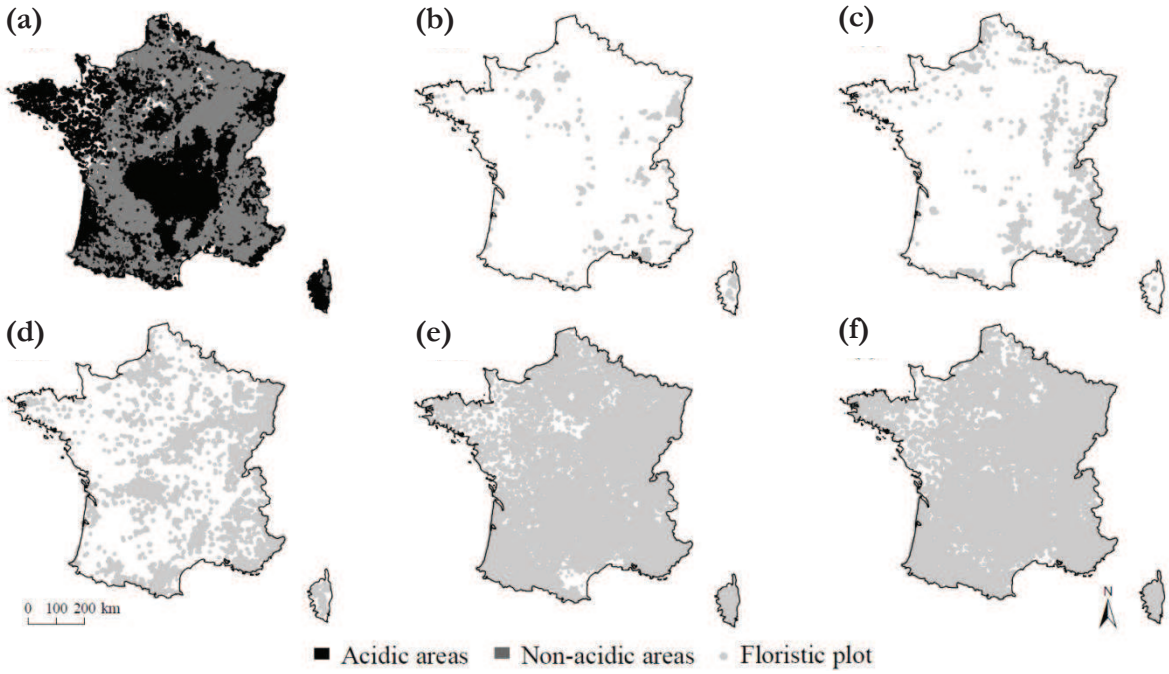


Figure 3-1 Spatial distribution of geological substrates and floristic plots across the French forest territory. **(a)** The spatial distribution of acidic and non-acidic substrates, covering 51% and 49% of forest area, respectively. The spatial distribution of floristic plots over the 20th century: **(b)** first period (1910–1949; mean year of the period= 1933; SD = 9; *n* = 1202), **(c)** second period (1950–1974; mean year of the period = 1966; SD = 6; *n* = 5887), **(d)** third period (1975–1989; mean year of the period = 1984; SD = 4; *n* = 17 161), **(e)** fourth period (1990–2004; mean year of the period = 1997; SD = 4; *n* = 68 925), and **(f)** fifth period (2005–2010; mean year of the period = 2007; SD = 1; *n* = 24 388). Forest cover is based on CORINE Land Cover 2006.

3.3.2 Floristic and environmental data

Three databases of floristic inventories (presence/absence data) were used: EcoPlant(Gégout *et al.*, 2005), Sophy (Brisse *et al.*, 1995), and National Forest Inventory (NFI) (Robert *et al.*, 2010). Together they provided a total of 162 100 floristic plots covering the

entire forested area of France, spanning from 1910 to 2010. They included year and location data with a degree of precision less than 1 km after being spatially georeferenced.

EcoPlant is a phytoecological database including 4913 floristic plots between 1910 and 2010; of which 2854 plots include soil pH measurements. These pH values are pH (H_2O) laboratory values measured from the upper organo-mineral A horizon of sampled soils. Sophy is a phytosociological database that includes 32 330 forest plots from 1915 to 2000. Most sampled plots from these two databases presented an area of 400 m^2, consistent with current phytosociological practice. The NFI database, managed by the French National Forest Inventory, includes 124 857 floristic plots spanning from 1987 to 2009. The NFI sampling method between 1976 to 2004 consisted of covering each French administrative department at a time following a systematic grid (1 x 1 km) and repeating the sampling every 10-12 years (Robert *et al.*, 2010). In 2004, a new sampling method was adopted, covering the whole French forest territory each year. It consists of a systematic grid of 10 x 10 km, which is moved 2 km each year, thereby ensuring 1 km coverage every 10 years (Robert *et al.*, 2010). For the NFI database, all plots consisted of a surface area of 700 m^2. Since each database contains taxonomic and nomenclatural issues, a homogenization procedure was carried out to check and, if necessary, update the names of all plant species. To avoid misidentification issues, we mostly focused on the species level. Due to their short lifespan, high population turnover rate, and likely more reactive response to contemporary global changes (Thimonier *et al.*, 1992; Falkengren-Grerup *et al.*, 2000; Bertrand *et al.*, 2011b), only forest herb species were used to reconstruct spatio-temporal changes in soil acidity.

3.3.3 Training, validation and prediction floristic datasets

The selected floristic plots were divided into 2 datasets: the training, comprising 2854 plots with measured pH values and floristic inventories from EcoPlant database, and the prediction dataset, comprising 159 246 available plots (**Table 3-1**). Floristic plots included in the training dataset were sampled between 1974 and 2010. To minimize the over sampling of some geographic regions and environmental conditions, plots had to be at least 500 m distant from each other. To ensure both a good model fit (which increases with the species frequency; ter Braak, 1995), and the use of a large dataset and pool of species to maximize the spatio-temporal representativeness of our study (which decreases with the species frequency), species with more than five occurrences were selected resulting in a total of 482 forest herb species for calibration.

To define the minimum number of species to consider for inferring the pH value of each floristic plot, an iterative sampling approach was applied over an independent dataset, the 16 x 16 Network or European Network level 1. It was created in 1989 for monitoring forest health, and includes 422 surveys with soil pH measurements and floristic inventories (Badeau et Landmann, 1996). At first, a WA-PLS model was calibrated to link the floristic assemblage of each plot with their corresponding pH measurement. Then, for the iterative approach, a random sampling of species in the plots was defined, with the number of species varying from 1 to 20 species, and iterations repeated 50 times per plot. Finally, for each of these virtual samples bioindicated pH values were predicted from the calibrated WA-PLS model, and R^2 (between predicted and measured pH values) and the root mean square error (RMSE) values were computed. The increase of R^2 and the decrease of RMSE diminish strongly when three or more species were considered, then three species was defined as the minimum number of species per plot to calibrate our predictive model. Thus, the criteria of selection to apply on the different datasets were defined as follows: species with ≥5 occurrences and ≥3 species per plot. When applying them on the training data set 2327 (81.5%) of the initial 2854 plots were selected and used to calibrate the model for inferring pH values from floristic assemblages (**Table 3-1**).

To assess the performance of the model to infer soil pH from the forest herb assemblages in an independent dataset, plots from the16 x 16 Network were used as the validation dataset. Bioindicated pH values were computed from 326 plots (of the initial 422 plots) that met the defined criteria of selection (**Table 3-1**).

The prediction dataset was used to reconstruct pH trends between 1910 and 2010, considering the defined periods (**Fig. 3-1b, c, d, e, f**; **Table 3-1**). To avoid overprediction from our model, plots in the prediction dataset that met the defined criteria of selection were selected, resulting in 117 563 (73.8%) of the initial 159 246 floristic plots. Floristic plots from acidic and non-acidic forest areas were well balanced both in the training (n = 1277 and 1050, respectively) and prediction dataset (n = 54 703 and 62 860, respectively). The defined criteria of selection represent a good compromise between quality of the model and the available data for analyses.

Table 3-1 Description of the training, validation, and prediction datasets.

Dataset	Date of collection	Source	Available data	Application	*n*	*n1*
Training	1974-2010	EcoPlant	− Species presence/absence − Soil pH measurements	− To calibrate the WA-PLS model.	2854	2327
Validation	1989-2004	16 x 16 Network	− Species presence/absence − Soil pH measurements	− To define the minimum number of species to consider for inferring the pH value of each floristic plot. − To validate the WA-PLS model.	422	326
Prediction	1910-2010	EcoPlant Sophy NFI	− Species presence/absence	− To compute bioindicated values from herb assemblages and reconstruct the pH trends between 1910 and 2010.	159 246	117 563

n refers to the total number of plots at the origin.

n1 refers to n after filtering plots according the criteria of selection: species with ≥5 occurrences and ≥3 species per plot.

3.3.4 Weighted Averaging Partial Least Squares (WA-PLS) method to infer soil acidity from floristic assemblages

Among several available techniques using biotic data as a tool for reconstructing past environmental variables, WA-PLS is a powerful inverse approach, i.e. that the adjusted model predicts directly environmental variables as a transfer function from species assemblage with some error (Braak et Juggins, 1993; ter Braak *et al.*, 1993; ter Braak, 1995). WA-PLS is appropriated for calibration when the species-environment relations are unimodal (i.e. one optimum in the ecological niche space), and/or the species data are binary (presence/absence) (ter Braak, 1995). WA-PLS is a combination of both weighted averaging (ter Braak et Barendregt, 1986) and PLS methods (ter Braak, 1995). First, the training dataset is transformed to linearize species-environment relations: (i) Species assemblage dataset is weighted by both the number of species per plot and the species frequencies (hereafter x^*), and (ii) Environmental variable is weighted by the number of species per plot (hereafter y^*). Second, a PLS regression is conducted on the transformed training dataset to fit linear combinations (*f()* or principal components of the PLS) of the predictors (x^*) so as to maximize the prediction of the environmental variable: $y^* = f(x^*) + error$. PLS regression produces an initial component as a set of coefficients, or weighted averages of the species optima with respect to a given environmental variable. The second and further components are selected by optimizing the prediction of the environmental variable (y^*) as for the first component, and use the residual structure in the data to improve the estimates of the species optima (each new component is orthogonal to the previous one) (ter Braak, 1995; Brady *et al.*, 2010). The number of components that gives the best transfer function requires an examination of performance statistics generated by leave-one-out cross-validation (Birks, 1998; Brady *et al.*, 2010), and a confirmation on an independent dataset (ter Braak, 1995). Third, postprocessing transformation of the results of the PLS regression is required to predict values of the environmental variables (for more details read Braak et Juggins, 1993; ter Braak *et al.*, 1993; ter Braak, 1995). WA-PLS is a training procedure that has already been successfully used in pollen and species assemblages analyses to reconstruct past climatic conditions (Pla et Catalan, 2005; Bertrand *et al.*, 2011b).

Here, the WA-PLS approach was used to infer soil pH from the herb assemblages. A WA-PLS model was calibrated linking the floristic assemblage (among a pool of 482 species) of each of the 2327 plots in the training dataset with their corresponding measured pH value

(**Table 3-1**). A 5-component WA-PLS model was selected on the basis of its low standard deviation of the prediction error (SD = 0.59), low bias (mean of prediction error [bioindicated – measured pH] = 0.01 pH units) and high coefficient of determination between observed and predicted values on the validation dataset (R^2 = 0.80; **Fig. 3-2**). Using the prediction dataset, the pH values were inferred from the species assemblages for each floristic plot based on the calibrated 5-component WA-PLS model.

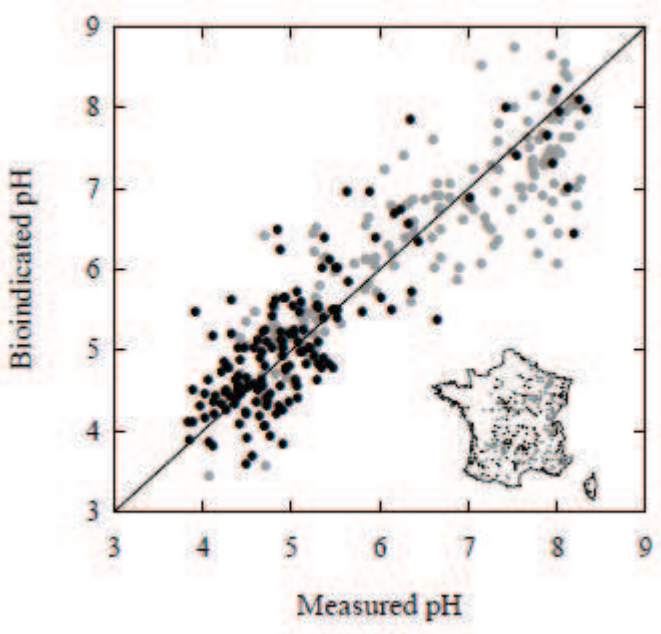


Figure 3-2 Relationship between measured pH values and bioindicated pH values (predicted from the 5-component WA-PLS model) from the validation dataset (R^2 = 0.80; mean difference = 0.01 pH units; SD = 0.59; n = 326 surveys). Black and gray points represent the spatial distribution of surveys in acidic and non-acidic areas, respectively. Solid black line represents the perfect adjustment between measured pH and bioindicated pH ($y = x$). WA-PLS = weighted averaging partial least squares.

3.3.5 Temporal sampling for analysis of acidity trends

To highlight the soil acidity changes over time, the prediction dataset was divided into five periods considering the significance of air pollution between 1910 and 2010 as well as the data availability (**Table 3-2**). The first period (1910–1949; hereafter 1933) was defined as the earliest period, with a mean acidifying deposition of approximately 570 mg S m^{-2} and 562 mg N m^{-2} (EMEP, 2011). Data from EcoPlant and Sophy databases were used (**Fig. 3-1b**). The second period (1950–1974; hereafter 1966) has been described as a period of high air pollution in Europe (on average 1291 mg S m^{-2} and 1051 mg N m^{-2} deposited) (EMEP, 2011) affecting

forest ecosystems. Data from EcoPlant and Sophy databases were used (**Fig. 3-1c**). The third period (1975–1989; hereafter 1984) was defined as a period of control of S deposition, thanks to the implementation of environmental measures (i.e., Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, Geneva, 1979); however, atmospheric pollution continues. Data from EcoPlant, Sophy, and NFI databases were used (**Fig. 3-1d**). The fourth period (1990–2004; hereafter 1997) was defined as a period of reduction of N deposition into a lesser extent than that observed for S. Data from EcoPlant, Sophy, and NFI databases were used (**Fig. 3-1e**). The fifth period (2005–2010; hereafter 2007) was defined as a period of continued reduction of S and no change or even a trend toward increase of N deposition. Data from EcoPlant and NFI databases were used (**Fig. 3-1f**).

3.3.6 Sampling for analysis of temporal acidity trends by matching data

To reconstruct long-term changes in soil acidity, and in the absence of permanent surveys, a method that allows the comparison of floristic plots over time was used. First, the floristic plots collected most recently (i.e. 2007 period) were defined as the "reference" data which represents a large number of available floristic plots well distributed across French forest territory (**Fig. 1f**). The 93 175 remaining floristic plots spanning from 1933 to 1997 were defined as "former" data and used to compute soil pH changes regarding the "reference" plots. To control for the potential effect of spatial variability on our assessment of soil pH changes between periods (as described below), 10% of "reference" data were extracted randomly to provide "control" plots (2435 plots). Consequently, 21,953 "reference" plots were used in the matching process (**Table 3-2**).

The method used to compute temporal soil acidity changes consisted of matching each plot from the 1933, 1966, 1984, and 1997 periods (i.e. "former" data) with the nearest plot from the "reference" data, with both plots located on the same substrate. The nearest neighbor was determined by computation of the Euclidean distance (d) between floristic plots. The pH change was computed for each pair ($\Delta pH = pH_{reference} - pH_{former}$) and separate analyses using matched floristic plots were conducted for both acidic and non-acidic forest areas.

Because we aimed to minimize the ΔpH between matched plots due to geographical distance, the "reference" plots were used to explore the spatial autocorrelation between pH values. Then, a threshold of distance was defined to select plots sufficiently closed to each other to allow strong temporal analyses. The spatial autocorrelation between pH values with respect to

the substrate was analyzed using variograms (Fortin et Dale, 2005; Gribov *et al.*, 2006). Considering the variogram outputs, a threshold of distance less than 5 km between "former" and "reference" plots was selected because pH values within this radius were spatially autocorrelated. Considering this comparative distance radius, a total of 77 607 matched plots were obtained, of which 34 524 were situated in acidic areas (median d_{acidic} [1st to 3rd quartile] = 2.6 [2.0–4.5] km) and 43 083 in non-acidic areas (median $d_{non\text{-}acidic}$ [1st to 3rd quartile] = 2.4 [2.0–4.0] km) (**Table 3-2**). The statistical significance of the ΔpH between periods [ΔpH_p *vs.* ΔpH_{p+1}] and the statistical significance of the ΔpH of a period *per se* [ΔpH_p *vs.* $\Delta pH = 0$] (with p defining a period) were both tested using Wilcoxon Rank Sum test ($P < 0.05$).

To assess the validity of our method, distinguishing temporal and geographical variations, the "control" plots were matched to the nearest "reference" plot (as described above). Considering the threshold of distance less than 5 km between "control" and "reference" plots, a total of 2037 matched plots were obtained, of which 896 were situated in acidic areas and 1141 in non-acidic areas (**Table 3-2**). As each pair consisted of two floristic plots belonging to the 2007 period, no differences of pH within "control"-"reference" pairs were expected in the absence of sampling bias in our matching method. The ΔpH did not significantly differ from 0, as shown here, in either acidic (mean ΔpH = -0.001 pH units [SE = 0.03], P = 0.877) or non-acidic areas (mean ΔpH = -0.011 pH units [SE = 0.03], P = 0.631). Further, the median distances between "control"-"reference" pairs was 2.8 km in both acidic and non-acidic forest areas, which is comparable with distances calculated between "former" and "reference" matched plots (see above). Hence, the suitability of our method was validated, indicating no spatial bias.

Table 3-2 Description of the prediction* dataset used in the analysis of temporal pH trends by matching data.

Subdataset	Period of analysis	*n2*	Substrate	*n3*	Subdataset	Period of analysis	Mean year	*n2*
Reference (exclude 10% of control plots)	2005-2010	21 953	Matching "former"-"reference"		Former	1910-1949	1933	1202
			Acidic	34 524		1950-1974	1966	5887
			Nonacidic	43 083		1975-1989	1984	17 161
						1990-2004	1997	68 925
			Matching "control"-"reference"					
			Acidic	896	Control	2005-2010	2007	2435
			Nonacidic	1141				

* Prediction dataset includes only plots meeting the criteria of selection: species with ≥5 occurrences and ≥3 species per plot (i. e. *n1*=117 563; Table 3-1).
n2 refers to the numbers of plots in the subdataset by period.
n3 refers to the number of matched plots, by substrate, and after filtering considering the threshold of distance of ≤5 km between matched plots.

3.3.7 Sampling for analysis of the spatial variation of acidity in forest soils

To visualize where changes in soil acidity had occurred across the French forest territory, the temporal reconstruction of acidity trends was complemented with a spatial reconstruction. The floristic plots of the prediction dataset were mapped, differentiating both acidic and non-acidic areas and considering the 1933, 1966, 1984, 1997, and 2007 periods. Spatial reconstructions were based on the 50 x 50 km EMEP grid (EMEP, 2011) to facilitate the spatial comparison with deposition data (Simpson *et al.*, 2003). A total of 319 grid cells cover Metropolitan France. For each grid cell and period, mean pH values were computed based on at least five plots (threshold determined arbitrarily). Then, the ΔpH between periods was calculated for cells with pH values in both compared periods. Separate analyses were conducted for acidic and non-acidic forest areas. The statistical significance of the pH changes by cell between compared periods [$\Delta pH_{i,p}$ *vs.* $\Delta pH_{i,p+1}$] (with i defining a cell with pH values in both compared periods and p defining a period) was tested using Wilcoxon Rank Sum test ($P < 0.05$).

All models and statistical analyses were performed in the R environment (R Development Core Team, 2011). We used the "pls" package (Mevik et Wehrens, 2007) and personal codes to calibrate and predict pH values. We used ArcGIS and its Geostatistical Analyst extension for spatial and geostatistical analysis (version 9.3.1; ESRI Inc., Redlands, CA, USA).

3.4 Results

3.4.1 Analysis of temporal acidity trends by matching data

The reconstructed trends showed different intensities of ΔpH and lagged responses between acidic and non-acidic forest areas over time. In acidic areas, a significant mean decrease of 0.38 pH units [SE = 0.03] ($P < 0.001$) was observed between the 1933 and 2007 periods. From 1933 to 1984 periods, we observed the highest significant decrease (mean ΔpH = -0.34 pH units [SE = 0.03], $P < 0.001$; **Fig. 3-3a**). Then, a slow decrease of bioindicated pH was observed until the 2007period that was not statistically significant (mean ΔpH = -0.04 pH units [SE = 0.02], $P = 0.465$; **Fig. 3-3a**). In non-acidic areas, a significant mean decrease of 0.19 pH units [SE = 0.02] ($P < 0.001$) was observed between the 1933 and 1997 periods,

which was stronger between 1984 and 1997 (**Fig. 3-3b**). Then, a slight but significant increase was observed until the 2007 period (mean ΔpH = +0.07 pH units [SE = 0.018], P = 0.018; **Fig. 3-3b**) leading to a ΔpH = -0.12 pH units [SE = 0.04], P = 0.029) between the 1933 and 2007 periods.

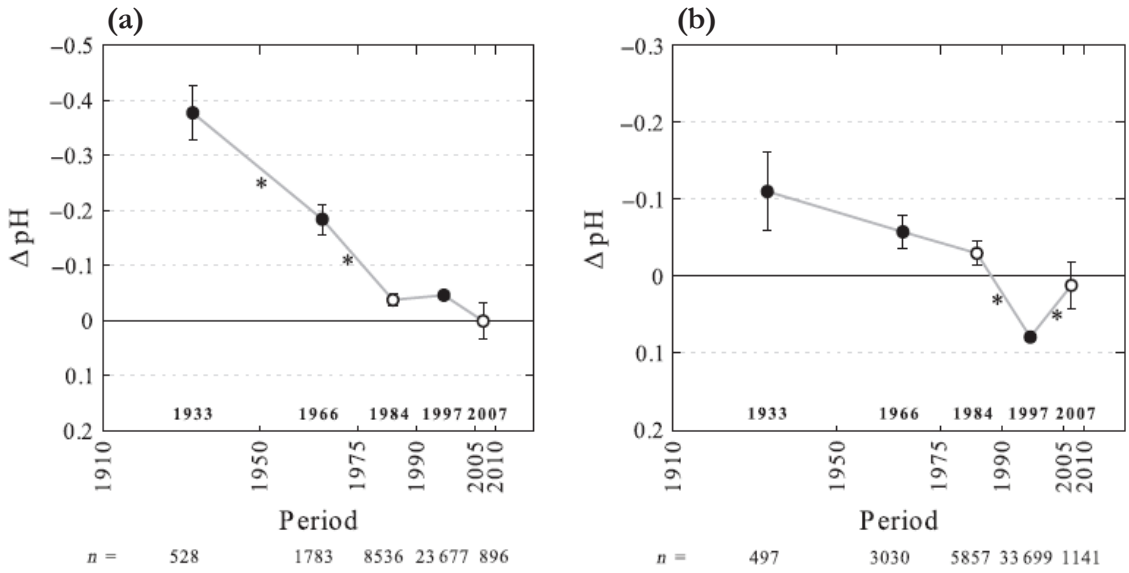


Figure 3-3 Comparison of temporal bioindicated pH changes ($\Delta pH = pH_{reference} - pH_{former}$) in French forest soils between 1910 and 2010. Trends inferred from forest herbs communities **(a)** in acidic areas and **(b)** in non-acidic areas. Mean values of the pH changes are shown (circles) with standard error (error bars) estimated from the samples of each defined period to reconstruct acidity trends. The statistical significance of the pH change of a period *per se* is displayed by closed circles ($P < 0.05$). The statistical significance of the pH changes between periods is displayed by asterisks ($P < 0.05$). The Wilcoxon Rank Sum test was applied. Bold dates above the *x*-axis are the mean year of each defined period. The number of surveys (n) analyzed in each period for acidic and non-acidic areas is displayed below.

3.4.2 Analysis of spatial variation of acidity in forest soils

Spatial patterns of acidification were assessed analyzing pH changes by substrate. No clear geographical trend was distinguished over time in acidic areas. The pH changes were difficult to interpret when comparing 1933 to 1966 (**Fig. 3-4a**) and 1966 to 1984 periods (**Fig. 3-4b**) due to the low number of grid cells available for comparison. However, almost three-fold more cells demonstrated a pH decrease compared to those showing an increase when comparing 1966 and 1984 periods (n = 16 and 6 cells, respectively; **Fig. 3-4b**). Northeastern France (mainly represented by the Vosges Mountains) was highlighted in this comparison as suffering acidification (**Fig. 3-4b**). A well-balanced geographical distribution of ΔpH was

found when comparing 1984 and 1997 periods (n = 30 and 27 cells for decreasing and increasing pH, respectively). Neither a marked trend nor a regional pattern of the effect of acidification on forest plants was observed (**Fig. 3-4c**). The pH changes when comparing 1997 and 2007 periods demonstrated a general trend toward stabilization, as already observed in our temporal trends (**Fig. 3-4d**). A predominant pattern of no change (n = 217 of 259 total cells) was observed, as well as a slow pH decrease in the Central Massif region (n = 11 of 16 total cells exhibiting a minor decrease trend).

By contrast, well-defined geographic patterns were observed over time in non-acidic areas, highlighting a regional pattern of acidification, except when comparing 1933 and 1966 periods due to their low number of grid cells available for comparison (**Fig. 3-4e**). The pH changes between 1966 and 1984 periods indicated a pH decline in the north of France (n = 18 cells), a steady state in the south (n = 7 cells), and a pH increase in the Jura and Alps mountains (n = 9 cells; **Fig. 3-4f**). When comparing the 1984 and 1997 periods, ΔpH demonstrated a generalized acidification in the center and north of France, which tended to become blurred toward southeastern France regarding the previously compared periods. Grid cells showing a pH decrease prevailed in the comparison with respect to cells showing an increase (n = 41 and 17 cells, respectively; **Fig. 3-4g**). Between the 1997 and 2007 periods, a slight pH increase was observed generally in eastern France (n = 25 of 30 total cells exhibiting a minor increase trend). The majority of grid cells demonstrated no significant changes between the 1997 and 2007 periods (n = 161 cells of 208 total cells) in the non-acidic forest areas (**Fig. 3-4h**).

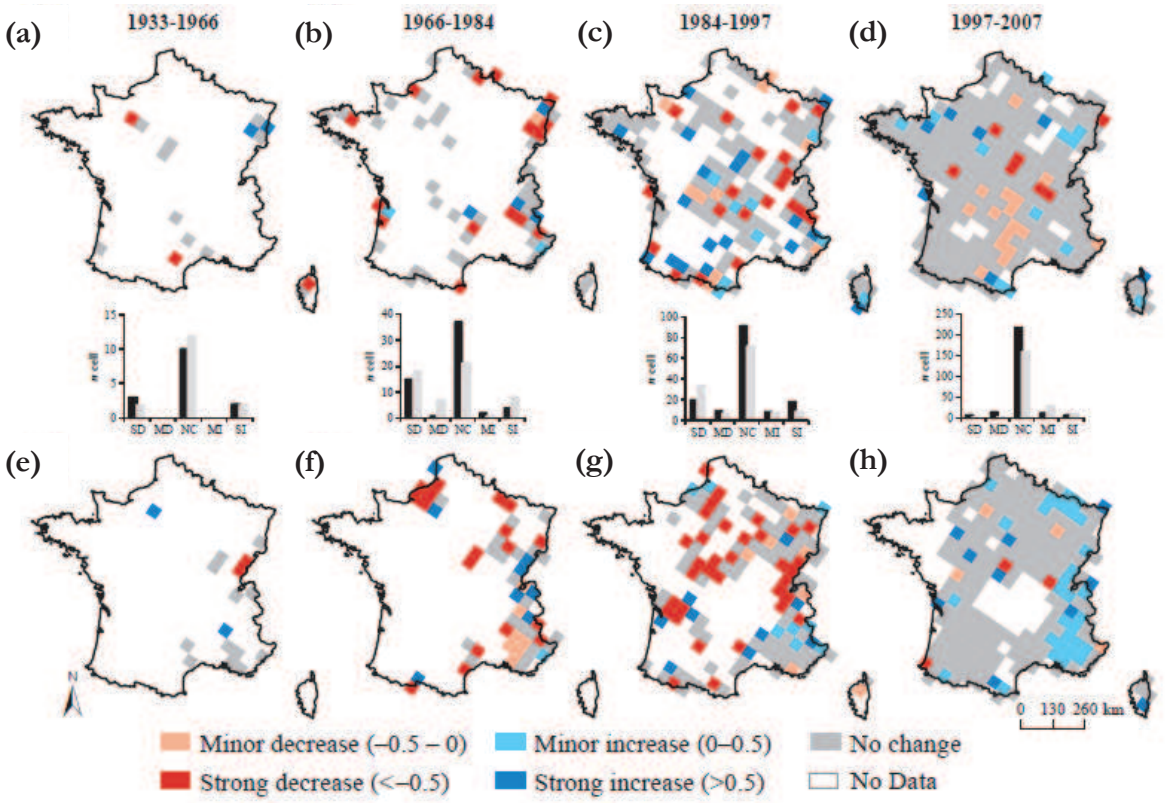


Figure 3-4 Comparison of spatio-temporal bioindicated pH changes ($\Delta pH = pH_{reference} - pH_{former}$) in French forest soils. Mean values of pH changes between compared periods (displayed in the up of the figure) and per cell are shown (**a, b, c, d**) in acidic forest areas and (**e, f, g, h**) in non-acidic forest areas. The statistical significance of the pH changes between periods ($P < 0.05$) is displayed by graduated shades of red for decreasing pH, graduated shades of blue for increasing pH and gray color for non significant changes. Wilcoxon Rank Sum test was applied. White indicates no data. The histograms represent the number of grid cells between compared periods for acidic (black bars) and non-acidic areas (light gray bars) showing a strong decrease (SD), minor decrease (MD), no change (NC), minor increase (MI), and strong increase (SI) of soil pH.

To determine whether the spatial changes of S and N deposition based on the EMEP data matched the changes in the bioindicated pH, their relationships was calculated. In general, no spatial relationship between changes in S and N deposition and changes in pH inferred by bio-indication was observed, neither in acidic nor in non-acidic areas (**Table 3-3**).

Table 3-3 Relationship between S and N deposition changes and bioindicated pH change by compared periods. Coefficient of determination (R^2) and their significance are given. *P* represents the probability values of the relationship. Significant R^2 values are displayed in bold ($P < 0.05$).

	Acidic				Nonacidic			
	S		N		S		N	
	R^2	*P*	R^2	*P*	R^2	*P*	R^2	*P*
1966-1933	0.010	0.749	0.022	0.628	0.008	0.746	0.003	0.844
1984-1966	0.033	0.186	0.004	0.663	0.046	0.117	**0.072**	0.047
1997-1984	**0.037**	0.027	0.025	0.070	0.001	0.801	0.004	0.496
2007-1997	0.004	0.359	0.002	0.501	0.000	0.796	0.010	0.182

3.5 Discussion

3.5.1 On the method

Our approach to monitoring changes in soil pH mainly depends on the relationship between soil acidity and the plant species that structure forest communities. We argue that this approach is pertinent because forest ecosystems are mainly nutrient constrained (Tamm, 1991), and nutrient resources are an important dimension in the ecological niches of species (e.g. Bertrand *et al.*, 2011a) and on species composition (e.g. Ellenberg *et al.*, 1992). The changes of environmental and nutritional conditions over the time and space have been determined in limited numbers from measurements and over short and recent periods. To track these changes over the long-term, the floristic inventories, which represent a large spatio-temporal database, have been used (Van Landuyt *et al.*, 2008; Verheyen *et al.*, 2012). Ellenberg indicator values have been widely and effectively used to infer soil pH from vegetation (Diekmann et Dupré, 1997; Duprè *et al.*, 2010) and to examine spatial patterns and temporal changes of vegetation in response to acidifying deposition (Diekmann et Dupré, 1997).

Although the Ellenberg approach is conceptually equivalent to the WA-PLS approach used in the present study (ecological niche concept, ter Braak, 1995), it is not in fact strictly comparable. Ellenberg indicator values are discrete values of environmental requirements for plant species based on expert knowledge (Ellenberg *et al.*, 1992). By contrast, the approach used in our work directly focuses on the plant community response to pH gradient and is based on robust statistical methods that allow continuous pH values to be predicted. The

important response of herb species to soil pH was supported by the high R^2 obtained when inferring the pH values from herb assemblages based on a WA-PLS model (R^2 = 0.80, SD = 0.59 for the validation dataset).

The temporal comparison of non-permanent plots is challenged by the required management of spatial variability in the data to avoid confounding results. The large number of both "former" and "reference" plots that we used and the low distance (≤ 5 km) between matched plots are likely to minimize bias in assessing the changes in forest soil acidity from floristic assemblages. Finally, the validation results that we obtained through the "control" plots confirm that the differences observed in our reconstructed pH trends were not biased by geographical variability. This approach, with a large quantity of indirect pH measurements spanning a long period of time, complements the permanent plots approach characterized by the spanning of a short period of time and limited survey locations with accurate direct measurements.

3.5.2 Toward a recovery time from acidification

A key finding of our study is the steady and/or increasing soil pH trends over the last decades in acidic and non-acidic forest areas, respectively. This result is consistent with atmospheric deposition trends, which demonstrated a peak in the 1980s followed by a decrease and stabilization of S and N deposition, respectively (Galloway, 2001). The observed recovery in areas of higher pH and cation exchange capacity in the last decades could be attributed to a quicker replenishment of base cations, as highlighted by O'Sullivan *et al.* (2011). Through experimental data in grasslands these authors reported a rapid recovery response in soil N cycling processes of limestone grassland within five years after the cessation of treatments, implying acidifying N inputs (O'Sullivan *et al.*, 2011). Similarly, Emmett *et al.* (2010) reported results from repeated soil surveys across the United Kingdom with a continuous increase in soil pH of less acidic mineral soils from 1978 to 2007. This recovery observed in less acidic soils and based on measurements of permanent plots as well as the recovery reported by Kirk *et al.* (2010) in England and Wales are consistent with our findings. They differ in the intensity of sampling, the covered area, and the measured variables: directly measured soil pH and bioindicated soil pH. The response of both measured and bioindicated pH was reported in a site in the United Kingdom and also showed a recovery of measured soil pH but not of plant response (McGovern *et al.*, 2011). Using a very large dataset composed of

thousands of floristic plots, the present study has demonstrated that both acidification in acidic and non-acidic soils are possible and have occurred throughout the 20th century, and highlighted the first evidence inferred from forest herb assemblages, to our knowledge, that soil pH may be entering a recovery period in the western part of continental Europe. Even if a return to unpolluted conditions may not be achieved in the foreseeable future (Power *et al.*, 2006), our findings highlight the trend toward a recovery from acidification after a period of intense atmospheric pollution.

In the other hand, the magnitude of our bioindicated pH changes in acidic forest areas is consistent with suggested changes determined through soil chemical analyses in smaller acidic areas and over shorter periods, for example the Flanders region (North Belgium) and the Eastern Carpathians, over 50 and 60 years, respectively (De Schrijver *et al.*, 2006; Sebesta *et al.*, 2011). It is also consistent with the recent stability of measured pH observed in permanent acidic plots in the United Kingdom (Emmett *et al.*, 2010; Kirk *et al.*, 2010).

Spatially, our findings confirm the entrance into a recovery period during the last decades with an increased proportion of areas with no pH change, as well as highlight the high spatial variability of pH change. Within the non-acidic forest areas, the significant recent pH increase in eastern France is consistent with the recent decrease of S and, to a lesser extent, N deposition in this region and the increase of base cation as demonstrated by Croisé *et al.* (2005). In the case of acidic areas, we found a spatial trend toward stabilization when comparing the 1997 and 2007 periods and a slight and regionalized pH decrease. This latter was observed at the Central Massif region (central south of France), where the highest sulfur, nitrate and ammonium deposits were reported in the late 1990s (Croisé *et al.*, 2005) compared with the other French regions. As reported by Kirk *et al.* (2010) in acidic soils there will be a rise in pH following decreases in acid deposition, until the balance between $H+$ consumption in weathering and H^+ production in other processes in the soil is restored.

3.5.3 Lagged response and lower magnitude of pH change in non-acidic forest areas

We found three principal differences between temporal trends of non-acidic and acidic areas: a significant low increase since the 1997 period *vs.* a steady status of soil pH (discussed above), a lower pH decrease (-0.12 *vs.* -0.38 pH units between 1933 and 2007), and a greater lag time for a significant response (1984-1997 *vs.* 1933-1984 periods).

The lower magnitude and lag for a significant response of pH change in non-acidic areas compared to acidic areas are other important insights arising from forest herbs. These patterns may be explained by differences in substrates properties (Ulrich, 1983b; Kirk *et al.*, 2010). In non-acidic areas, the low magnitude (the pH decrease in non-acidic areas was a third of that observed in acidic areas), and late significant pH decrease since the 1984 period could be explained by their natural higher buffer capacity, which delays the response to acidic deposition, and their high base cation status (Ulrich, 1983b). Non-acidic soils are known to be less sensitive to acidification than acidic soils, and limestone is the most important factor counteracting proton input in soils (Reuss et Johnson, 1986; Thimonier *et al.*, 1994). Furthermore, the high acid neutralizing capacity of base-rich areas (Kirk *et al.*, 2010) and the high content of soil carbonates stored in soils (Yang *et al.*, 2012) may limit substantial changes. Even with these favorable characteristics, contrary outcomes have been reported in which limestone grasslands exhibited greater acidification than acidic grasslands (Horswill *et al.*, 2008; Yang *et al.*, 2012). Moreover, the higher nitrification, the higher should be acidification in non-acidic areas as was observed in limestone grasslands in response to N inputs (Horswill *et al.*, 2008). In France, the peak of N deposition has occurred in 1980s (EMEP, 2011). Hence, the coupled effect of high N deposition and high nitrification could explain the lagged acidification in non-acidic areas in comparison with acidic areas.

By contrast, in acidic areas the bioindicated pH decrease demonstrated no lag with respect to the peak of S deposition occurred in 1970s, the point in time when environmental measures were implemented to deal with atmospheric pollution (Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, Geneva, 1979), with the end of the significant pH decrease observed in our study coinciding with the reduction of S deposition since 1980s. Even S and N contribute to acidification, acidification by N is not as direct as acidification by S, since the soil will first accumulate N before nitrification sets in (Dise et Wright, 1995; Horswill *et al.*, 2008). The initial faster and more significant decrease on acidic and nitrogen-poor soils can be explained by their initial weak buffer capacity and higher sensitivity to nutrient cation loss following the addition of acid and N (Ulrich, 1983b; Aber *et al.*, 1998).

Another likely interpretation of the lagged response in non-acidic areas could be a slower species reshuffling. However, numerous experimental studies about flora reaction to liming or acidification reported the rapid response of plant species. They have shown that responses of plant assemblages occurred around the five years following the treatment (Fehlen et Picard, 1994; Hallbäcken et Zhang, 1998; Dulière *et al.*, 1999; Spiegelberger *et al.*, 2006). It has been

reported that species respond to soil pH in accordance with their field distribution, which means that experimentation was generally in good agreement with field experience (Falkengren-Grerup et Tyler, 1993). Even so, there is no indication that the rate of response varies depending on the pH level. Regardless the substrate, plant communities are composed by specialist species for which a small variation in pH conditions would lead a reshuffling of plant communities.

3.5.4 Atmospheric deposition changes vs. bioindicated pH changes: no strong spatial relationship

Atmospheric deposition has exerted well-evidenced effects on forests (Blake *et al.*, 1999; De Schrijver *et al.*, 2006). EMEP model data (Simpson *et al.*, 2003) shows a spatial trend for S and N deposition, with minor deposition and changes in the south and the highest observed deposition in the northern half of France, which is not related to our spatial results of pH changes achieved through analyses of herb assemblages. The lack of relationship may be due to the use of bio-indication to infer soil pH, which can differ in time and magnitude from a modeling of soil pH *per se*, and the difference between compared scales (i.e. floristic plots which depict local change in soil conditions *vs.* 50 x 50 km grid). Evaluating more detailed information, the spatial distribution of bulk deposition modeled for France based on the 10 x 10 km grid (Croisé *et al.*, 2005) showed particularities that were also highlighted in our spatial outcomes such as higher altitudes as zones of higher deposition and acidification, which is the case of Central Massif and Cevennes regions.

In conclusion, this study evidences spatio-temporal changes in French forest soil pH highlighting long-term ecosystem acidification and finally a trend toward a stabilization/recovery of soil acidity during the last decades, as revealed by forest herb assemblages. Soils may be recovery slowly, and perhaps incompletely, from the effects of long-term acidification. Due to the absence of measured historical data over a large scale, the use of herb species as indicators of changes in soil conditions and forest status represents an important approach that allows us to go back in time. Because primary data are essential to confirm or deny model outcomes, further efforts should be made to establish and maintain large-scale and long-term worldwide monitoring programs.

3.6 Acknowledgements

We thank A. Probst and L. Galsomies and three anonymous referees for helpful comments; I. Seynave, H. Brisse, P. de Ruffray and J. M. Frémont for contributions to the EcoPlant, Sophy and NFI databases; and all who participated in the conceptions of these databases. The phytoecological database EcoPlant was funded by the National Institute of Rural, Water and Forestry Engineering (ENGREF, AgroParisTech), the National Forest Department (ONF), and the French Environment and Energy Management Agency (ADEME). This study was funded through a Ph.D. grant to G.R.-D. by ADEME and Lorraine Regional Council.

3.7 References

Aber J, McDowell W, Nadelhoffer K et al. (1998) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems. BioScience, 48, 921–934.

Badeau N, Landmann G (1996). Les sols forestiers français: premiers résultats de l'inventaire écologique du réseau européen. Les Cahiers du DSF 1-1996. (La Santé des forêts [France] en 1995). Min. Agri., Peˆche, Alim., DERF, Paris.

Baeten L, Bauwens B, De Schrijver A et al. (2009) Herb layer changes (1954–2000) related to the conversion of coppice-with-standards forest and soil acidification. Applied Vegetation Science, 12, 187–197.

Van Den Berg LJL, Vergeer P, Rich TCG, Smart SM, Guest DAN, Ashmore MR (2011) Direct and indirect effects of nitrogen deposition on species composition change in calcareous grasslands. Global Change Biology, 17, 1871–1883.

Bertrand R, Ge´gout J-C, Bontemps J-D (2011a) Niches of temperate tree species converge towards nutrient-richer conditions over ontogeny. Oikos, 120, 1479–1488.

Bertrand R, Lenoir J, Piedallu C et al. (2011b) Changes in plant community composition lag behind climate warming in lowland forests. Nature, 479, 517–520.

Birks HJB (1998) D.G. Frey and E.S. Deevey Review 1: numerical tools in palaeolimnology – Progress, potentialities, and problems. Journal of Paleolimnology, 20, 307–332.

Birks HJB, Line JM, Juggins S, Stevenson AC, Braak CJFT (1990) Diatoms and pH Reconstruction. Philosophical Transactions of the Royal Society of London. B, Biological Sciences, 327, 263–278.

Blake L, Goulding KWT, Mott CJB, Johnston AE (1999) Changes in soil chemistry accompanying acidification over more than 100 years under woodland and grass at Rothamsted Experimental Station, UK. European Journal of Soil Science, 50, 401–412.

Bobbink R, Hicks K, Galloway J et al. (2010) Global assessment of nitrogen deposition effects on terrestrial plant diversity: a synthesis. Ecological Applications, 20, 30–59.

ter Braak CJF (1995) Non-linear methods for multivariate statistical calibration and their use in palaeoecology: a comparison of inverse (k-nearest neighbours, partial least squares and weighted averaging partial least squares) and classical approaches. Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 28, 165–180.

ter Braak CJF, Barendregt LG (1986) Weighted averaging of species indicator values: its efficiency in environmental calibration. Mathematical Biosciences, 78, 57–72.

Braak CJF, Dam H (1989) Inferring pH from diatoms: a comparison of old and new calibration methods. Hydrobiologia, 178, 209–223.

Braak CJF, Juggins S (1993) Weighted averaging partial least squares regression (WAPLS): an improved method for reconstructing environmental variables from species assemblages. Hydrobiologia, 269–270, 485–502.

ter Braak CJF, Juggins S, Birks HJB, van der Voet H (1993) Weighted averaging partial least squares regression (WA-PLS): definition and comparison with other methods for species-environment calibration. In: Multivariate Environmental Statistics (eds Patil G, Rao C), pp. 525–560. North-Holland, Amsterdam.

Brady TJ, Monleon VJ, Gray AN (2010) Calibrating vascular plant abundance for detecting future climate changes in Oregon and Washington, USA. Ecological Indicators, 10, 657–667.

Braun J (1915) Les Cévennes Méridionales (Massif de l'Aigoual). Etude phytogéographique. Société Générale d'Imprimerie, Genève.

Brisse H, Pd Ruffray, Grandjouan G, Hoff M (1995) European vegetation survey: la banque de données phytosociologiques 'Sophy'. Annali di Botanica, 53, 191–222.

Croisé L, Ulrich E, Duplat P, Jaquet O (2005) Two independent methods for mapping bulk deposition in France. Atmospheric Environment, 39, 3923–3941.

Dengler J, Jansen F, Glo¨ckler F et al. (2011) The Global Index of Vegetation-Plot Databases (GIVD): a new resource for vegetation science. Journal of Vegetation Science, 22, 582–597.

Dentener F, Drevet J, Lamarque JF et al. (2006) Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: a multimodel evaluation. Global Biogeochemical Cycles, 20, 1–21.
Diekmann M (2003) Species indicator values as an important tool in applied plant ecology – a review. Basic and Applied Ecology, 4, 493–506.
Diekmann M, Dupre´ C (1997) Acidification and eutrophication of deciduous forests in northwestern Germany demonstrated by indicator species analysis. Journal of Vegetation Science, 8, 855–864.
Dise NB, Wright RF (1995) Nitrogen leaching from European forests in relation to
nitrogen deposition. Forest Ecology and Management, 71, 153–161.
Driscoll CT, Lawrence GB, Bulger AJ et al. (2001) Acidic deposition in the northeastern United States: sources and inputs, ecosystem effects, and management strategies. BioScience, 51, 180–198.
Dulière J-F, Carnol M, Dalem S, Remacle J, Malaisse F (1999) Impact of dolomite lime on the ground vegetation and on potential net N transformations in Norway spruce (Picea abies (L.) Karst.) and sessile oak (Quercus petraea (Matt.) Lieb.) stands in the Belgian Ardenne. Annals of Forest Science, 56, 361–370.
Duprè C, Stevens CJ, Ranke T et al. (2010) Changes in species richness and composition in European acidic grasslands over the past 70 years: the contribution of cumulative atmospheric nitrogen deposition. Global Change Biology, 16, 344–357.
Ellenberg H, Weber HE, Du¨ ll R, Wirth V, Werner W, Paulissen D (1992) Zeigerwerte von Pfl anzen in Mitteleuropa. Scripta Geobotanica, 18, 1–248.
EMEP (2011) EMEP/MSC-W modelled air concentrations and depositions. Availble at: http://webdab.emep.int/Unified_Model_Results/ (accessed 4 November 2011).
Emmett BA, Reynolds B, Chamberlain PM et al. (2010). Countryside Survey: Soils Report from 2007. Technical Report No. 9/07. NERC, Centre for Ecology & Hydrology, Wallingford.
Falkengren-Grerup U (1986) Soil acidification and vegetation changes in deciduos forest in southern Sweden. Oecologia, 70, 339–347.
Falkengren-Grerup U, Tyler G (1993) Experimental evidence for the relative sensitivity of deciduous forest plants to high soil acidity. Forest Ecology and Management, 60, 311–326.
Falkengren-Grerup U, Ericson L, Gunnarsson U, Nordin A, Rydin H, Wallén B (2000). Does Nitrogen Deposition Change the Flora? Swedish Environmental Protection Agency, Trelleborg.
Fehlen N, Picard JF (1994) Influence de la fertilisation sur la végétation spontanée et la croissance radiale de l'épicéa commun (Picea abies (L) Karst) dans une plantation adulte des Ardennes françaises. Annals of Forest Science, 51, 569–580.
Fortin M-J, Dale M (2005) Spatial Analysis. A Guide for Ecologists. Cambridge University Press, New York.
Galloway JN (1995) Acid deposition: perspectives in time and space. Water, Air, & Soil Pollution, 85, 15–24.
Galloway J (2001) Acidification of the world: natural and anthropogenic. Water, Air, & Soil Pollution, 130, 17–24.
Gégout J-C, Coudun C, Bailly G, Jabiol B (2005) EcoPlant: a forest site database linking floristic data with soil and climate variables. Journal of Vegetation Science, 16, 257–260.
Gilliam FS (2007) The ecological significance of the herbaceous layer in temperate forest ecosystems. BioScience, 57, 845–858.
Gribov A, Krivoruchko K, Ver Hoef JM (2006). Modeling the semivariogram:new approach, methods comparison, and simulation study. In: Stochastic Modeling and Geostatistics: Principles, Methods, and Case Studies, Vol 2 (eds Coburn T,Yarus J, Chambers R) pp. 45–57. The American Association of Petroleum Geologists, Tulsa.
Hallba¨cken L, Zhang L-Q (1998) Effects of experimental acidification, nitrogen addition and liming on ground vegetation in a mature stand of Norway spruce (Picea abies (L.) Karst.) in SE Sweden. Forest Ecology and Management, 108, 201–213.
van der Heijden G, Legout A, Nicolas M, Ulrich E, Johnson DW, Dambrine E (2011) Long-term sustainability of forest ecosystems on sandstone in the Vosges Mountains (France) facing atmospheric deposition and silvicultural change. Forest Ecology and Management, 261, 730–740.
Horswill P, O'Sullivan O, Phoenix GK, Lee JA, Leake JR (2008) Base cation depletion, eutrophication and acidification of species-rich grasslands in response to longterm simulated nitrogen deposition. Environmental Pollution, 155, 336–349.
Keith SA, Newton AC, Morecroft MD, Bealey CE, Bullock JM (2009) Taxonomic homogenization of woodland plant communities over 70 years. Proceedings of the Royal Society B: Biological Sciences, 276, 3539–3544.
Kirk GJD, Bellamy PH, Lark RM (2010) Changes in soil pH across England and Wales in response to decreased acid deposition. Global Change Biology, 16, 3111–3119.
Landmann G (1995) Forest decline and air pollution effects in the french mountains: a synthesis. In Forest Decline and Atmospheric Deposition Effects in the French Mountains (eds. Landmann G, Bonneau M), pp. 407–452. Springer-Verlag, Berlin.
Van Landuyt W, Vanhecke L, Hoste I, Hendrickx F, Bauwens D (2008) Changes in the distribution area of vascular plants in Flanders (northern Belgium): eutrophication as a major driving force. Biodiversity and Conservation, 17, 3045–3060.
McGovern S, Evans CD, Dennis P, Walmsley C, McDonald MA (2011) Identifying drivers of species compositional change in a semi-natural upland grassland over a 40-year period. Journal of Vegetation Science, 22, 346–356.
Mevik B-H, Wehrens R (2007) The pls package: principal component and partial least squares regression in R. Journal of Statistical Software, 18, 1–24.
O'Sullivan OS, Horswill P, Phoenix GK, Lee JA, Leake JR (2011) Recovery of soil nitrogen pools in species-rich grasslands after 12 years of simulated pollutant nitrogen deposition: a 6-year experimental analysis. Global Change Biology, 17, 2615–2628.
Pla S, Catalan J (2005) Chrysophyte cysts from lake sediments reveal the submillennial winter/spring climate variability in the northwestern Mediterranean region throughout the Holocene. Climate Dynamics, 24, 263–278.

Power SA, Green ER, Barker CG, Bell JNB, Ashmore MR (2006) Ecosystem recovery: heathland response to a reduction in nitrogen deposition. Global Change Biology, 12, 1241–1252.
Probst A, Party JP, Fevrier C, Dambrine E, Thomas AL, Stussi JM (1999) Evidence of springwater acidification in the Vosges Mountains (North-East of France): influence of bedrock buffering capacity. Water Air and Soil Pollution, 114, 395–411.
R Development Core Team (2011) R: A Language and Environment for Statistical Computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria.
Rabu D, Chantraine J (2004) Carte géologique de la France a` 1/1 000 000. Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM).
Reuss JO, Johnson DW (1986) Acid Deposition and the Acidification of Soils and Waters. Springer-Verlag, New York, Berlin, Heidelberg, Tokyo.
Robert N, Vidal C, Colin A, Herve´ JC, Hamza N, Cluzeau C (2010) France. In: National Forest Inventories—Pathways for Common Reporting (eds Tomppo E, Gschwantner T, Lawrence M, Mcroberts Re), pp. 207–221. Springer, Heidelberg, Dordrecht, London New York.
De Schrijver A, Mertens J, Geudens G et al. (2006) Acidification of forested podzols in North Belgium during the period 1950–2000. Science of the Total Environment, 361, 189–195.
Sebesta J, Samonil P, Lacina J, Oulehle F, Houska J, Bucek A (2011) Acidification of primeval forests in the Ukraine Carpathians: vegetation and soil changes over six decades. Forest Ecology and Management, 262, 1265–1279.
Simpson D, Fagerli H, Jonson JE, Tsyro S, Wind P, Tuovinen J-P (2003). The Unified EMEP Eulerian Model. Model Description. EMEP MSC-W Report 1/2003, Norwegian Meteorological Institute, Oslo.
Skjelkvåle BL, Stoddard JL, Jeffries DS et al. (2005) Regional scale evidence for improvements in surface water chemistry 1990–2001. Environmental Pollution, 137, 165–176.
Smart S, Robertson JC, Shield EJ, Van de Poll HM (2003) Locating eutrophication effects across British vegetation between 1990 and 1998. Global Change Biology, 9, 1763–1774.
Spiegelberger T, Hegg O, Matthies D, Hedlund K, Schaffner U (2006) Long-term effects of short-term perturbation in a subalpine grassland. Ecology, 87, 1939–1944.
Tamm CO (1991) Nitrogen in Terrestrial Ecosystems: Questions of Productivity, Vegetational Changes and Ecological Stability. Springer-Verlag, Berlin, NY.
Thimonier A, Dupouey JL, Timbal J (1992) Floristic changes in the herb-layer vegetation of a deciduous forest in the Lorraine Plain under the influence of atmospheric deposition. Forest Ecology and Management, 55, 149–167.
Thimonier A, Dupouey J-L, Bost F, Becker M (1994) Simultaneous eutrophication and acidification of a forest ecosystem in North-East France. New Phytologist, 126, 533–539.
Ulrich B (1983) Soil acidity and its relations to acid deposition. In: Effects of Accumulation of Air Pollutants in Forest Ecosystems (eds Ulrich B, Pankrath J), pp. 127–143. Reidel Publishing Company, Dordrecht.
Verheyen K, Baeten L, De Frenne P et al. (2012) Driving factors behind the eutrophication signal in understorey plant communities of deciduous temperate forests. Journal of Ecology, 100, 352–365.
Wamelink W, Goedhart P, Van Dobben H, Berendse F (2005) Plant species as predictors of soil pH: replacing expert judgement with measurements. Journal of Vegetation Science, 16, 461–470.
Yang Y, Ji C, Ma W et al. (2012) Significant soil acidification across northern China's grasslands during 1980s-2000s. Global Change Biology, 18, 2292–2300.

4 ÉVOLUTION SPATIO-TEMPORELLE DE LA DISPONIBILITÉ EN AZOTE DES SOLS FORESTIERS FRANÇAIS AU COURS DU 20ème SIÈCLE À PARTIR DU CARACTÈRE BIO-INDICATEUR DES COMMUNAUTÉS VÉGÉTALES

[ARTICLE 2]

Decreasing before increasing: Evolution of nitrogen availability conditions in French forest ecosystems over the last century according to forest herbs

Gabriela Riofrío-Dillon [1, 2 ,3], Romain Bertrand[1,2,4] & Jean-Claude Gégout[1,2]

Article preparé pour la revue *Environnemental Pollution*

4.1 Abstract

Based on a large number of floristic plots (n = 82 581), the French forest status related to soil nitrogen (N) availability was reconstructed from herb species bio-indication spanning from1910 to 2010. The temporal changes highlighted a decrease in available-N until 1990s in coniferous and broadleaved forests (mean $\Delta C{:}N$=+0.79 and +0.74 C:N units, respectively). It was followed by an increase in available-N until 2010, in both coniferous and broadleaved forests (mean $\Delta C{:}N$=-0.10 and-0.16 C:N units, respectively). Spatially, our results confirm the temporal trends, and highlight the center-to-south of France as mainly impacted by the increased N availability in both forest types. The observed decrease in available-N may be related to acidification impacting on soil processes while the recent increase is consistent with the current cessation of acidification. The past N deposition is still impacting both forest soils and vegetation.

Keywords: bio-indication, C:N ratio, coniferous and broadleaved forests, eutrophication, long term, large scale, spatiotemporal trends, change in plant communities.

Capsule *Forest plants are facing and reflecting human actions over time.*

[1] AgroParisTech, ENGREF, UMR1092 Laboratoire d'Etude des Ressources Forêt-Bois (LERFoB), 14 rue Girardet, F-54000 Nancy, France.

[2] INRA, Centre de Nancy, UMR1092 Laboratoire d'Etude des Ressources Forêt-Bois (LERFoB), F-54280 Champenoux, France.

[3] French Environment and Energy Management Agency, 20 avenue du Grésillé-BP 90406, 49004 Angers Cedex 01, France.

[4] Centre for Biodiversity Theory and Modelling, Experimental Ecology Station, Centre National de la Recherche Scientifique, F-09200, Moulis, France.

4.2 Introduction

Humans activities have transformed the global nitrogen (N) cycle at a record pace (Galloway *et al.*, 2008). Over the last half-century, anthropogenic emissions of nitrogen compounds to the atmosphere have overtook emissions from natural processes (Galloway, 2001), and therefore N deposition has increased worldwide (Aardenne *et al.*, 2001; Bobbink *et al.*, 2010). N is a key element in ecosystems functioning (Vitousek *et al.*, 1997a), and its observed increase over time have widely influenced on terrestrial, freshwaters and marine ecosystems (Aber *et al.*, 1998; Carpenter *et al.*, 1998; Schöpp *et al.*, 2003; Rowe *et al.*, 2006). The nutrient enrichment caused by N deposition has given rise to changes in soil chemistry (Kristensen *et al.*, 2004) which in turn influence on species yield and ground layer vegetation (Falkengren-Grerup et Eriksson, 1990; Falkengren-Grerup *et al.*, 2000). In forest ecosystems, N increase led to changes in N cycling processes (McNulty *et al.*, 1991; O'Sullivan *et al.*, 2011), soil eutrophication and/or acidification (Thimonier *et al.*, 1994; Riofrío-Dillon *et al.*, 2012), tree growth enhancement, higher forest productivity (Solberg *et al.*, 2009; Bontemps *et al.*, 2011), reshuffling of species composition (Smart *et al.*, 2003), species decline and/or loss (Stevens *et al.*, 2004; De Schrijver *et al.*, 2011), and increased plant susceptibility to other biotic or abiotic stress factors (Matson *et al.*, 2002).

After the peak of N deposition in 1980s, and the strengthening of implemented policies to control and reduce emissions of nitrogen oxides in 1988 (http://www.unece.org/env/lrtap/welcome.html), a deposition decrease of approximately 29% et 39% in reduced (NH_y) and oxidized nitrogen (NO_x), respectively, was reported for the period 1990-2010 (EMEP, 2011). In France, N deposition followed the European trend with a reduction of about 13% in NH_y and 34% in NO_x during the period 1990 and 2010 (EMEP, 2011). However, deposition levels of N remains more or less constant on a continuously high level (EMEP, 2011). The effects of the ongoing input of N deposition on ecosystems can still be observed (Bobbink *et al.*, 2010; Thimonier *et al.*, 2010; De Schrijver *et al.*, 2011).

It was suggested that not all ecosystems respond to N deposition similarly. Some of them are more susceptible to excess N (Aber *et al.*, 1989; Matson *et al.*, 2002). Elevated N input over time may lead to increased N concentrations in plants and soils, and thus to a release of protons in the soil solution through ammonium (NH_4^+) uptake or nitrification (Thimonier *et al.*, 2010). Factors as species composition, forest type, soil, climate, N retention capacity, litter quality, land use history contribute to variation in ecosystem responses to N deposition (Fenn *et al.*, 1998; Matson *et al.*, 2002; Emmett, 2007). In Europe, there is large variation in

nutritional conditions across forest, which is not strongly related to current or historic N deposition (Dise *et al.*, 1998). In general, broadleaved forests are more abundant on fertile and N-rich soils, whereas coniferous dominate on less fertile, N-poor soils (Kristensen *et al.*, 2004).

The fact that species respond to environmental conditions (Bobbink *et al.*, 2010) and the limited historical data with measurements of soil parameters highlight the potential usefulness of species composition to bioindicate the environmental status and monitoring its changes over the long-term (Braak et Juggins, 1993; Riofrío-Dillon *et al.*, 2012). Then, because of the powerful ability of plants to indicate the values of environmental variables (Bertrand *et al.*, 2011b; Riofrío-Dillon *et al.*, 2012), significant insight into changes in soil nitrogen availability can be identified using the available floristic data, from forest inventories and/or ancient phytosociological studies, for any time period (cf. Thimonier *et al.*, 1992; Smart *et al.*, 2003). Detecting the effects of N atmospheric deposition on vegetation and soil conditions over the long-term and at large-scale is important to better understand how they are interacting over time and across a large spatial extent (Galloway *et al.*, 2008; Sebesta *et al.*, 2011). It was suggested that the study of temporal changes in species composition over the short-term could provide unclear trends of changes (Thimonier *et al.*, 2012).

Most of the plant biodiversity is represented by the herb layer vegetation in temperate forest ecosystems. It has been showed that herb species have a high sensitiveness to disturbances and therefore a more rapidly and specifically response to them across broad spatial and temporal scales (Falkengren-Grerup *et al.*, 2000; Gilliam, 2007). Then, its dynamics could reflect the evolution of forest status over time (Thimonier *et al.*, 1992; Riofrío-Dillon *et al.*, 2012). Previous studies have shown significant shifts in the forest herb layer due to direct (Maskell *et al.*, 2010; McClean *et al.*, 2011; Bahr *et al.*, 2012) or indirect (through soil mediated effects) effect of N deposition (Stevens *et al.*, 2011a). In France, N deposition has deeply influenced changes in environmental conditions over time. These changes have been inspected through vegetation analyzes from which a simultaneous forest acidification and eutrophication over time have been pointed out (Thimonier *et al.*, 1992; Thimonier *et al.*, 1994). Moreover, it was recently indicated that, at current N deposition levels, forest eutrophication did not slow down and even accelerated since 1991 (Riofrío-Dillon *et al.*, 2013).

Here, we aimed to reconstruct the spatiotemporal changes in soil nitrogen availability, likely due to the effects of N atmospheric deposition, across the entire French forest territory between 1910 and 2010, with respect to the forest type if coniferous or broadleaved forest.

Our study was based on forest herb assemblages and its bioindicator character regarding N availability, evaluated here through the C:N ratio. Our analysis were based in a large number of floristic plots (n = 82 581) well-distributed across the forest territory in Metropolitan France and spanning a 100-year period. If increases in available-N have occurred due to elevated N atmospheric deposition, species assemblages should have reshuffled over time. Then, we assumed that species follow their nutritional requirements changing their geographical distribution in accordance with changes in nutrient soil conditions to conserve in that way their edaphic niche (Bobbink *et al.*, 1998; Turkington *et al.*, 1998; Zechmeister *et al.*, 2007; Horswill *et al.*, 2008; Johansson *et al.*, 2012). The questions we address are: (i) What is the long-term N availability trend in French forests? (ii) At the current level of N atmospheric deposition and considering that they show a decline compared to levels in the 1980s, could changes in soil N availability reflect a decrease in N deposition? (iii) Are spatiotemporal changes in soil N availability related to forest type, whether coniferous or broadleaved? (iv) Is there a regionalized pattern of N availability independent of the forest type?

4.3 Materials and methods

4.3.1 Study area

Our study area is the French forest territory which covers 29.2% of Metropolitan France, i.e. a surface of 161 000 km^2 as determined from the national grid of CORINE Land Cover 2006. French forests are covered by different tree species, which allows the discrimination between pure coniferous and broadleaved forests, and mixed-species forests. Coniferous dominate on less fertile, N-poor soils and are mainly located in mountain range. Broadleaved forests cover more than twice the area of coniferous forests and are mainly located on sites characterized by fertile, N-rich soils (**Fig. 4-1**). Because coniferous and broadleaved forests respond differently to N deposition, these two forest types need to be analyzed separately (Kristensen *et al.*, 2004). The forest cover information was extracted from CORINE land cover grid 1990 and 2006 to define the forest type according the year of sampling of floristic plots. Then, the plots sampled before 1990 were classified according CORINE land cover grid 1990, and forest plots sampled after 1990 were classified according CORINE land cover grid 2006.

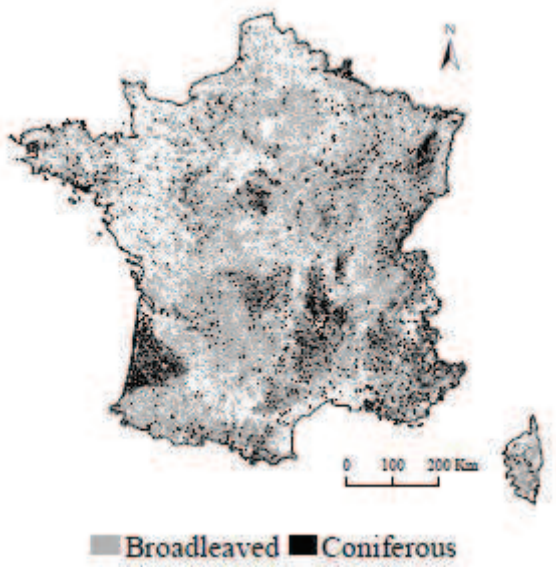


Figure 4-1 Spatial distribution of coniferous and broadleaved forests across Metropolitan France. Coniferous forests cover 22% of forest territory, and broadleaved forests cover 56% of forest territory. Mixed forests (nor represented) cover the remaining 22% of forest territory. Forest cover is based on CORINE Land Cover 2006.

Atmospheric deposition has affected the French forest territory over the 20th century (Landmann, 1995). A low N deposition occurred during the first half of the 20th century, and a strong anthropogenic deposition occurred since 1950, ranging from 343 mg NH_y m^{-2} and 108 mg NO_x m^{-2} in 1910 to maximal values of 730 mg NH_y m^{-2} and763 mg NO_x m^{-2} in 1980s (EMEP, 2011).

4.3.2 Floristic and environmental data

Three databases of floristic inventories with presence/absence data were used: EcoPlant (Gégout *et al.*, 2005), Sophy (Brisse *et al.*, 1995), and National Forest Inventory (Robert *et al.*, 2010). Together they provided a total of 113 406 floristic plots covering the coniferous or broadleaved forest area in France, spanning from 1910 to 2010. They included year and location data with a degree of precision less than 1 km after being spatially georeferenced.

EcoPlant is a phytoecological database including 4544 floristic plots between 1910 and 2010; of which 2483 plots include soil C:N measurements. C and N were measured in the laboratory from the upper organo-mineral A horizon of sampled soils. Total nitrogen and organic carbon were determined by Kjeldahl and Anne methods, respectively (Kjeldahl, 1883; Anne, 1945).

Sophy is a phytosociological database that includes 24 850 coniferous or broadleaved forest plots from 1915 to 2000. Most sampled plots from these two databases presented an area of 400 m^2, consistent with current phytosociological practice. The NFI database includes 84 012 floristic plots spanning from 1987 to 2009 (Robert *et al.*, 2010), which consisted of a surface area of 700 m^2. Given that each database contains taxonomic and nomenclatural issues, a homogenization procedure was carried out to check and update the names of all plant species. To avoid misidentification issues, we mostly focused on the species level. Due to their short lifespan, high population turnover rate, and likely more reactive response to contemporary global changes (Falkengren-Grerup *et al.*, 2000; Bertrand *et al.*, 2011b; Riofrío-Dillon *et al.*, 2012), only forest herb species were used to reconstruct spatiotemporal changes in N availability.

4.3.3 Training, validation and prediction floristic datasets

The selected floristic plots were divided into 2 datasets: the training, comprising 2483 plots with measured C:N values and floristic inventories from EcoPlant database, and the prediction dataset, comprising 110 923 available plots only with floristic inventories (**Fig. 4-2a**). Floristic plots included in the training dataset were sampled between 1965 and 2010. To minimize the over sampling of some geographic regions and environmental conditions, plots had to be at least 500 m distant from each other. To ensure both a good model fit (which increases with the species frequency; ter Braak, 1995), and the use of a large dataset and pool of species to maximize the spatiotemporal representativeness of our study, species with more than five occurrences were selected resulting in a total of 451 forest herb species for calibration (**Fig. 4-3**).

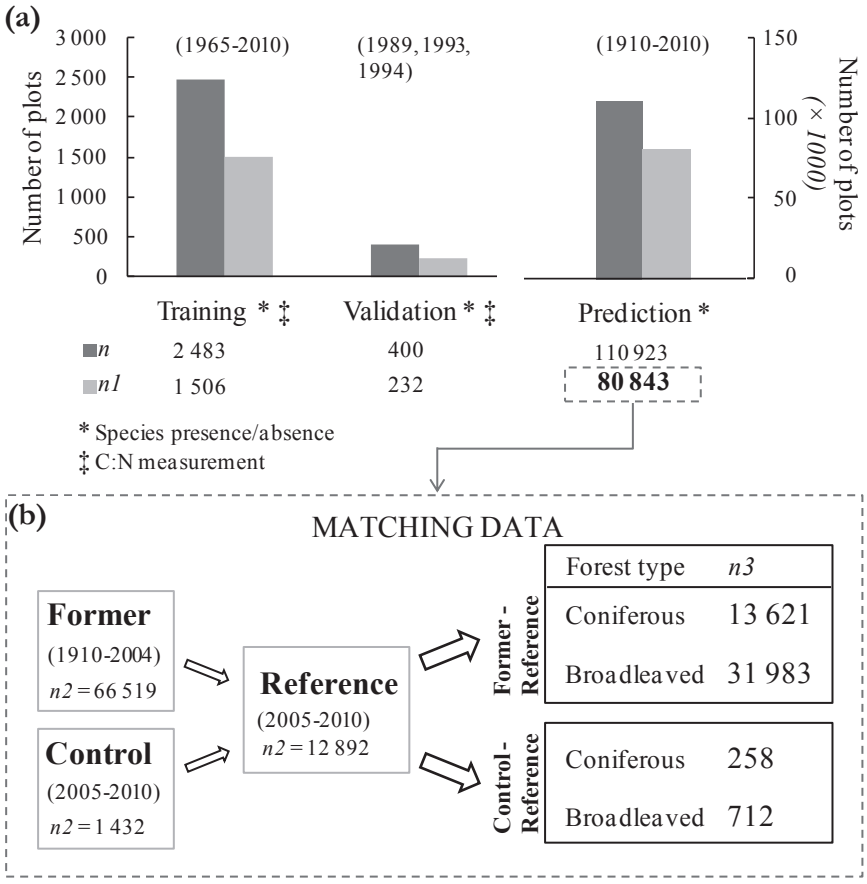


Figure 4-2 Synthetic representation of the different datasets. **(a)** Available information and initial and final number of plots in the training, validation and prediction datasets. **(b)** Scheme of the matching data process in the analysis of temporal C:N trends based on the prediction dataset. *n* = refers to the total initial number of plots, *n1* = refers to *n* after filtering plots according to the criteria of selection: species with ≥5 occurrences and ≥3 species per plot, *n2* = refers to the number of plots in the prediction subdatasets, *n3* = refers to the number of matched plots analyzed according to the forest type, and after filtering considering the threshold of distance of ≥3.5 km between matched plots.

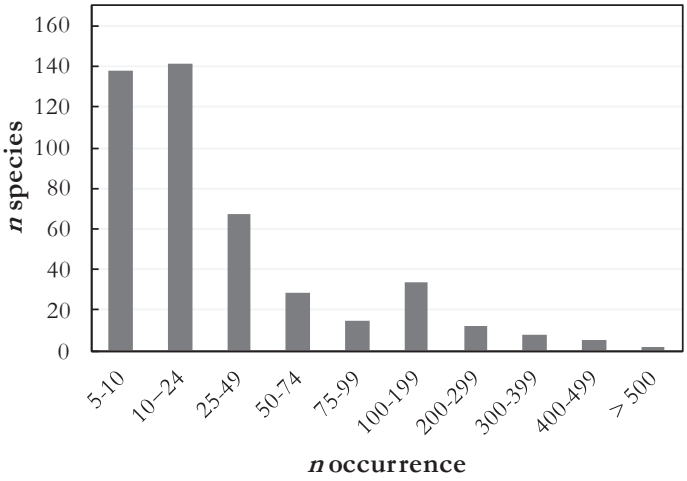


Figure 4-3 Histogram of occurrence of the 451 forest herb species (with ≥5 occurrences in the training dataset) used for calibrating a WA-PLS model.

Following Riofrío-Dillon *et al.* (2012), we used a minimum number of three species per plot with at least 5 occurrences into the database for calibrating our predictive model and inferring the C:N value of each floristic plot. These criteria led to a selection of 1506 (60.7%) of the initial 2483 plots of the training dataset that were used to calibrate the model for inferring C:N values from floristic assemblages (**Fig. 4-2a**). To assess the performance of the model to infer soil C:N from the forest herb assemblages with an independent dataset, French plots from the16 x 16 km Network (Badeau et Landmann, 1996) were used as the validation dataset. Bioindicated C:N values were computed from 232 plots (of the initial 400 plots) that met the defined criteria of selection (**Fig. 4-2a**). The prediction dataset was used to reconstruct nitrogen availability trends between 1910 and 2010, considering the defined periods (see below, subsection "*Temporal sampling for analysis of nitrogen availability trend*"). To avoid overprediction from our model, plots in the prediction dataset that met the defined criteria of selection were selected, resulting in 80 843 (72.9%) of the initial 110 923 floristic plots (**Fig. 4-2a**).

4.3.4 Weighted Averaging Partial Least Squares (WA-PLS) method to infer soil N availability from floristic assemblages

Among several available techniques using biotic data as a tool for reconstructing past environmental variables, WA-PLS is a powerful inverse approach, i.e. that the adjusted model predicts directly environmental variables as a transfer function from species assemblage with some error (ter Braak & Juggins, 1993; ter Braak *et al.*, 1993; ter Braak, 1995). WA-PLS is

appropriated for calibration when the species-environment relations are unimodal (i.e. one optimum in the ecological niche space), and/or the species data are binary (presence/absence) (ter Braak, 1995). WA-PLS is a combination of both weighted averaging (ter Braak & Barendregt, 1986) and PLS methods (ter Braak, 1995). It can be summarized as follows:

(i) The training dataset is first transformed to linearize species-environment relationship: species assemblage dataset is weighted by both the number of species per plot and the species frequencies (x^*), and the environmental variable is weighted by the number of species per plot (y^*).

(ii) A PLS regression is conducted on the transformed training dataset to fit linear combinations (*f()* or principal components of the PLS) of the predictors (x^*) so as to maximize the prediction of the environmental variable: $y^* = f(x^*) + error$. PLS regression produces an initial component as a set of coefficients, or weighted averages of the species optima with respect to a given environmental variable. The second and further components are selected by optimizing the prediction of the environmental variable (y^*) as for the first component, and use the residual structure in the data to improve the estimates of the species optima (each new component is orthogonal to the previous one) (ter Braak, 1995; Brady *et al.*, 2010). The number of components that gives the best transfer function requires an examination of performance statistics generated by leave-one-out cross-validation (Birks, 1998; Brady *et al.*, 2010), and a confirmation on an independent dataset (ter Braak, 1995).

(iii) Postprocessing transformation of the results of the PLS regression is required to predict values of the environmental variables (for more details read ter Braak & Juggins, 1993; ter Braak *et al.*, 1993; ter Braak, 1995). WA-PLS is a training procedure that has already been successfully used in pollen and species assemblages analyses to reconstruct past climatic (Pla & Catalan, 2005; Bertrand *et al.*, 2011b) and edaphic conditions (Riofrío-Dillon *et al.*, 2012).

Here, the WA-PLS approach was used to infer soil available-N from herb assemblages. A WA-PLS model was calibrated linking the floristic assemblage (among a pool of 451 species) of each of the 1506 plots in the training dataset with their corresponding measured C:N value. A 5-component WA-PLS model was selected on the basis of its standard deviation of the prediction error (SD = 3.13), low bias (mean of prediction error [bioindicated – measured C:N] = -0.07 C:N units) and coefficient of determination between observed and predicted values on the validation dataset (r^2 = 0.31; **Fig. 4-4**). Using the prediction dataset, the C:N

values were inferred from the species assemblages for each floristic plot based on the calibrated 5-component WA-PLS model.

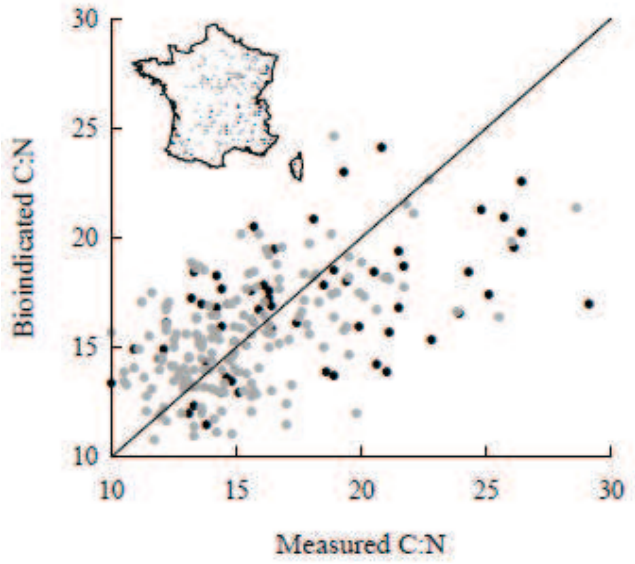


Figure 4-4 Relationship between measured C:N values and bioindicated C:N values (predicted from the 5-component WA-PLS model) from the validation dataset (r^2 = 0.31; mean difference = -0.07 C:N units; SD = 3.13; n = 232 surveys). Black and gray points represent the spatial distribution of surveys in coniferous and broadleaved forests, respectively. Solid black line represents $y = x$. WA-PLS = Weighted Averaging Partial Least Squares.

4.3.5 Temporal sampling for analysis of N availability trend

To determine changes in the soil N availability over time, the prediction dataset was divided into five periods considering the significance of air pollution between 1910 and 2010 as well as the data availability. The first period (1910–1949, n = 1043 plots; hereafter 1933) was defined as the earliest period, with a mean deposition of approximately 379 mg NH_y m^{-2} and 179 mg NO_x m^{-2} (EMEP, 2011). Data from EcoPlant and Sophy databases were used. The second period (1950–1974, n = 5186 plots; hereafter 1966) has been described as a period of increasing N pollution (on average 521 mg NH_y m^{-2} and 458 mg NO_x m^{-2} deposited) (EMEP, 2011). Data from EcoPlant and Sophy databases were used. The third period (1975–1989, n = 14 324 plots; hereafter 1984) was defined as a period of the highest N atmospheric deposition. Moreover, at that time environmental policies were implemented to control air pollution (i.e., Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, Geneva, 1979). Data from EcoPlant, Sophy, and the national forest inventory databases were used. The fourth period (1990–2004, n = 45 966 plots; hereafter 1997) was defined as a period of slight

reduction of N deposition. Data from EcoPlant, Sophy, and the national forest inventory databases were used. The fifth period (2005–2010, n = 14 324 plots; hereafter 2007) was defined as a period of no change in N deposition, remaining however high. Data from EcoPlant and the national forest inventory databases were used.

4.3.6 Sampling for analysis of temporal N availability trends by matching data

To reconstruct long-term changes in soil available-N, and in the absence of permanent surveys, a method that allows the comparison of floristic plots over time was used (cf. Riofrío-Dillon *et al.*, 2012). The floristic plots collected most recently (i.e. 2007 period) were defined as the "reference" data which represents a large number of available floristic plots well distributed across French forest territory. The 66 519 remaining floristic plots spanning from 1910 to 2004 (i.e. from 1933 to 1997 periods) were defined as "former" data and used to compute soil C:N changes regarding the "reference" plots. To control for the potential effect of spatial variability on our assessment of soil C:N changes between periods (as described below), 10% of "reference" data were extracted randomly to provide "control" plots (1432 plots). Consequently, 12 892 "reference" plots were used in the matching process (**Fig. 4-2b**).

The method used to compute temporal changes in soil available-N consisted of matching each plot from the 1933, 1966, 1984, and 1997 periods (i.e. "former" data) with the nearest plot from the "reference" data, with both plots located on the same forest type. The nearest neighbor was determined by computation of the Euclidean distance (d) between floristic plots. The C:N change was computed for each pair ($\Delta C{:}N = C{:}N_{reference} - C{:}N_{former}$) and separate analyses using matched floristic plots were conducted for both coniferous and broadleaved forests.

Because we aimed to minimize the $\Delta C{:}N$ between matched plots due to geographical distance, the "reference" plots were used to explore the spatial autocorrelation between C:N values. Then, a threshold of distance was defined to select plots sufficiently closed to each other to allow strong temporal analyses. The spatial autocorrelation between C:N values with respect to the forest type was analyzed using variograms (**Fig. 4-5a, b**) (Fortin et Dale, 2005; Gribov *et al.*, 2006). Considering the variogram outputs, a threshold of distance less than 3.5 km between "former" and "reference" plots was selected because C:N values within this radius were spatially autocorrelated. Considering this comparative distance radius, a total of 45 604 matched plots were obtained, of which 13 621 were situated in coniferous forests (median

$d_{coniferous}$ [1st to 3rd quartile] = 1.8 [1.1–2.5] km) and 31 983 in broadleaved stands (median $d_{broadleaved}$ [1st to 3rd quartile] = 1.8 [1.0–2.4] km) (**Fig. 4-2b**). The statistical significance of the $\Delta C{:}N$ between periods [$\Delta C{:}N_t$ vs. $\Delta C{:}N_{t+1}$] and the statistical significance of the $\Delta C{:}N$ of a period per se [$\Delta C{:}N_t$ vs. $\Delta C{:}N = 0$] (with t defining a period) were both tested using Wilcoxon Rank Sum test ($p < 0.05$).

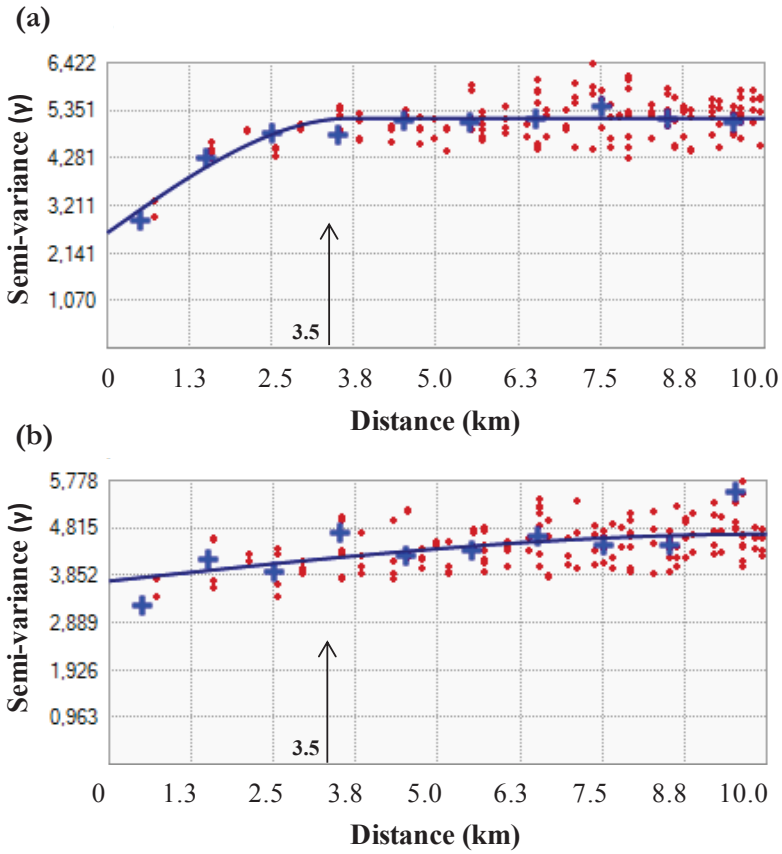


Figure 4-5 Variogram for the "reference" floristic plots in **(a)** coniferous and **(b)** braodleaved forests in France. The solid blue line describes a fitted spherical model. The threshold of distance selected because C:N values within this radius were spatially autocorrelated is indicated by arrows (i.e., 3.5 km).

To assess the validity of our method, distinguishing temporal and geographical variations, the "control" plots were matched to the nearest "reference" plot (as described above). Considering the threshold of distance less than 3.5 km between "control" and "reference" plots, a total of 970 matched plots were obtained, of which 258 were located in coniferous forests and 712 in broadleaved forests (**Fig. 4-2b**). As each pair consisted of two floristic plots belonging to the 2007 period, no differences of C:N within "control"-"reference" pairs were expected in the absence of sampling bias in our matching method. In according with this

expectation, the $\Delta C{:}N$ did not significantly differ from 0, in either coniferous (mean $\Delta C{:}N$ = 0.13 C:N units [SE = 0.22], p = 0.446) or broadleaved forests (mean $\Delta C{:}N$ = 0.02 C:N units [SE = 0.11], p = 0.727). Further, the median distances between "control"-"reference" pairs was 2.0 km in both coniferous and broadleaved forests, which is comparable with distances reported between "former" and "reference" matched plots. Hence, the suitability of our method was validated, indicating no spatial bias.

4.3.7 Sampling for analysis of the spatial variation of N availability in forest soils

To visualize where changes in soil available-N had occurred across the French forest territory, the temporal reconstruction of N availability trends was complemented with a spatial reconstruction. The floristic plots of the prediction dataset were mapped, differentiating both coniferous and broadleaved forests and considering the 1933, 1966, 1984, 1997, and 2007 periods. Spatial reconstructions were based on the 50 x 50 km EMEP grid (EMEP, 2011). A total of 319 grid cells cover Metropolitan France. For each grid cell and period, mean C:N values were computed based on at least five plots (threshold determined arbitrarily). Then, the $\Delta C{:}N$ between periods was calculated for cells with C:N values in both compared periods. Separate analyses were conducted for coniferous and broadleaved forests. The statistical significance of the C:N changes by cell between compared periods [$\Delta C{:}N_{i,t}$ *vs.* $\Delta C{:}N_{i,t+1}$] (with i defining a cell with C:N values in both compared periods, and t defining a period) was tested using Wilcoxon Rank Sum test ($p < 0.05$).

All models and statistical analyses were performed in the R environment (R Development Core Team). We used the "pls" package (Mevik & Wehrens, 2007) and personal codes to calibrate and predict C:N bioindicated values. We used ArcGIS and its Geostatistical Analyst extension for spatial and geostatistical analysis (version 10.1; ESRI Inc., Redlands, CA, USA).

4.4 Results

4.4.1 Analysis of temporal N availability trends by matching data

The reconstructed trends of $\Delta C{:}N$ showed similar magnitudes of change between coniferous and broadleaved forests over time. In coniferous forests, a significant mean increase of +0.79 C:N units [SE = 0.12] ($p < 0.01$) was observed between the 1933 and 1997

periods. The highest significant increase was observed from 1966 to 1984 periods (mean $\Delta C{:}N$ = +0.38 C:N units [SE = 0.08], $p < 0.01$; **Fig. 4-6a**). Between 1997 and 2007 periods, a slow decrease in bioindicated C:N ratio was observed that was not statistically significant (mean $\Delta C{:}N$ = -0.10 C:N units [SE = 0.13], $p = 0.643$; **Fig. 4-6a**). In broadleaved forests, a significant mean C:N increase of +0.74 C:N units [SE = 0.07] ($p < 0.001$) was observed between the 1933 and 1997 periods (**Fig. 4-6b**). The highest significant increase was observed between 1933 and 1966 periods (mean $\Delta C{:}N$ = +0.49 C:N units [SE = 0.11], $p < 0.001$). Then, a slight non significant decrease was observed until the 2007 period (mean $\Delta C{:}N$ = -0.16 C:N units [SE = 0.06], $p = 0.182$; **Fig. 4-6b**).

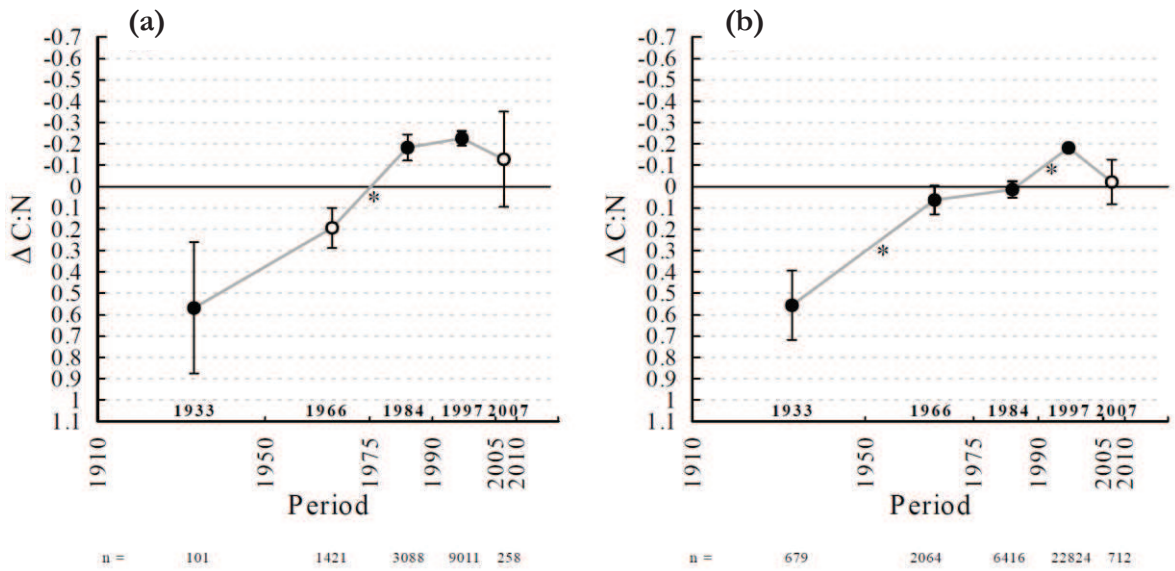


Figure 4-6 Temporal bioindicated C:N changes ($\Delta C{:}N = C{:}N_{reference} - C{:}N_{former}$) between 1910 and 2010 in **(a)** coniferous and **(b)** broadleaved forests. Mean values of the C:N changes are shown (circles) with standard error (error bars) estimated from the samples of each defined period to reconstruct N availability trends. The statistical significance of the C:N change of a period *per se* is displayed by closed circles ($p < 0.05$). The statistical significance of the C:N changes between periods is displayed by asterisks ($p < 0.05$). The Wilcoxon Rank Sum test was applied. Bold dates above the *x*-axis are the mean year of each defined period. The number of matched records (*n*) analyzed in each period for coniferous and broadleaved forests is displayed below.

4.4.2 Analysis of spatial variation in N availability in forest soils

Spatial patterns of eutrophication were assessed analyzing C:N changes by forest type. No clear geographical trend was distinguished over time in coniferous forests. The C:N changes were difficult to interpret when comparing 1933 to 1966 period due to the low

number of grid cells available for comparison (**Fig. 4-7a**). A well-balanced geographical distribution of Δ*C:N* was found when comparing 1966 to 1984 period (n = 8 and 7 cells for decreasing and increasing C:N, respectively). Eastern France (Jura and Alps mountains mainly) was highlighted in this comparison as suffering an increase in available-N while a pre-Alps area in the South of Grenoble city exhibited a decrease in available-N (**Fig. 4-7b**). When comparing 1984 to 1997 period a regional C:N increase was observed in Southeastern France. Contrary, an available-N increase was identified in western coastal areas and in the Central Massif region (**Fig. 4-7c**). Between the 1997 and 2007 periods, a C:N decrease was mainly observed in center-eastern France (n = 16 of 24 total cells exhibiting a decrease trend), and also in Pyrenees Mountains. The majority of grid cells demonstrated no significant changes between the 1997 and 2007 periods (n = 107 cells of 136 total cells) in the coniferous forests (**Fig. 4-7d**).

With respect to broadleaved forests, regionalized geographic patterns of available-N changes were observed over time. A pattern of available-N increase was mainly detected in the center and south of France while a pattern of available-N decrease was mainly detected in the center and north of the country over the 20th century. When comparing 1933 to 1966 period, and 1966 to 1984 period, C:N changes were difficult to interpret due to their low number of grid cells available for comparison (**Fig. 4-7e, f**, respectively). However, the C:N changes between 1966 and 1984 periods indicated a C:N increase in the north of France (n = 12 of 17 total cells exhibiting a change in C:N in the North of France, **Fig. 4-7f**). When comparing 1984 to 1997 periods, Δ*C:N* demonstrated a generalized eutrophication in the center and south of France. A contrary trend was observed in the center and north, i.e., a trend toward a decrease in available-N (**Fig. 4-7g**). Between the 1997 and 2007 periods, a predominant pattern of no change (n = 215 of 249 total cells) was observed in broadleaved forests. In addition, an increase in available-N in center-southern areas (west of Central Massif, Pyrenees Mountains and southeast of France), and a decrease in available-N in the north were still identified (**Fig. 4-7h**).

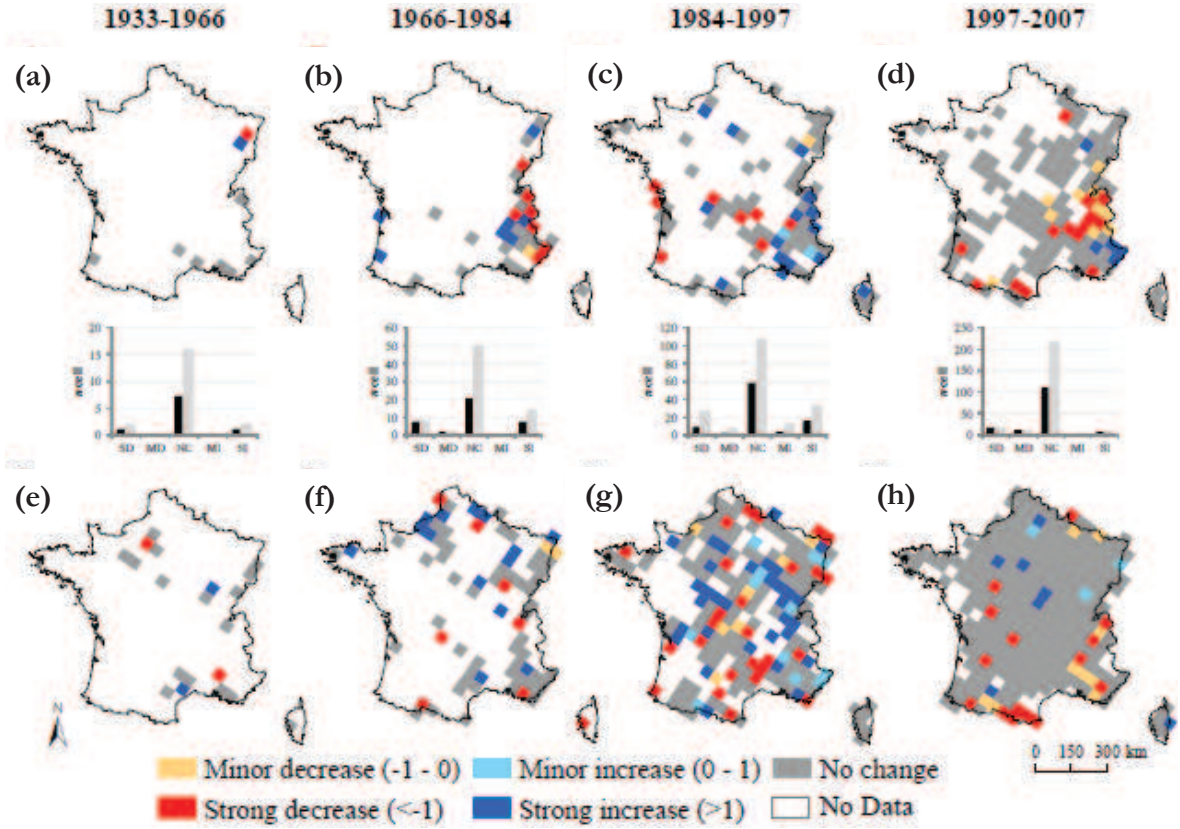


Figure 4-7 Comparison of spatiotemporal bioindicated C:N changes ($\Delta C{:}N$ = $C{:}N_{reference}$ – $C{:}N_{former}$) in (**a, b, c, d**) coniferous and (**e, f, g, h**) broadleaved forests. Mean values of C:N changes between compared periods (displayed in the up of the figure) and per cell are shown. The statistical significance of the C:N changes between periods ($p < 0.05$) is displayed by graduated shades of red for decreasing C:N, graduated shades of blue for increasing C:N and gray color for non significant changes. Wilcoxon Rank Sum test was applied. White indicates no data. The histograms represent the number of grid cells between compared periods for coniferous (black bars) and broadleaved forests (gray bars) showing a strong decrease (SD), minor decrease (MD), no change (NC), minor increase (MI), and strong increase (SI) of soil C:N.

4.5 Discussion

4.5.1 On the indicator of N availability and the method

Nutrient resources, including N which is constraining element in forest ecosystems (Tamm, 1991), represent an important dimension in the ecological niche of species (Bertrand *et al.*, 2011a), and on species composition (Ellenberg *et al.*, 1992). The carbon-to-nitrogen ratio is thought to be an indicator of the amount of inorganic N in soils which is available for plant uptake and leaching (Gundersen *et al.*, 1998; Emmett, 2007; Nave *et al.*, 2009), a key diagnostic

factor of ecosystem response to N addition (Adams *et al.*, 2004), a variable that provides information on the relative change in C and N storage in soils (Nave *et al.*, 2009; Emmett *et al.*, 2010), and an important parameter in soil chemistry models (Emmett, 2007). Soil C:N has also been used to understand the relationship between the N retention capacity of the soil and the potential for NO_3^- leaching from forest systems (Dise *et al.*, 1998; Gundersen *et al.*, 1998; MacDonald *et al.*, 2002). Furthermore, soil C:N ratio, in combination with soil pH, has been suggested to be strongly related to plant community composition (Andrianarisoa *et al.*, 2009).

In the other hand, bulk soil properties as C:N ratio has been reported to be a poor predictor of changes in plant species composition (Emmett *et al.*, 2010), increased N availability which drives changes in species richness (Stevens *et al.*, 2004), and deposition rate (Stevens *et al.*, 2011b). It could be due to shifts in the form of N used by plants, delayed changes in bulk soil C:N as N deposition increases (Emmett, 2007), variability in organic matter content in soils (Stevens *et al.*, 2004), and/or increases in soil C relative to soil N (Stevens *et al.*, 2011b). If soil C:N ratio is used as an indicator for N status or nitrate leaching risk, it should be related to decomposed material accumulated above the mineral soil as suggested by Gundersen et al. (1998).

With respect to the method, our approach for monitoring changes in N availability is based on the relationship between organo-mineral soil C:N and plant species. Given the high responsiveness of plants to nutrient-richer conditions (Bobbink *et al.*, 1998; Turkington *et al.*, 1998; Zechmeister *et al.*, 2007; Horswill *et al.*, 2008; Johansson *et al.*, 2012), we argue that our approach is pertinent. However, the observed response of herb species to N availability is hardly supported by the r^2 obtained when inferring C:N values from herb assemblages (r^2 = 0.31, SD = 3.13 for the validation dataset). This low adjustment between measured and bioindicated values could be most probably related to imprecise C:N measurements in the training and/or validation datasets. It could also be explained by differences in sampling soil horizon whether the organic or mineral horizon (cf. Kristensen *et al.*, 2004; Nave *et al.*, 2009). If different definitions of the upper soil horizons have been used in the samplings of the different datasets composing the training dataset, according to depths or horizons, a bias in measured C:N ratio may have occurred (cf. Rowe *et al.*, 2006), creating a noise in the measured-bioindicated C:N relationship.

4.5.2 Decreasing N availability trend across French forest territory

An interesting insight arising from forest herbs related to soil C:N is the trend to decrease in available-N in both coniferous and broadleaved forests until the 1980s and 1990s, respectively. Paradoxically, N deposition widely increased until 1980s. This observed decrease in available-N may be due to a large stock of soil organic C without at the same time building up the soil N content (Nagel *et al.*, 2011; Stevens *et al.*, 2011b). It is possibly related to increased productivity leading to increased litter and/or changes in the decomposition rate of litter (Stevens *et al.*, 2011b). Soils buffer N pollution, particularly when C:N ratios are high and there are large stocks of labile C (Emmett *et al.*, 2010). The decrease in available-N could also be related to soil acidity conditions and nutrient imbalances (Nagel *et al.*, 2011; Stevens *et al.*, 2011b; Blanco *et al.*, 2012). Increased soil acidity, which was identified in French forests until 1990s (Riofrío-Dillon *et al.*, 2012), can influence on changes in nutrient cycling (Johnston *et al.*, 1986; Blanco *et al.*, 2012) and inhibition of microbial and microfaunal decomposer communities, these latter dependent on balanced nutrient soil composition (Baath *et al.*, 1980; Blagodatskaya et Anderson, 1998). Then, changes in microbial communities, as a consequence of soil acidification, have led to reduced litter consumption and decomposition, and to litter accumulation (Baath *et al.*, 1980; Nagel *et al.*, 2011). The reduction in litter consumption and the increased accumulation of organic C may results in reduced mineralization rates, less N released to the soil solution, and therefore reduced N availability (Evans *et al.*, 2006; Nagel *et al.*, 2011; Blanco *et al.*, 2012). Moreover, soil acidification decreases cation exchange capacity and base saturation, and increases the leaching of base cations. These alterations then reduce the amount of available-N for plants uptake (Blanco *et al.*, 2012). Soil C:N exhibit a negative relationship with soil pH (**Fig. 4-8**) which may indicates that the above mentioned changes can be related to acidification impacting on soil processes (cf. Stevens *et al.*, 2011b).

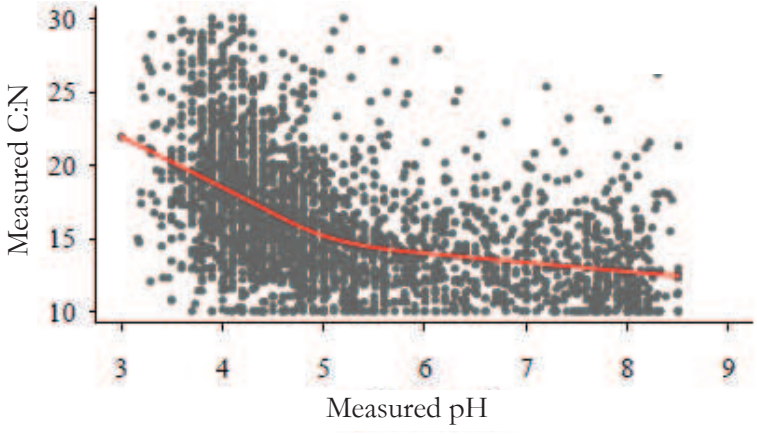


Figure 4-8 Relationship between measured pH and C:N values for the training dataset. Measured values were obtained from EcoPlant database (Gégout *et al.*, 2005).

Spatially, our findings suggest a high spatial variability in changes in N availability in both coniferous and broadleaved forests. They also confirm the available-N decreasing trend until the 1990s in French forest ecosystem. Coniferous forests in the southeast of France and broadleaved forests in the center and north of France have been highlighted as suffering a decrease in N availability. As we argued above, acidification could be related to this observation. In fact, these forest areas were identified as impacted by soil acidification until the 1990s (Riofrío-Dillon *et al.*, 2012).

4.5.3 Signals of eutrophication in coniferous and broadleaved forests

An increasing N availability was observed in coniferous and broadleaved forests from 1990s. In coniferous stands, the first eutrophication signal was even observed since 1980s with the cessation of N availability decrease. It means that soil eutrophication signal in forest herb species is highly time lagged compared to the N deposition trends. Several studies, based on experimentation, modeling or measured data, have reported an increase in available-N (i.e., a soil C:N decrease or increases in soil %N) due to elevated N inputs (Power *et al.*, 1998; Evans *et al.*, 2006; Power *et al.*, 2006; Nave *et al.*, 2009). However, it was demonstrated that, depending on the level and duration of inputs as well as on the conditions of the site prior to deposition (e.g. soil nutrient status, buffering capacity, microclimate), species composition and diversity may be altered (Matson *et al.*, 2002; Stevens *et al.*, 2004; Stevens *et al.*, 2011a). Moreover, the amount of N retained in soil and vegetation can affect the duration and strength of the influence of N as a driver of change in ecosystem functioning (Phoenix *et al.*, 2012). Furthermore, in a former study, we observed the cessation of forest acidification from

1990s (Riofrío-Dillon *et al.*, 2012). It could lead to an enhanced litter decomposition and promote a restart in affected soil processes and consequently to an increase in available-N to plants. An increase in N availability in ecosystems suggests that it is moving through the stages of or to a nitrogen saturation as a result of continued high inorganic N deposition (Nagel *et al.*, 2011).

Spatially, our findings confirm the increasing N availability observed in the temporal trends in both coniferous and broadleaved forests. In coniferous forests, the eutrophication signal was identified in the Central Massif and North Alps regions, and the Pyrenees Mountains. In broadleaved forests, it was identified in the center and south of France, i.e., the Central Massif region, southeastern France, the Pyrenees Mountains, and in the Northeastern national limit. The highest nitrate and ammonium deposition levels were reported for these regions in the late 1990s (Croisé *et al.*, 2005), and until mid-2010s they have hardly changed (Croisé et al., not published data).

4.6 Conclusion

Long-term and elevated N deposition have likely influenced soil C:N ratio in coniferous and broadleaved forests during the last time. While some soil conditions are likely entering a recovery time (e.g. soil pH) at the current levels of atmospheric deposition, the eutrophication signal has just been identified in French forests. The observed decrease in available-N may be related to acidification impacting on soil processes while the recent increase, which involves a time lag for eutrophication, is consistent with the current cessation of acidification. Therefore, the past N deposition is still impacting both forest soil and vegetation. It could have important implications in current environmental policies and their current permissible levels.

4.7 Acknowledgements

We thank I. Seynave, H. Brisse, P. de Ruffray and J. M. Frémont for contributions to the EcoPlant, Sophy and NFI databases; and all who participated in the conceptions of these databases. The phytoecological database EcoPlant was funded by the National Institute of Rural, Water and Forestry Engineering (ENGREF, AgroParisTech), the National Forest Department (ONF), and the French Environment and Energy Management Agency (ADEME). The Centre for Biodiversity Theory and Modelling is supported by the TULIP

Laboratory of Excellence (ANR-10-LABX-41). This study was funded through a Ph.D. grant to G.R.-D. by ADEME and Lorraine Regional Council.

4.8 References

Aardenne, J.A.v., Dentener, F.J., Olivier, J.G.J., Klein Goldewijk, C.G.M., Lelieveld, J., 2001. A 1° x 1° resolution data set of historical anthropogenic trace gas emissions for the period 1890-1990. Global Biogeochemical Cycles 15, 909-928.

Aber, J., Aber, J.D., Nadelhoffer, K., Steudler, J.P., Melillo, J.M., 1989. Nitrogen Saturation in Northern Forest Ecosystems. BioScience 39, 378-386.

Aber, J., McDowell, W., Nadelhoffer, K., Magill, A., Berntson, G., Kamakea, M., McNulty, S., Currie, W., Rustad, L., Fernandez, I.J., 1998. Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems. BioScience 48, 921-934.

Adams, M., Ineson, P., Binkley, D., Cadisch, G., Tokuchi, N., Scholes, M., Hicks, K., 2004. Soil Functional Responses to Excess Nitrogen Inputs at Global Scale. AMBIO: A Journal of the Human Environment 33, 530-536.

Andrianarisoa, K.S., Zeller, B., Dupouey, J.L., Dambrine, E., 2009. Comparing indicators of N status of 50 beech stands (Fagus sylvatica L.) in northeastern France. Forest Ecology and Management 257, 2241-2253.

Baath, E., Berg, B., Lohm, U., Lundgren, B., Lundkvist, H., Rosswall, T., Soderstrom, B., Wiren, A., 1980. Effects of experimental acidification and liming on soil organisms and decomposition in a Scots pine forest. Pedobiologia 20, 85-100.

Badeau, N., Landmann, G., 1996. Les sols forestiers français : premiers résultats de l'inventaire écologique du réseau européen. Les Cahiers du DSF 1-1996. (La Santé des forêts [France] en 1995). Min. Agri., Pêche, Alim., DERF, Paris.

Bahr, A., Ellström, M., Schnoor, T.K., Påhlsson, L., Olsson, P.A., 2012. Long-term changes in vegetation and soil chemistry in a calcareous and sandy semi-natural grassland. Flora - Morphology, Distribution, Functional Ecology of Plants 207, 379-387.

Bertrand, R., Gégout, J.-C., Bontemps, J.-D., 2011a. Niches of temperate tree species converge towards nutrient-richer conditions over ontogeny. Oikos 120, 1479-1488.

Bertrand, R., Lenoir, J., Piedallu, C., Riofrío-Dillon, G., de Ruffray, P., Vidal, C., Pierrat, J.-C., Gégout, J.-C., 2011b. Changes in plant community composition lag behind climate warming in lowland forests. Nature 479, 517-520.

Blagodatskaya, E.V., Anderson, T.-H., 1998. Interactive effects of pH and substrate quality on the fungal-to-bacterial ratio and qCO2 of microbial communities in forest soils. Soil Biology and Biochemistry 30, 1269-1274.

Blanco, J.A., Wei, X.H., Jiang, H., Jie, C.Y., Xin, Z.H., 2012. Impacts of enhanced nitrogen deposition and soil acidification on biomass production and nitrogen leaching in Chinese fir plantations. Canadian Journal of Forest Research 42, 437-450.

Bobbink, R., Hicks, K., Galloway, J., Spranger, T., Alkemade, R., Ashmore, M., Bustamante, M., Cinderby, S., Davidson, E., Dentener, F., Emmett, B., Erisman, J.W., Fenn, M., Gilliam, F., Nordin, A., Pardo, L., De Vries, W., 2010. Global assessment of nitrogen deposition effects on terrestrial plant diversity: a synthesis. Ecological Applications 20, 30-59.

Bobbink, R., Hornung, M., Roelofs, J.G.M., 1998. The effects of air-borne nitrogen pollutants on species diversity in natural and semi-natural European vegetation. Journal of Ecology 86, 717-738.

Bontemps, J.-D., Hervé, J.-C., Leban, J.-M., Dhôte, J.-F., 2011. Nitrogen footprint in a long-term observation of forest growth over the twentieth century. Trees - Structure and Function 25, 237-251.

Braak, C.J.F., Juggins, S., 1993. Weighted averaging partial least squares regression (WA-PLS): an improved method for reconstructing environmental variables from species assemblages. Hydrobiologia 269-270, 485-502.

Carpenter, S.R., Caraco, N.F., Correll, D.L., Howarth, R.W., Sharpley, A.N., Smith, V.H., 1998. Nonpoint pollution of surface waters with phosphorus and nitrogen. Ecological Applications 8, 559-568.

CITEPA, 2012. Inventaire des émissions de polluants atmosphériques en France au titre de la Convention sur la Pollution Atmosphérique Transfrontalière à Longue Distance et de la Directive Européenne relative aux plafonds d'émissions nationaux (NEC). CITEPA 956nfr, Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique - CEE-NU, Paris, France.

Croisé, L., Ulrich, E., Duplat, P., Jaquet, O., 2005. Two independent methods for mapping bulk deposition in France. Atmospheric Environment 39, 3923-3941.

De Schrijver, A., De Frenne, P., Ampoorter, E., Van Nevel, L., Demey, A., Wuyts, K., Verheyen, K., 2011. Cumulative nitrogen input drives species loss in terrestrial ecosystems. Global Ecology and Biogeography 20, 803-816.

Dentener, F., Drevet, J., Lamarque, J.F., Bey, I., Eickhout, B., Fiore, A.M., Hauglustaine, D., Horowitz, L.W., Krol, M., Kulshrestha, U.C., Lawrence, M., Galy-Lacaux, C., Rast, S., Shindell, D., Stevenson, D., Van Noije, T., Atherton, C., Bell, N., Bergman, D., Butler, T., Cofala, J., Collins, B., Doherty, R., Ellingsen, K., Galloway, J., Gauss, M., Montanaro, V., Müller, J.F., Pitari, G., Rodriguez, J., Sanderson, M., Solmon, F., Strahan, S., Schultz, M., Sudo, K., Szopa, S., Wild, O., 2006. Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: A multimodel evaluation. Global Biogeochemical Cycles 20, 1-21.

Diekmann, M., 2003. Species indicator values as an important tool in applied plant ecology – a review. Basic and Applied Ecology 4, 493-506.

Dise, N.B., Matzner, E., Forsius, M., 1998. Evaluation of organic horizon C:N ratio as an indicator of nitrate leaching in conifer forests across Europe. Environmental Pollution 102, 453-456.

Dupouey, J.L., Dambrine, E., Laffite, J.D., Moares, C., 2002. Irreversible impact of past land use on forest soils and biodiversity. Ecology 83, 2978-2984.

Ellenberg, H., Weber, H.E., Düll, R., Wirth, V., Werner, W., Paulissen, D., 1992. Zeigerwerte von Pfl anzen in Mitteleuropa. Scripta Geobotanica 18, 1-248.
EMEP, 2011. EMEP/MSC-W modelled air concentrations and depositions. Available at: http://webdab.emep.int/Unified_Model_Results/ (accessed: 04/11/2011).
Emmett, B., 2007. Nitrogen Saturation of Terrestrial Ecosystems: Some Recent Findings and Their Implications for Our Conceptual Framework. Water, Air, & Soil Pollution: Focus 7, 99-109.
Emmett, B.A., Boxman, D., Bredemeier, M., Gundersen, P., Kjønaas, O.J., Moldan, F., Schleppi, P., Tietema, A., Wright, R.F., 1998. Predicting the Effects of Atmospheric Nitrogen Deposition in Conifer Stands: Evidence from the NITREX Ecosystem-Scale Experiments. Ecosystems 1, 352-360.
Emmett, B.A., Reynolds, B., Chamberlain, P.M., Rowe, E., Spurgeon, D., Brittain, S.A., Frogbrook, Z., Hughes, S., Lawlor, A.J., Poskitt, J., Potter, E., Robinson, D.A., Scott, A., Wood, C., Woods, C., 2010. Countryside Survey: Soils Report from 2007. Technical Report No. 9/07 NERC, Centre for Ecology & Hydrology, Wallingford.
Evans, C., Reynolds, B., Jenkins, A., Helliwell, R., Curtis, C., Goodale, C., Ferrier, R., Emmett, B., Pilkington, M., Caporn, S., Carroll, J., Norris, D., Davies, J., Coull, M., 2006. Evidence that Soil Carbon Pool Determines Susceptibility of Semi-Natural Ecosystems to Elevated Nitrogen Leaching. Ecosystems 9, 453-462.
Falkengren-Grerup, U., Ericson, L., Gunnarsson, U., Nordin, A., Rydin, H., Wallén, B., 2000. Does nitrogen deposition change the flora?, in: Bertills, U., Näsholm, T. (Eds.), Effects of Nitrogen Deposition on Forest Ecosystems. Swedish Environmental Protection Agency, Report 5067, Trelleborg, pp. 77-104.
Falkengren-Grerup, U., 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.
Fenn, M.E., Poth, M.A., Aber, J.D., Baron, J.S., Bormann, B.T., Johnson, D.W., Lemly, A.D., McNulty, S.G., Ryan, D.F., Stottlemyer, R., 1998. Nitrogen excess in North American ecosystems: Predisposing factors, ecosystem responses, and management strategies. Ecological Applications 8, 706-733.
Fortin, M.-J., Dale, M., 2005. Spatial Analysis. A Guide for Ecologists. Cambridge University Press, New York.
Galloway, J., 2001. Acidification of the world: Natural and anthropogenic. Water, Air, & Soil Pollution 130, 17-24.
Galloway, J.N., Dentener, F.J., Capone, D.G., Boyer, E.W., Howarth, R.W., Seitzinger, S.P., Asner, G.P., Cleveland, C.C., Green, P.A., Holland, E.A., Karl, D.M., Michaels, A.F., Porter, J.H., Townsend, A.R., Vöosmarty, C.J., 2004. Nitrogen Cycles: Past, Present, and Future. Biogeochemistry 70, 153-226.
Galloway, J.N., Townsend, A.R., Erisman, J.W., Bekunda, M., Cai, Z., Freney, J.R., Martinelli, L.A., Seitzinger, S.P., Sutton, M.A., 2008. Transformation of the Nitrogen Cycle: Recent Trends, Questions, and Potential Solutions. Science 320, 889-892.
Gégout, J.-C., Coudun, C., Bailly, G., Jabiol, B., 2005. EcoPlant: A forest site database linking floristic data with soil and climate variables. Journal of Vegetation Science 16, 257-260.
Gilliam, F.S., 2007. The ecological significance of the herbaceous layer in temperate forest ecosystems. BioScience 57, 845-858.
Gribov, A., Krivoruchko, K., Ver Hoef, J.M., 2006. Modeling the semivariogram: New approach, methods comparison, and simulation study, in: Coburn, T., Yarus, J., Chambers, R. (Eds.), Stochastic modeling and geostatistics: Principles,methods, and case studies, Volume II. The American Association of Petroleum Geologists, Tulsa, pp. 45-57.
Gundersen, P., Callesen, I., de Vries, W., 1998. Nitrate leaching in forest ecosystems is related to forest floor C/N ratios. Environmental Pollution 102, 403-407.
Horswill, P., O'Sullivan, O., Phoenix, G.K., Lee, J.A., Leake, J.R., 2008. Base cation depletion, eutrophication and acidification of species-rich grasslands in response to long-term simulated nitrogen deposition. Environmental Pollution 155, 336-349.
Johansson, O., Palmqvist, K., Olofsson, J., 2012. Nitrogen deposition drives lichen community changes through differential species responses. Global Change Biology 18, 2626-2635.
Johnston, A.E., Goulding, K.W.T., Poulton, P.R., 1986. Soil acidification during more than 100 years under permanent grassland and woodland at Rothamsted. Soil Use and Management 2, 3-10.
Kristensen, H.L., Gundersen, P., Callesen, I., Reinds, G.J., 2004. Throughfall Nitrogen Deposition Has Different Impacts on Soil Solution Nitrate Concentration in European Coniferous and Deciduous Forests. Ecosystems 7, 180-192.
Landmann, G., 1995. Forest Decline and Air Pollution Effects in the French Mountains: A Synthesis, in: Landmann, G., Bonneau, M. (Eds.), Forest Decline and Atmospheric Deposition Effects in the French Mountains. Springer-Verlag, Berlin, pp. 407-452.
Lovett, G.M., Weathers, K.C., Arthur, M.A., 2002. Control of Nitrogen Loss from Forested Watersheds by Soil Carbon:Nitrogen Ratio andTree Species Composition. Ecosystems 5, 0712-0718.
MacDonald, J.A., Dise, N.B., Matzner, E., Armbruster, M., Gundersen, P., Forsius, M., 2002. Nitrogen input together with ecosystem nitrogen enrichment predict nitrate leaching from European forests. Global Change Biology 8, 1028-1033.
Magill, A., H., Aber, J.D., Berntson, G.M., McDowell, W.H., Nadelhoffer, K.J., Melillo, J.M., Steudler, P., 2000. Long-Term Nitrogen Additions and Nitrogen Saturation in Two Temperate Forests. Ecosystems 3, 238-253.
Maskell, L.C., Smart, S.M., Bullock, J.M., Thompson, K.E.N., Stevens, C.J., 2010. Nitrogen deposition causes widespread loss of species richness in British habitats. Global Change Biology 16, 671-679.
Matson, P., Lohse, K.A., Hall, S.J., 2002. The Globalization of Nitrogen Deposition: Consequences for Terrestrial Ecosystems. AMBIO: A Journal of the Human Environment 31, 113-119.
McClean, C.J., van den Berg, L.J.L., Ashmore, M.R., Preston, C.D., 2011. Atmospheric nitrogen deposition explains patterns of plant species loss. Global Change Biology 17, 2882-2892.
McNulty, S.G., Aber, J.D., Boone, R.D., 1991. Spatial changes in forest floor and foliar chemistry of spruce-fir forests across New England. Biogeochemistry 14, 13-29.

Nagel, H.-D., Scheuschner, T., Schlutow, A., Granke, O., Clarke, N., Fischer, R., 2011. 5. Exceedance of critical loads for acidity and nitrogen and scenarios for the future development of soil solution chemistry, in: Fischer, R., Lorenz, M. (Eds.), Forest Condition in Europe, 2011 Technical Report of ICP Forests and FutMon. ICP Forests, Hamburg, pp. 97-112.

Näsholm, T., Persson, T., 2000. How are soils and plants affected by nitrogen deposition? – A synthesis, in: Bertills, U., Näsholm, T. (Eds.), Effects of Nitrogen Deposition on Forest Ecosystems. Swedish Environmental Protection Agency, Report 5067, Trelleborg, p. 160.

Nave, L.E., Vance, E.D., Swanston, C.W., Curtis, P.S., 2009. Impacts of elevated N inputs on north temperate forest soil C storage, C/N, and net N-mineralization. Geoderma 153, 231-240.

O'Sullivan, O.S., Horswill, P., Phoenix, G.K., Lee, J.A., Leake, J.R., 2011. Recovery of soil nitrogen pools in species-rich grasslands after 12 years of simulated pollutant nitrogen deposition: a 6-year experimental analysis. Global Change Biology 17, 2615-2628.

Pearson, R.G., Dawson, T.P., 2003. Predicting the impacts of climate change on the distribution of species: are bioclimate envelope models useful? Global Ecology and Biogeography 12, 361-371.

Phoenix, G.K., Emmett, B.A., Britton, A.J., Caporn, S.J.M., Dise, N.B., Helliwell, R., Jones, L., Leake, J.R., Leith, I.D., Sheppard, L.J., Sowerby, A., Pilkington, M.G., Rowe, E.C., Ashmore, M.R., Power, S.A., 2012. Impacts of atmospheric nitrogen deposition: responses of multiple plant and soil parameters across contrasting ecosystems in long-term field experiments. Global Change Biology 18, 1197-1215.

Power, S.A., Ashmore, M.R., Cousins, D.A., 1998. Impacts and fate of experimentally enhanced nitrogen deposition on a British lowland heath. Environmental Pollution 102, 27-34.

Power, S.A., Green, E.R., Barker, C.G., Bell, J.N.B., Ashmore, M.R., 2006. Ecosystem recovery: heathland response to a reduction in nitrogen deposition. Global Change Biology 12, 1241-1252.

Riofrío-Dillon, G., Bertrand, R., Dupouey, J.-L., Gégout, J.-C., 2012a. Forest eutrophication does not slow down: evidence from the Northeastern France. New Phytologist soumis.

Riofrío-Dillon, G., Bertrand, R., Gégout, J.-C., 2012b. Toward a recovery time: forest herbs insight related to anthropogenic acidification. Global Change Biology 18, 3383-3394.

Rowe, E., Evans, C., Emmett, B., Reynolds, B., Helliwell, R., Coull, M., Curtis, C., 2006. Vegetation Type Affects the Relationship Between Soil Carbon to Nitrogen Ratio and Nitrogen Leaching. Water, Air, & Soil Pollution 177, 335-347.

Rowe, E.C., Emmett, B.A., Frogbrook, Z.L., Robinson, D.A., Hughes, S., 2012. Nitrogen deposition and climate effects on soil nitrogen availability: Influences of habitat type and soil characteristics. Science of The Total Environment 434, 62-70.

Schleppi, P., Hagedorn, F., Providoli, I., 2004. Nitrate Leaching From a Mountain Forest Ecosystem with Gleysols Subjected to Experimentally Increased N Deposition. Water, Air, & Soil Pollution: Focus 4, 453-467.

Schöpp, W., Posch, M., Mylona, S., Johansson, M., 2003. Long-term development of acid deposition (1880-2030) in sensitive freshwater regions in Europe. Hydrology and Earth Systems Science 7, 436-446.

Sebesta, J., Samonil, P., Lacina, J., Oulehle, F., Houska, J., Bucek, A., 2011. Acidification of primeval forests in the Ukraine Carpathians: Vegetation and soil changes over six decades. Forest Ecology and Management 262, 1265-1279.

Siefert, A., Ravenscroft, C., Althoff, D., Alvarez-Yépiz, J.C., Carter, B.E., Glennon, K.L., Heberling, J.M., Jo, I.S., Pontes, A., Sauer, A., Willis, A., Fridley, J.D., 2012. Scale dependence of vegetation–environment relationships: a meta-analysis of multivariate data. Journal of Vegetation Science 23, 942-951.

Smart, S., Robertson, J.C., Shield, E.J., Van de Poll, H.M., 2003. Locating eutrophication effects across British vegetation between 1990 and 1998. Global Change Biology 9, 1763-1774.

Solberg, S., Dobbertin, M., Reinds, G.J., Lange, H., Andreassen, K., Fernandez, P.G., Hildingsson, A., de Vries, W., 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 258, 1735-1750.

Stevens, C., Duprè, C., Gaudnik, C., Dorland, E., Dise, N., Gowing, D., Bleeker, A., Alard, D., Bobbink, R., Fowler, D., Vandvik, V., Corcket, E., Mountford, J.O., Aarrestad, P.A., Muller, S., Diekmann, M., 2011a. Changes in species composition of European acid grasslands observed along a gradient of nitrogen deposition. Journal of Vegetation Science 22, 207-215.

Stevens, C.J., Dise, N.B., Mountford, J.O., Gowing, D.J., 2004. Impact of nitrogen deposition on the species richness of grasslands. Science 303, 1876-1879.

Stevens, C.J., Duprè, C., Dorland, E., Gaudnik, C., Gowing, D.J.G., Bleeker, A., Diekmann, M., Alard, D., Bobbink, R., Fowler, D., Corcket, E., Mountford, J.O., Vandvik, V., Aarrestad, P.A., Muller, S., Dise, N.B., 2011b. The impact of nitrogen deposition on acid grasslands in the Atlantic region of Europe. Environmental Pollution 159, 2243-2250.

Tamm, C.O., 1991. Nitrogen in terrestrial ecosystems: Questions of productivity, vegetational changes and ecological stability. Springer-Verlag, Berlin, New York.

Thimonier, A., Dupouey, J.-L., Bost, F., Becker, M., 1994. Simultaneous eutrophication and acidification of a forest ecosystem in North-East France. New Phytologist 126, 533-539.

Thimonier, A., Dupouey, J.L., Timbal, J., 1992. Floristic changes in the herb-layer vegetation of a deciduous forest in the Lorraine Plain under the influence of atmospheric deposition. Forest Ecology and Management 55, 149-167.

Thimonier, A., Graf Pannatier, E., Schmitt, M., Waldner, P., Schleppi, P., Braun, S., 2012. Dépôts atmosphériques azotés et leurs effets en forêt: un bilan des sites d'observation à long terme. Schweiz Z Forstwes 163, 343-354.

Thimonier, A., Graf Pannatier, E., Schmitt, M., Waldner, P., Walthert, L., Schleppi, P., Dobbertin, M., Kräuchi, N., 2010. Does exceeding the critical loads for nitrogen alter nitrate leaching, the nutrient status of trees and their crown condition at Swiss Long-term Forest Ecosystem Research (LWF) sites? European Journal of Forest Research 129, 443-461.

Turkington, R., John, E., Krebs, C.J., Dale, M.R.T., Nams, V.O., Boonstra, R., Boutin, S., Martin, K., Sinclair, A.R.E., Smith, J.N.M., 1998. The Effects of NPK Fertilization for Nine Years on Boreal Forest Vegetation in Northwestern Canada. Journal of Vegetation Science 9, 333-346.

Vitousek, P.M., Aber, J.D., Howarth, R.W., Likens, G.E., Matson, P.A., Schindler, D.W., Schlesinger, W.H., Tilman, D.G., 1997. Human Alteration of The Global Nitrogen Cycle: Sources and Consequences. Ecological Applications 7, 737-750.

Zechmeister, H.G., Dirnböck, T., Hülber, K., Mirtl, M., 2007. Assessing airborne pollution effects on bryophytes – lessons learned through long-term integrated monitoring in Austria. Environmental Pollution 147, 696-705.

5 ÉVOLUTION DE LA VÉGÉTATION ET DES SOLS FORESTIERS À L'ÉCHELLE LOCALE : LE CAS DE LA FORÊT DE VILLEY-LE-SEC DANS LE NORD-EST DE LA FRANCE

[ARTICLE 3]

Forest eutrophication does not slow down: Evidence from Northeastern France

Gabriela Riofrío-Dillon [1, 2, 3] , Romain Bertrand[1,2, 4], Jean-Luc Dupouey[5] & Jean-Claude Gégout[1,2]

Article soumis à la revue *Journal of Vegetation Science*

5.1 Abstract

Questions: Could a reshuffling of forest communities have occurred over the last 40 years and be identified? If so, is this reshuffling related to changes in nitrogen availability? Could other factors, such as forest management and dynamics and/or the climate, also be related to floristic changes? Could the three available surveys allow us to identify when floristic and environmental changes have mainly occurred and their rates of change over time?

Location: Villey forest, Northeastern France.

Methods: Floristic inventories from 1972, 1991, and 2011 were available for 40 forest plots located in northeastern France. Detrended correspondence analysis (DCA) and variation partitioning were used to determine the relative importance of different drivers on the species composition of the studied forest. Changes in environmental conditions were inferred through changes in Ellenberg figures.

Results: Species composition has reshuffled, with nitrophilic species increasing between 1972 and 2011. Soil pH mostly explained DCA axis1 variation (*partial* R^2 R_E=0.647), and soil nitrogen mostly explained DCA axis2 variation (*partial* R^2 N_E=0.152) over time. The acidification signal was non significant while eutrophication trend was significantly greater after 1991 (ΔN_E=+0.2). Flora bioindication revealed changes in light, and temperature and soil moisture. N_E and L_E are the figures changing more among the three surveys.

[1] AgroParisTech, ENGREF, UMR1092 Laboratoire d'Etude des Ressources Forêt-Bois (LERFoB), 14 rue Girardet, F-54000 Nancy, France.

[2] INRA, Centre de Nancy, UMR1092 Laboratoire d'Etude des Ressources Forêt-Bois (LERFoB), F-54280 Champenoux, France.

[3] French Environment and Energy Management Agency, 20 avenue du Grésillé-BP 90406, 49004 Angers Cedex 01, France.

[4] Centre for Biodiversity Theory and Modelling, Experimental Ecology Station, Centre National de la Recherche Scientifique, F-09200, Moulis, France.

[5] INRA, Centre de Nancy, Unité d'Ecophysiologie Forestière, Equipe Phytoécologie, F-54280 Champenoux, France.

Conclusions: The three surveys highlight differences in the rate/dynamics of changes. Over the 40-year period in the study area, eutrophication has not slowed down whereas other environmental conditions, reflecting forest management and climate, exhibit significant changes.

Key words: bio-indication; environmental changes and dynamics; local scale; repeated surveys; reshuffling of species composition.

5.2 Introduction

Global biodiversity is changing at an unprecedented rate as a complex response to several human-induced changes in the global environment (Vitousek *et al.*, 1997b). By about the mid-20th century, global sulfur (S) and nitrogen (N) emissions from anthropogenic processes surpassed emissions from natural processes (Galloway, 2001), widely affecting terrestrial ecosystems (Aber *et al.*, 1998), freshwaters systems (Schöpp *et al.*, 2003), and soils chemistry (Falkengren-Grerup et Eriksson, 1990). Disturbance in forests appears as direct toxicity due to increased ammonium concentration (Van Den Berg *et al.*, 2005), damage to vegetation (Bobbink *et al.*, 2010), taxonomic homogenization (Keith *et al.*, 2009), decline in species richness (McClean *et al.*, 2011), and species reshuffling (Bernhardt-Römermann *et al.*, 2007). At a European scale, a sharp decrease in S deposition has been observed since the 1980s, and some studies have already pointed out a recovery from anthropogenic acidification (Kirk *et al.*, 2010; Riofrío-Dillon *et al.*, 2012). However, N deposition has remained at a more or less constantly high level (EMEP, 2011). In France, inventories of atmospheric pollutants have reported that changes in emissions between 1980 and 2010 have shown a downward trend, with a strong, an important, and a significant reduction in SO_x, NO_x, and NH_3, respectively (CITEPA, 2012). Under such conditions, recovery from the effects of eutrophying N compounds should be expected. Forest management systems have also changed, transitioning from coppice-with-standards to high forest management, thus affecting the species composition across European forests (Baeten *et al.*, 2009). In France, forest conversion began before the 20th century, around 1860 (Degron, 1998). Consequently, changes in stand structure due to forest management system and stand maturation might confound the signal of other global changes. Forest dynamics have been reported as the cause of an apparent shift in species composition within forest ecosystems (Bodin *et al.*, 2012).

Furthermore, the reshuffling of plant communities in response to contemporary climate warming has been pointed out, with the pattern of biotic responses varying greatly among species and geographic environmental conditions (Lenoir *et al.*, 2010; Bertrand *et al.*, 2011b; Crimmins *et al.*, 2011). In addition, a greater lag has been reported in the response of lowland plant communities compared to that observed in highland forests facing climatic change, which has been explained by greater species tolerance and a lower opportunity for short-distance escape to track climate changes (Bertrand *et al.*, 2011b). Hence, a combination of eutrophication with acidification, forest management, stand dynamics, and climate change are assumed to be major drivers of long-term vegetation changes and plant loss (Sala *et al.*, 2000; Van Calster *et al.*, 2007; Bertrand *et al.*, 2011b).

Tracking such long-term human-induced changes is particularly difficult due to the limited historical data. Consequently, their effects in reshuffling of species composition have been studied by experimental (Nordin *et al.*, 2005; Clark *et al.*, 2009) or observational approaches. The latter includes studies along geographical gradients, i.e., spatial comparison (Smart *et al.*, 2003; Duprè *et al.*, 2010; Stevens *et al.*, 2011a), or by resurvey of permanent or semi-permanent plots, i.e., temporal comparison (Diekmann *et al.*, 1999; Hédl, 2004; Lenoir *et al.*, 2010). Experimental and observational approaches have certain shortcomings due to the simultaneous occurrence of other determinant environmental factors (Verheyen *et al.*, 2012). Despite this, it has been reported that changes induced by atmospheric pollution, local forest dynamics and management (Decocq *et al.*, 2005; Baeten *et al.*, 2009; Lenoir *et al.*, 2010), and/or climate warming (Bertrand *et al.*, 2011b) could be detected (Verheyen *et al.*, 2012). In turn, these factors may influence light intensity, soil temperature and moisture, and nitrogen availability (Diekmann *et al.*, 1999),

The resurvey of permanent plots is a historical analysis that compares vegetation inventories in initially non-permanent plots. Most of the previous studies have compared two survey years to detect changes in species composition and the environmental factors explaining them over the time (cf. Baeten *et al.*, 2009; Lenoir *et al.*, 2010; Sebesta *et al.*, 2011). In France, the resurvey of floristic plots has allowed species reshuffling and associated environmental conditions to be assessed, in addition to gathering information about how they change over the time. Some studies have reported that significant and simultaneous forest acidification and eutrophication combined with forest management and dynamics, and climate change were responsible for vegetation changes and species decline during the 20th century (Thimonier *et al.*, 1992; Thimonier *et al.*, 1994; Decocq *et al.*, 2005; Van Calster *et al.*, 2008; Lenoir *et al.*, 2010). It has

been suggested that, depending on the spatial scale, different factors have a dominant control over species distribution. At a local scale (small spatial extent) determinant factors include soil type, land use, and topography. In contrast, climate is the main factor at a global scale (large spatial extent) (Pearson et Dawson, 2003). In general, the previous studies cited here were carried out at a local scale pointing out the relative importance of local-acting factors. Furthermore, the effects of climate warming over smaller extents have already been reported (Lenoir *et al.*, 2010), which means that it could potentially be identified at different scales, ranging from local to global.

Here, we evaluated changes in species composition in 40 semi-permanent plots in Villey forest, Northeastern France, for which floristic inventories are available from previous surveys carried out in 1972 (Becker, 1979) and 1991 (Thimonier *et al.*, 1994). In 2011, we relocated and surveyed the 40 vegetation plots for a third time, spanning a period of almost 40 years from the first survey. The assessment of vegetation data allows us to determine whether a reshuffling of species composition has occurred among the three surveys and, if so, to determine the rate of change and to identify the temporal trends of environmental factors to which it might be related. Because measured environmental variables were not available for our plots, we relied on Ellenberg figures as surrogates for light (L_E), soil moisture (F_E), soil nitrogen (N_E), soil pH (R_E), and air temperature (T_E). Between 1972 and 2011, there has been much variation in deposition trends, with high levels of atmospheric deposition occurring around the 1970s and 1980s for S and N, respectively. Due to the implementation of policies to control atmospheric pollutants in the 1980s, an important decrease in S and less marked decrease in N deposition has been reported since 1990s (EMEP, 2011). Moreover, changes in the forest management system over the last 140 years have occurred, and the effects of climate warming in the reshuffling of plant communities have been demonstrated. Therefore, we assumed that it is possible for species composition to have reshuffled over time in response to atmospheric loads, forest management, local forest dynamics (forest aging) and climatic change. We addressed the following questions: (i) Could a reshuffling of forest communities have occurred over the last 40 years and be identified? (ii) If so, is this reshuffling related to changes in nitrogen availability? (iii) Could other factors, such as forest management and dynamics and/or the climate, also be related to floristic changes? (iv) Could the three available surveys allow us to identify when floristic and environmental changes have mainly occurred and their rates of change over time?

5.3 Methods

5.3.1 Floristic data from the 1972, 1991, and 2011 surveys

The initial systematic sampling which was carried out in late July 1972, and encompassed the entire Haye forest (including Villey forest, which is located to the west of the main Haye forest) in Northeastern France (Becker, 1979). The sampling was based on a grid of 250 m × 250 m, with a floristic inventory being conducted at every intersection on the grid. The inventory consisted of a comprehensive record of the plant species present in a circular area of 400 m^2. An abundance-dominance coefficient using the Braun-Blanquet scale was assigned to each species. Of all the plots surveyed, a total of 57 plots were located in Villey forest, our study area.

In May 1991, of the 57 plots in Villey forest originally studied in 1972, 47 were repeat surveyed (termed "resurveyed" here). These plots were clearly marked and could be validated by paint marks remaining on trees (Thimonier *et al.*, 1994). The vegetation sampling followed the same methodology used in the 1972 survey. In addition, samples of the upper soil layer were collected from each plot, and soil pH (H_2O) was measured in the laboratory.

Of the 47 plots in Villey forest that were resurveyed in 1991, those that had been undisturbed by anthropogenic transformation (i.e., clearing cuttings, walking trails) and/or the 1999 storms named Lothar and Martin, were surveyed a third time in late June and early July 2011, resulting in a total of 40 forest plots (**Fig. 5-1**). The plots were relocated in the field using a Global Positioning System supported by geographical coordinates derived from the original map used in the 1991 survey. After locating the geographical position of the plots, paint marks on trees were searched for. Tree marks were found in only 24% of the 40 relocated plots. Different technical teams participated in the three surveys; however, the author of the 1972 survey the participated in the 1991 survey, and oversaw the careful intercalibration of the sampling methods, preventing systematic errors during data collection (Thimonier *et al.*, 1994). Furthermore, two participants from the 1991 survey also assisted in the 2011 survey, again allowing us to calibrate the sampling methods with those used in the previous survey, and hence minimizing the likelihood of any systematic errors occurring during data collection. Floristic inventories were again conducted during the 2011 field work, which followed the same sampling methodology used in the 1972 and 1991 surveys. In addition, general topographical information was collected (slope, aspect, position), as well as information about

silvicultural management and soil characteristics (i.e., humus, soil type) for each plot. Soil samples from the 0-5 cm A horizon were collected at three different random points within each 400 m^2 plot, which were then analyzed in the laboratory to obtain, among others, a single measurement of soil pH (H_2O) per plot. Species nomenclature follows *Base de Données Nomenclaturale de la Flore de France* (BDNFF version 4).

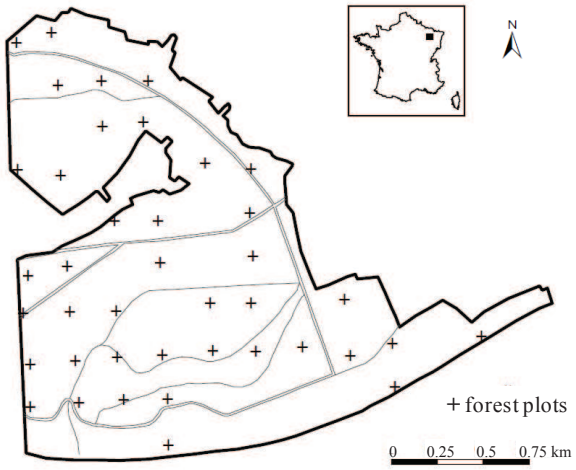


Figure 5-1 Study area (Villey forest) located in Northeastern France. The geographical positions of plots across the forest area are displayed.

5.3.2 Data analysis

Floristic data from the 1972, 1991, and 2011 surveys were analyzed. Abundance-dominance coefficients were transformed into presence/absence data to avoid any bias, due to the different participants estimating these coefficients during each of the three surveys.

5.3.2.1 Analysis of vegetation dynamics

To identify any bias caused by the different sampling dates, changes in species number in each plot between the surveys were correlated against the number of calendar days between the 1972 and 1991 surveys, and the 1991 and 2011 surveys (Keith *et al.*, 2009). To determine changes in species occurrence (i.e., the number of plots where species was observed), the species frequency for 1972, 1991, and 2011 were compared. A total of 205 species, including tree (n = 29), shrub (n = 33), and herb (n = 143) species, were recorded between 1972 and 2011, and included in the analysis. Changes in species occurrence were tested using Fisher's exact test for count data ($P < 0.05$).

Differences in species composition among surveys were examined through analysis of similarity (ANOSIM), based on a matrix of Bray-Curtis (also known as Sørensen) dissimilarity indices to calculate the statistic *R,* which reveals the observed differences among compared surveys. The significance of *R* was assessed by running 1000 permutations (Oksanen *et al.*, 2012). ANOSIM was complemented by a multivariate DCA of floristic plots (ter Braak, 1985; Jongman *et al.*, 1987). The 40 plots from each of the three surveys were used to produce the ordination diagram, for which the default options were followed. Variation in the plot scores of the first two axes, which explained most of the variability within the data, was examined over the 1972-2011 survey timeframe, and was then analyzed with respect to environmental conditions. Herb and shrub species with more than or equal to five occurrences (threshold arbitrarily selected) over the 1972-2011 period were selected. Then, 99 species were integrated as floristic variables in DCA ordination coded as presence/absence. Taking into account that seasonal phenological phases differed among surveys, species flowering between March and July were distinguished among the 99 species, and only three species were identified as vernal (i.e., flowering in spring): *Adoxa moschatellina, Arum maculatum,* and *Ranunculus ficaria*. Vernal species were not excluded from analyses, due to the low number of species identified. To determine the plotting structure on the ordination diagram, standard deviational ellipses were created for DCA1 and DCA2 at the 95% confidence interval for the plots from each survey. The change in plot scores between the 1972 and 1991 surveys, and the 1991 and 2011 surveys relative to DCA1 and DCA2 were computed ($\Delta DCAx = DCAx_{p+1} - DCA_{p}$, with x representing the first or second DCA axis, and p defining a survey year), and used as indicators of changes in species composition. The statistical significance of the difference between the median plot scores for the compared surveys was tested using the Wilcoxon paired signed rank test ($P < 0.05$).

5.3.2.2 Analyses of underlying environmental conditions

Due to the absence of measurements for the environmental variables (except for soil pH, measured in the latter two surveys), Ellenberg figures for light (L_E), soil moisture (F_E), soil N (N_E), soil pH (R_E), and temperature (T_E) were used as surrogates (Ellenberg *et al.*, 1992). Only shrub and herb species were used to compute the Ellenberg figures, because they have a sensitive response to disturbances across broad spatial and temporal scales (i.e., they have a higher species turnover than tree species), and could reflect the evolution of forest status through their dynamics (Diekmann et Dupré, 1997; Gilliam, 2007). We used R_E as surrogate

of soil acidity conditions because (i) measured soil pH and R_E were significantly correlated (r_s = 0.782, $P < 0.001$, $n = 80$; with r_s = Spearman's rank correlation), (ii) an R_E value could be computed from floristic inventories for each of the three surveys, and (iii) the different soil sampling method between the 1991 (upper soil horizon) and 2011 (0-5 cm A horizon) surveys to obtain the pH(H_2O) measurements.

Ellenberg figures were used to assess the environmental significance of DCA axes. The relationship between the plot scores of DCA1 and DCA2 with the Ellenberg values were inspected through a multiple linear regression: DCA$x = f (L_E + F_E + N_E + R_E + T_E)$; with x representing the first or second DCA axis. Variation in the response variable explained by the linear combination of the explanatory variables was measured through the coefficient of multiple determination R^2 (Legendre et Legendre, 1998). To determine the contribution of each environmental factor in the axis definition (i.e., the fraction of variation explained by an environmental variable k), the *partial* R^2 was then computed using variation partitioning (Legendre et Legendre, 1998). Thus, the *partial* R^2 is the determination coefficient of the relationship: *residuals* $DCAx_{-k} = z(X_k^{\perp})$, where $DCAx_{-k}$ represents the residuals of the linear model explaining $DCAx$ in function of all variables except k, and $X_k^{\perp}$ represents the effect of k uncorrelated from the effect of the other explanatory variables (i.e., the residuals of the linear model explaining k in function of the other explanatory variables). The level of confusion represents the fraction of variation explained by the collinearity between explanatory variables, and corresponds to R_k^2 – *partial* R_k^2, where R_k^2 is the coefficient of determination of the simple linear relationship $DCAx = g(k)$ (Legendre et Legendre, 1998; Bertrand, 2012).

5.3.2.3 Analysis of environmental dynamics

To determine the environmental dynamics between the 1972 and 1991 surveys, the 1991 and 2011 surveys, and the 1972 and 2011 surveys, a mean value of each environmental variable per survey was computed, in addition to determining the changes between the compared surveys ($\Delta k = k_{p+1} - k_p$, with p defining a survey year). The statistical significance of the environmental differences between surveys was tested using the Wilcoxon paired signed rank test ($P < 0.05$).

All statistical analyses were performed in the R environment, version 2.10.1 (R Development Core Team). We used the "vegan" package for ANOSIM, DCA, and plotting structure (Oksanen *et al.*, 2012).

5.4 Results

5.4.1 Vegetation dynamics

No significant correlation was found between changes in the number of species among plots and the number of calendar days between the compared surveys (r_s = 0.237, P = 0.14 for the comparison 1972-1991, r_s = -0.039, P = 0.81 for the comparison 1991-2011, and r_s = -0.249, P = 0.121 for the comparison 1972-2011), which indicated that the species composition of communities was not biased by any differences in survey year (**Fig. 5-2**). With respect to species frequency, from the 205 total species recorded across the 40 plots in Villey forest over the 40-year period, 21 species showed significant changes (increasing or decreasing) in frequency (**Table 5-1**). Nitrophilic and mesophilous species showed an increased frequency in Villey forest (*Paris quadrifolia, Geum urbanum, Bromus ramosus*) compared to some meso-xerophilic species occurring in semi-shaded/open conditions (*Melica nutans, Carex montana*, *Brachypodium sylvaticum*). The vernal species *Anemone nemorosa* exhibited a high percentage of change (63%), as did *Arum maculatum* to a lesser extent (18%) (**Table 5-1**). However, conclusions about changes in vernal species could not be drawn because their increased frequency probably reflected the effect of the seasonal differences between compared surveys.

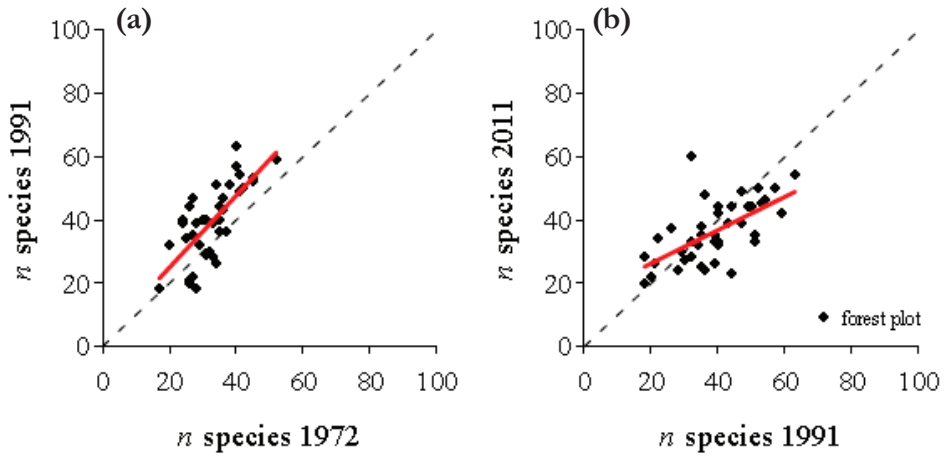


Figure 5-2 Species number at the different survey years: **(a)** between the 1972 and 1991 surveys, and **(b)** between the 1991 and 2011 surveys. The dashed line represents no change in the number of species within a community among the compared surveys ($y = x$). The solid red line represents the fitted relationship. When comparing the 1972 and 1991 surveys, the fitted relationship indicates that species number tended to increase over time ($R^2 = 0.525$, $P < 0.001$). When comparing the 1991 and 2011 surveys, the fitted relationship indicates that sites with a high species number in 1991 tended to decrease over time, while sites with low species number tended to increase over time ($R^2 = 0.388$, $P < 0.001$).

Table 5-1 Species frequency in 1972, 1991, and 2011 surveys, and percentage change with respect to all 40 plots. Onlyspecies with significant changes are listed. Fisher's exact test for count data ($P < 0.05$) was applied over the three surveys. Vernal species are underlined.

Species	1972	1991	2011	Change 2011-1972 (%)
Increase in frequency				
Anemone nemorosa	12	40	37	63
Tilia platyphyllos	2	1	27	63
Fraxinus excelsior	6	27	30	60
Carex sylvatica	13	19	34	53
Acer pseudoplatanus	0	4	18	45
Geum urbanum	3	11	19	40
Bromus ramosus	0	3	14	35
Fagus sylvatica	27	36	38	28
Phyteuma spicatum	9	29	19	25
Paris quadrifolia	0	6	9	23
Rosa canina	0	0	8	20
Dryopteris filix-mas	2	3	9	18
Arum maculatum	0	16	7	18
Angelica sylvestris	0	3	6	15
Dryopteris carthusiana	0	1	6	15
Decrease in frequency				
Melica nutans	6	3	0	-15
Carex pairae	7	0	0	-18
Cornus sanguinea	12	3	3	-23
Tilia cordata	20	23	8	-30
Carex montana	24	25	9	-38
Brachypodium sylvaticum	24	16	7	-43

Significant differences in species composition among plots were identified through ANOSIM, with $R = 0.21$ ($P < 0.001$) when comparing the 1972, 1991, and 2011 surveys. When comparing the 1972 and 1991 surveys, $R = 0.16$ ($P < 0.001$), and when comparing the 1991 and 2011surveys, $R = 0.20$ ($P < 0.001$). Differences in species composition were also supported by the DCA and plotting structure among surveys. The eigenvalues were 0.27 and 0.13 (which corresponded to 66.2% of the sum of eigenvalues of the first four DCA axes) for DCA1 and DCA2, respectively. For DCA1, the plot scores differed significantly when comparing the 1972 and 1991 surveys leaning toward more negative scores ($\Delta DCA1 = -0.248$, $P < 0.001$). In contrast, when comparing the 1991 and 2011 surveys, plot scores leaned toward

the positive axis (Δ*DCA1* = +0.183, *P* = 0.506). For DCA2, differences in plot scores leaned toward the positive axis when comparing both the 1972 and 1991 surveys (Δ*DCA2* = +0.277, *P* < 0.001), and 1991 and 2011 surveys (Δ*DCA2* = +0.306, *P* < 0.001). Standard deviational ellipses at a confidence interval of 95% for each survey strongly overlapped, but also showed a shift in plot scores toward the upper right part of the ordination diagram between the 1972 and 1991 surveys and toward the upper left part of the ordination diagram between the 1991 and 2011 surveys (**Fig. 5-3**).

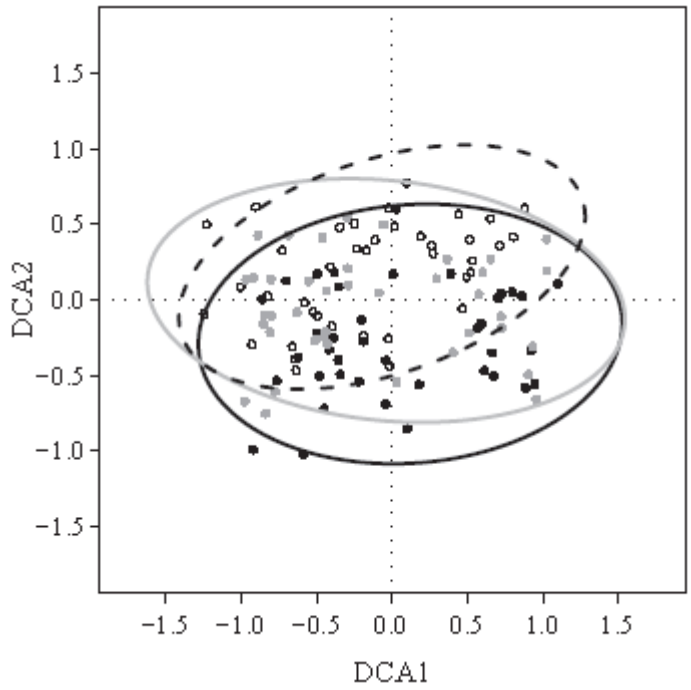


Figure 5-3 Changes in species composition across the 1972, 1991, and 2011 surveys represented on a DCA ordination diagram based on the 40 forest plots from each survey. Standard deviational ellipses showed the plotting structure at a confidence interval of 95% for each survey. Plots from 1972, 1991, and 2011 surveys are displayed by black closed circles, gray closed circles and open circles, respectively. Ellipses for 1972, 1991, and 2011 surveys are displayed by solid black lines, solid gray lines, and dashed black lines, respectively. DCA1 and DCA2 = the first and second axis of the detrended correspondence analysis, respectively.

5.4.2 Environmental significance and dynamics

The standardized coefficients of the regression models and the significance of variables obtained when regressing DCA plot scores on environmental variables are presented in **Table 5-2**. The environmental variables that explained the most variation in species composition along DCA1 and DCA2 were R_E and N_E, respectively, as indicated for the

computed *partial* R^2 (**Table 5-2**). R_E and F_E explained 65% and 11% of the variation in DCA1, respectively. Light, nitrogen, and temperature conditions did not contribute significantly to axis definition. In the case of DCA2, N_E explained 15% of the variation in species composition along this axis, while L_E and T_E explained 10% and 7% of the variation, respectively. Changes in moisture and acidity conditions did not contribute significantly to the DCA2 definition.

Table 5-2 Relationship between the plot scores of DCA axes 1 and 2 and environmental variables substituted with Ellenberg figures for light (L_E), soil moisture (F_E), nitrogen (N_E), soil pH (R_E), and temperature (T_E). The fraction of variability of the DCA axis explained by each environmental variable is indicated through the *partial* R^2. The variable explaining most of the variability of each DCA axis is indicated in bold. Regression standardized coefficients are provided. Significant regression coefficients are indicated by *** $P < 0.001$, ** $P < 0.01$, * $P < 0.05$, and ns = not significant. DCA1, DCA2 = first and second axis of the detrended correspondence analysis, respectively.

Variable	DCA1			DCA2		
	Partial R^2	Coefficient		*Partial* R^2	Coefficient	
L_E	0.000	-0.009	ns	0.105	-0.324	***
F_E	0.111	-0.333	***	0.008	-0.091	ns
N_E	0.008	-0.089	ns	**0.152**	0.390	***
R_E	**0.647**	0.804	***	0.004	-0.064	ns
T_E	0.002	-0.046	ns	0.069	0.263	**

The *partial* R^2 measures the contribution of each environmental factor in DCA axis definition. It means the fraction of DCA axis variation explained by an environmental variable.

Significant changes in L_E, F_E, N_E, and T_E between the1972 and 1991 and the 1991 and 2011 surveys were found (**Table 5-3**), reflecting the environmental dynamics in Villey forest over the time. For R_E, a decrease (ΔR_E = -0.05, P = 0.342) followed by an increase (ΔR_E = +0.09, P = 0.183) was observed when comparing the 1972 and 1991 surveys, and the 1991 and 2011 surveys, respectively. The overall comparison between the 1972 and 2011 surveys showed an increase in R_E (ΔR_E = +0.04, P = 0.627). N_E exhibited a non significant increase when comparing the 1972 and 1991 surveys (ΔN_E = +0.06, P = 0.113), whereas a more marked significant increase was detected between 1991 and 2011 (ΔN_E = +0.20, P = 0.001). The overall comparison between the 1972 and 2011 surveys showed a significant increase in N_E

(ΔN_E = +0.26, P < 0.001). With respect to the light variable, significant decreases were found when comparing the 1972 and 1991 surveys (ΔL_E = -0.08, P = 0.031) and the 1991 and 2011 surveys (ΔL_E = -0.17, P < 0.001). Comparison of 1972 and 2011 showed a general decrease (ΔL_E = -0.25, P < 0.001) in light variable. The variable reflecting soil moisture conditions exhibited a significant increase between 1972 and 1991 (ΔF_E = +0.09, P < 0.001), and a smaller significant increase between 1991 and 2011 (ΔF_E = +0.04, P = 0.048). In general, over the 1972-2011 period, a significant increase in F_E was detected (ΔF_E = +0.13, P < 0.001). Finally, a non significant increase was observed for T_E between 1972 and 1991 (ΔT_E = +0.01, P = 0.581), whereas a significant increase was observed between 1991 and 2011 (ΔT_E = +0.05, P = 0.011). The overall comparison between the 1972 and 2011 surveys showed a significant increase in T_E (ΔT_E = +0.06, P = 0.013) (**Table 5-3**).

Table 5-3 Mean Ellenberg figures for the 1972, 1991, and 2011 surveys. Probability values (*P*) for changes to each Ellenberg figure between 1972 and 1991, 1991 and 2011, and 1972 and 2011 are provided. Significant values are displayed in bold. Wilcoxon paired signed rank test was applied (P < 0.05). L_E = light, F_E = soil moisture, N_E = nitrogen, R_E = pH, T_E = temperature.

	Survey	L_E	F_E	N_E	R_E	T_E
	1972	4.94	4.91	4.97	6.54	5.32
	1991	4.86	4.99	5.03	6.50	5.33
	2011	4.69	5.04	5.23	6.58	5.38
Compared surveys	1972-1991 *(P)*	**0.031**	**<0.001**	0.113	0.342	0.581
	1991-2011 *(P)*	**<0.001**	**0.048**	**0.001**	0.183	**0.011**
	1972-2011 *(P)*	**<0.001**	**<0.001**	**<0.001**	0.627	**0.013**

5.5 Discussion

Temporal comparisons are usually limited by the absence of permanent plots, or knowledge about the exact location of original plots. Some studies are less subject to this limitation due to the geographical isolation of study areas, which facilitates the conservation of signs (i.e., paint or scoring) to recognize original plots (e.g. primeval forest; Sebesta *et al.*, 2011). However, this is not necessarily the case in many studies, for which ancient maps, sites

and vegetation descriptions are available, and/or remaining paint marks allowed the successful relocation of plots (Falkengren-Grerup, 1986; Thimonier *et al.*, 1994; Baeten *et al.*, 2009; Keith *et al.*, 2009; Lenoir *et al.*, 2010; McGovern *et al.*, 2011; Van Den Berg *et al.*, 2011; Kapfer *et al.*, 2012). Another obvious limitation is the absence of environmental measurements; however, the use of Ellenberg figures as surrogates have been proved to be effective in the context of historical comparisons (Diekmann, 2003).

The originality of our study was the availability of data from three comparable surveys spanning a period of 40 years, used to assess the reshuffling of species composition and determine the trends of underlying environmental factors. This information provided a foundation on which we could discriminate different rates of change in environmental conditions from vegetation bio-indication (i.e., the period of time [1972-1991 or 1991-2011] over which changes became more or less marked and significant). The majority of studies that focus on temporal comparisons to assess changes in species composition only compared two survey years (Falkengren-Grerup et Eriksson, 1990; Thimonier *et al.*, 1992; Hédl, 2004; Van Landuyt *et al.*, 2008; Baeten *et al.*, 2009; Keith *et al.*, 2009; Lenoir *et al.*, 2010; McGovern *et al.*, 2011; Sebesta *et al.*, 2011; Kapfer *et al.*, 2012), from which overall vegetation changes may be reported over the respective analyzed periods. However, it is not possible to detect the rate of changes from such datasets.

Our study provides clear evidence of a reshuffling in species composition in Villey forest based on ANOSIM and DCA between the 1972 and 2011 surveys. The initial *R* from ANOSIM for the 1972 and1991 surveys was smaller than the *R* associated for the 1991 and 2011 surveys, confirming that the rate of change in species composition among surveys was greater during the 1991-2011 period compared to the 1972-1991 period. A previous study has already reported floristic changes, in terms of changes in species frequency, in Villey forest between 1972 and 1991 (Thimonier *et al.*, 1994). Here, we confirmed that the reshuffling of species composition is still in progress, and is actually increasing.

Among the environmental factors underlying the observed changes in species compositions, changes in acidity (through R_E) and nitrogen availability (through N_E) primarily explained the variation along DCA1 and DCA2, respectively. The explanation of changes along the DCA axes of each factor increased with time, highlighting their importance in the reshuffling of species composition and their determinism, depending on the analyzed period of time. Our signal for acidification showed there was no overall acidification in Villey forest. A shift in pH

toward acidification was detected between 1972 and 1991, followed by a recovery between 1991 and 2011; however, these changes were not significant. Changes over the last 20 years reflect the trends observed in recent studies for decreased acidification (Riofrío-Dillon *et al.*, 2012).

The changes in DCA plot scores in the current study confirmed those reported by Thimonier *et al.* (1994), who reported a general eutrophication between 1972 and 1991 in Villey forest. After this period, between 1991 and 2011, our signal for eutrophication revealed a significantly marked increase in nitrogen. Signals from eutrophication were in accordance with reported trends of N atmospheric deposition. N slightly declined after the 1990s, but remains quite elevated. Moreover, our results were consistent with studies that reported changes in nitrogen availability over time, with analyzed periods varying from around 20 to 70 years (Thimonier *et al.*, 1994; Duprè *et al.*, 2010; Van Den Berg *et al.*, 2011; Bahr *et al.*, 2012). However, these previous studies did not show the dynamic of change within the survey period, particularly during the key period that environmental policies were implemented. In contrast, our results highlighted whether the rate of change/dynamics in environmental conditions speeded up or slowed down over time, with insight over the period that environmental policies were implemented.

While L_E tended to decline between 1972 and 2011, F_E and T_E showed a low significant increasing trend. The observed L_E trend might be an effect of forest aging related to stand dynamics and forest management (cf. Thimonier *et al.*, 1994). It has been demonstrated that changes in ground layer vegetation might be attributed to changes in light penetration linked to aging, management, or natural disturbance (Lenoir *et al.*, 2010). The F_E trend might be the effect of changes in precipitation. According to data from a nearby meteorological station (Tomblaine), precipitation in our studied region has generally increased over time (mean total annual precipitation = 718 mm yr^{-1} between 1954 and 1972, 768 mm yr^{-1} between 1973 and 1991, and 770 mm yr^{-1} between 1992 and 2010). Moreover, the negative relationship between canopy closure (L_E) and soil moisture (F_E) (r_s = -0.483, $P < 0.001$) may also explain the observed increase in F_E, due to a limitation of potential evapotranspiration, which in turn favors mesophilous species. The observed T_E trend might reflect the onset of the effects of climatic warming in Villey forest over the 1991-2011 period. On the basis of data from Tomblaine meteorological station, mean temperature increased during the second half of the 20th century (mean annual temperature = 9.4°C between 1954 and 1972, 9.7°C between 1973 and 1991, and 10.7°C between 1992 and 2010, data were gathered from the French National

Climatic Network Météo-France). Over a similar timeframe, Lenoir *et al.* (2010) reported that forest plant composition is facing broad directional changes, which are probably driven by climate change and local stand dynamics.

In conclusion, our study highlights the rate of change/dynamics of environmental factors based on inferences from floristic data, which have been induced by anthropogenic changes over the last 40 years. This interpretation was made possible by the availability of data from three surveys conducted at the same plots and using the same methodology. Moreover, our study highlights the importance of pH and nitrogen availability in the reshuffling of forest species composition. Eutrophication, in combination with acidification, forest management, and climate change, has probably been modulating the reshuffling of species composition in Villey forest over the last 40 years. The observed changes in nitrogen availability, which highlight that eutrophication has not slowed down in Villey forest, were unexpected. This finding could imply that a revision of environmental policies regarding nitrogen is required, because current levels of deposition remain too high to attain a decreasing signal of eutrophication, despite being lower than that recorded in the 1980s.

5.6 Acknowledgements

We especially thank E. Thirion for contribution to field work, as well as S. Daviller and P. Behr. The Centre for Biodiversity Theory and Modelling is supported by the TULIP Laboratory of Excellence (ANR-10-LABX-41). This study was funded through a Ph.D. grant awarded to G.R.-D. by the French Environment and Energy Management Agency (ADEME) and Lorraine Regional Council.

5.7 References

Aber J, McDowell W, Nadelhoffer K, Magill A, Berntson G, Kamakea M, McNulty S, Currie W, Rustad L, Fernandez IJ. 1998. Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems. BioScience 48(11): 921-934.

Baeten L, Bauwens B, De Schrijver A, De Keersmaeker L, Van Calster H, Vandekerkhove K, Roelandt B, Beeckman H, Verheyen K. 2009. Herb layer changes (1954-2000) related to the conversion of coppice-with-standards forest and soil acidification. Applied Vegetation Science 12(2): 187-197.

Bahr A, Ellström M, Schnoor TK, Påhlsson L, Olsson PA. 2012. Long-term changes in vegetation and soil chemistry in a calcareous and sandy semi-natural grassland. Flora - Morphology, Distribution, Functional Ecology of Plants 207(5): 379-387.

Becker M. 1979. Une étude phyto-écologique sur les plateaux calcaires du Nord-Est (Massif de Haye-54). Utilisation de l'analyse des correspondances dans la typologie des stations. Relations avec la productivité et la qualité du hêtre et du chêne. Annals of Science Forest 36(2): 93-124.

Bernhardt-Römermann M, Kudernatsch T, Pfadenhauer J, Kirchner M, Jakobi G, Fischer A. 2007. Long-term effects of nitrogen deposition on vegetation in a deciduous forest near Munich, Germany. Applied Vegetation Science 10(3): 399-406.

Bertrand R. 2012. Réponse spatio-temporelle de la végétation forestière au réchauffement climatique. Evaluation du remaniement de la végétation et caractérisation de l'effet des facteurs écologiques et géographiques le modulant à l'échelle de l'espèce et des communautés. PhD thesis, AgroParisTech, Nancy, 305 pp.
Bertrand R, Lenoir J, Piedallu C, Riofrío-Dillon G, de Ruffray P, Vidal C, Pierrat J-C, Gégout J-C. 2011. Changes in plant community composition lag behind climate warming in lowland forests. Nature 479(7374): 517-520.
Bobbink R, Hicks K, Galloway J, Spranger T, Alkemade R, Ashmore M, Bustamante M, Cinderby S, Davidson E, Dentener F, Emmett B, Erisman JW, Fenn M, Gilliam F, Nordin A, Pardo L, De Vries W. 2010. Global assessment of nitrogen deposition effects on terrestrial plant diversity: a synthesis. Ecological Applications 20(1): 30-59.
Bodin J, Badeau V, Bruno E, Cluzeau C, Moisselin J-M, Walther G-R, Dupouey J-L. 2012. Shifts of forest species along an elevational gradient in Southeast France: climate change or stand maturation? Journal of Vegetation Science: DOI: 10.1111/j.1654-1103.2012.01456.x.
CITEPA. 2012. Inventaire des émissions de polluants atmosphériques en France au titre de la Convention sur la Pollution Atmosphérique Transfrontalière à Longue Distance et de la Directive Européenne relative aux plafonds d'émissions nationaux (NEC). CITEPA 956nfr. Paris, France: Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique - CEE-NU.
Clark CM, Hobbie SE, Venterea R, Tilman D. 2009. Long-lasting effects on nitrogen cycling 12 years after treatments cease despite minimal long-term nitrogen retention. Global Change Biology 15(7): 1755-1766.
Crimmins SM, Dobrowski SZ, Greenberg JA, Abatzoglou JT, Mynsberge AR. 2011. Changes in Climatic Water Balance Drive Downhill Shifts in Plant Species' Optimum Elevations. Science 331(6015): 324-327.
Decocq G, Aubert M, Dupont F, Bardat J, Wattez-Franger A, Saguez R, de Foucault B, Alard D, Delelis-Dusollier A. 2005. Silviculture-driven vegetation change in a European temperate deciduous forest. Annals of Forest Science 62(4): 313-323.
Degron R. 1998. La conversion des forêts domaniales feuillues françaises (1860-1888) : Une grande vague brisée. Revue Forestière Française 50(1): 71-84.
Diekmann M. 2003. Species indicator values as an important tool in applied plant ecology – a review. Basic and Applied Ecology 4(6): 493-506.
Diekmann M, Brunet J, Ruhling A, Falkengren-Grerup U. 1999. Effects of Nitrogen Deposition: Results of a Temporal-Spatial Analysis of Deciduous Forests in South Sweden. Plant Biology 1: 471-481.
Diekmann M, Dupré C. 1997. Acidification and eutrophication of deciduous forests in northwestern Germany demonstrated by indicator species analysis. Journal of Vegetation Science 8: 855-864.
Duprè C, Stevens CJ, Ranke T, Bleeker A, Peppler-Lisbach C, Gowing DJG, Dise NB, Dorland EDU, Bobbink R, Diekmann M. 2010. Changes in species richness and composition in European acidic grasslands over the past 70 years: the contribution of cumulative atmospheric nitrogen deposition. Global Change Biology 16(1): 344-357.
Ellenberg H, Weber HE, Düll R, Wirth V, Werner W, Paulissen D. 1992. Zeigerwerte von Pfl anzen in Mitteleuropa. Scripta Geobotanica 18: 1-248.
EMEP. 2011. EMEP/MSC-W modelled air concentrations and depositions. Available at: http://webdab.emep.int/Unified_Model_Results/ (accessed: 04/11/2011).
Falkengren-Grerup U. 1986. Soil acidification and vegetation changes in deciduos forest in southern Sweden. Oecologia 70: 339-347.
Falkengren-Grerup U, 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(1-2): 37-53.
Galloway J. 2001. Acidification of the world: Natural and anthropogenic. Water, Air, & Soil Pollution 130(1): 17-24.
Gilliam FS. 2007. The ecological significance of the herbaceous layer in temperate forest ecosystems. BioScience 57(10): 845-858.
Hédl R. 2004. Vegetation of beech forests in the Rychlebské Mountains, Czech Republic, re-inspected after 60 years with assessment of environmental changes. Plant Ecology 170(2): 243-265.
Jongman RHG, ter Braak CJF, van Tongeren OFR. 1987. Data analysis in community and landscape ecology. Wageningen, The Netherlands: Pudoc.
Kapfer J, Virtanen R, Grytnes J-A. 2012. Changes in arctic vegetation on Jan Mayen Island over 19 and 80 years. Journal of Vegetation Science 23(4): 771-781.
Keith SA, Newton AC, Morecroft MD, Bealey CE, Bullock JM. 2009. Taxonomic homogenization of woodland plant communities over 70 years. Proceedings of the Royal Society B: Biological Sciences 276(1672): 3539-3544.
Kirk GJD, Bellamy PH, Lark RM. 2010. Changes in soil pH across England and Wales in response to decreased acid deposition. Global Change Biology 16(11): 3111-3119.
Legendre P, Legendre L. 1998. Numerical Ecology. Second english edition. Amsterdam, The Netherlands: Elsevier Science B.V.
Lenoir J, Gégout JC, Dupouey JL, Bert D, Svenning JC. 2010. Forest plant community changes during 1989-2007 in response to climate warming in the Jura Mountains (France and Switzerland). Journal of Vegetation Science 21(5): 949-964.
McClean CJ, van den Berg LJL, Ashmore MR, Preston CD. 2011. Atmospheric nitrogen deposition explains patterns of plant species loss. Global Change Biology 17(9): 2882-2892.
McGovern S, Evans CD, Dennis P, Walmsley C, McDonald MA. 2011. Identifying drivers of species compositional change in a semi-natural upland grassland over a 40-year period. Journal of Vegetation Science 22(2): 346-356.
Nordin A, Strengbom J, Witzell J, Näsholm T, Ericson L. 2005. Nitrogen Deposition and the Biodiversity of Boreal Forests: Implications for the Nitrogen Critical Load. AMBIO: A Journal of the Human Environment 34(1): 20-24.
Oksanen J, Blanchet FG, Kindt R, Legendre P, Michin PR, O'Hara B, Simpson GL, Solymos P, Henry M, Stevens H, Wagner H. 2012. Vegan: Community Ecology Package. In: http://vegan.r-forge.r-project.org/: http://cran.r-project.org/.

Pearson RG, Dawson TP. 2003. Predicting the impacts of climate change on the distribution of species: are bioclimate envelope models useful? Global Ecology and Biogeography 12(5): 361-371.
R Development Core Team. 2011. R: A language and environment for statistical computing. Vienna, Austria: R Foundation for Statistical Computing.
Riofrío-Dillon G, Bertrand R, Gégout J-C. 2012. Toward a recovery time: forest herbs insight related to anthropogenic acidification. Global Change Biology 18(11): 3383-3394.
Sala OE, Chapin FS, Armesto JJ, Berlow E, Bloomfield J, Dirzo R, Huber-Sanwald E, Huenneke LF, Jackson RB, Kinzig A, Leemans R, Lodge DM, Mooney HA, Oesterheld Mn, Poff NL, Sykes MT, Walker BH, Walker M, Wall DH. 2000. Global Biodiversity Scenarios for the Year 2100. Science 287(5459): 1770-1774.
Schöpp W, Posch M, Mylona S, Johansson M. 2003. Long-term development of acid deposition (1880-2030) in sensitive freshwater regions in Europe. Hydrology and Earth Systems Science 7(4): 436-446.
Sebesta J, Samonil P, Lacina J, Oulehle F, Houska J, Bucek A. 2011. Acidification of primeval forests in the Ukraine Carpathians: Vegetation and soil changes over six decades. Forest Ecology and Management 262(7): 1265-1279.
Smart S, Robertson JC, Shield EJ, Van de Poll HM. 2003. Locating eutrophication effects across British vegetation between 1990 and 1998. Global Change Biology 9(12): 1763-1774.
Stevens C, Duprè C, Gaudnik C, Dorland E, Dise N, Gowing D, Bleeker A, Alard D, Bobbink R, Fowler D, Vandvik V, Corcket E, Mountford JO, Aarrestad PA, Muller S, Diekmann M. 2011. Changes in species composition of European acid grasslands observed along a gradient of nitrogen deposition. Journal of Vegetation Science 22(2): 207-215.
ter Braak CJF. 1985. Correspondence Analysis of Incidence and Abundance Data: Properties in Terms of a Unimodal Response Model. Biometrics 41(4): 859-873.
Thimonier A, Dupouey J-L, Bost F, Becker M. 1994. Simultaneous eutrophication and acidification of a forest ecosystem in North-East France. New Phytologist 126: 533-539.
Thimonier A, Dupouey JL, Timbal J. 1992. Floristic changes in the herb-layer vegetation of a deciduous forest in the Lorraine Plain under the influence of atmospheric deposition. Forest Ecology and Management 55(1-4): 149-167.
Van Calster H, Baeten L, De Schrijver A, De Keersmaeker L, Rogister JE, Verheyen K, Hermy M. 2007. Management driven changes (1967–2005) in soil acidity and the understorey plant community following conversion of a coppice-with-standards forest. Forest Ecology and Management 241(1-3): 258-271.
Van Calster H, Vandenberghe R, Ruysen M, Verheyen K, Hermy M, Decocq G. 2008. Unexpectedly high 20th century floristic losses in a rural landscape in northern France. Journal of Ecology 96(5): 927-936.
Van Den Berg LJL, Dorland E, Vergeer P, Hart MAC, Bobbink R, Roelofs JGM. 2005. Decline of acid-sensitive plant species in heathland can be attributed to ammonium toxicity in combination with low pH. New Phytologist 166(2): 551-564.
Van Den Berg LJL, Vergeer P, Rich TCG, Smart SM, Guest DAN, Ashmore MR. 2011. Direct and indirect effects of nitrogen deposition on species composition change in calcareous grasslands. Global Change Biology 17(5): 1871-1883.
Van Landuyt W, Vanhecke L, Hoste I, Hendrickx F, Bauwens D. 2008. Changes in the distribution area of vascular plants in Flanders (northern Belgium): eutrophication as a major driving force. Biodiversity and Conservation 17(12): 3045-3060.
Verheyen K, Baeten L, De Frenne P, Bernhardt-Römermann M, Brunet J, Cornelis J, Decocq G, Dierschke H, Eriksson O, Hédl R, Heinken T, Hermy M, Hommel P, Kirby K, Naaf T, Peterken G, Petřík P, Pfadenhauer J, Van Calster H, Walther G-R, Wulf M, Verstraeten G. 2012. Driving factors behind the eutrophication signal in understorey plant communities of deciduous temperate forests. Journal of Ecology 100(2): 352-365.
Vitousek PM, Mooney HA, Lubchenco J, Melillo JM. 1997. Human Domination of Earth's Ecosystems. Science 277(5325): 494-499.

6 DISCUSSION GÉNÉRALE

DISCUSSION GÉNÉRALE

6.1 Évolution des valeurs bio-indiquées

6.1.1 Comparaison aux dépôts atmosphériques mesurés

D'après les données mesurées sur les 26 sites du sous-réseau CATAENAT (**Fig. 1-6b**), des diminutions moyennes de 37% de $S\text{-}SO_4$, de 12% de $N\text{-}NH_4$ et de 9% de $N\text{-}NO_3$ ont été observées entre 1993 et 2009 (**Fig. 6-1**). Nos résultats issus de la bio-indication semblent globalement cohérents avec cette évolution. En effet, au chapitre 3, nous avons mis en évidence un arrêt de l'acidification et même une augmentation du pH respectivement sur sols acides et basiques à partir des années 1980 (**Fig. 3-3**), qui sont tout à fait en phase avec la diminution générale des dépôts atmosphériques acidifiants observée. L'évolution favorable de la végétation vers une stabilisation voire un début de résilience vers des niveaux préindustriels met en évidence l'efficacité des politiques de réduction des émissions mises en œuvre. Au chapitre 4, l'augmentation (non significative) de la disponibilité en azote que nous avons montré entre 1997 et 2007 (années moyennes, **Fig. 4-6**) est, elle aussi, cohérente avec le niveau élevé des dépôts atmosphériques azotés, observé sur le réseau CATAENAT. Le ralentissement (voire l'arrêt ou l'inversion) futur de l'eutrophisation des écosystèmes forestiers français passera certainement par un renforcement des politiques environnementales en France dans le but de réduire le niveau encore élevé des émissions et dépôts d'azote actuel.

Il est impossible de confronter nos résultats à des évolutions anciennes de mesures de dépôts atmosphériques du fait du manque de données disponibles en France. En Angleterre, des séries temporelles plus longues des dépôts atmosphériques (couverture d'une période de 100 ans) ont permis d'établir l'importance relative des sources d'acidité dans le sol au cours du temps. C'est ainsi que Johnston *et al.* (1986) ont estimé que le pourcentage des entrées acidifiantes est passé de 26% dans les années 1860 à 80% dans les années 1980.

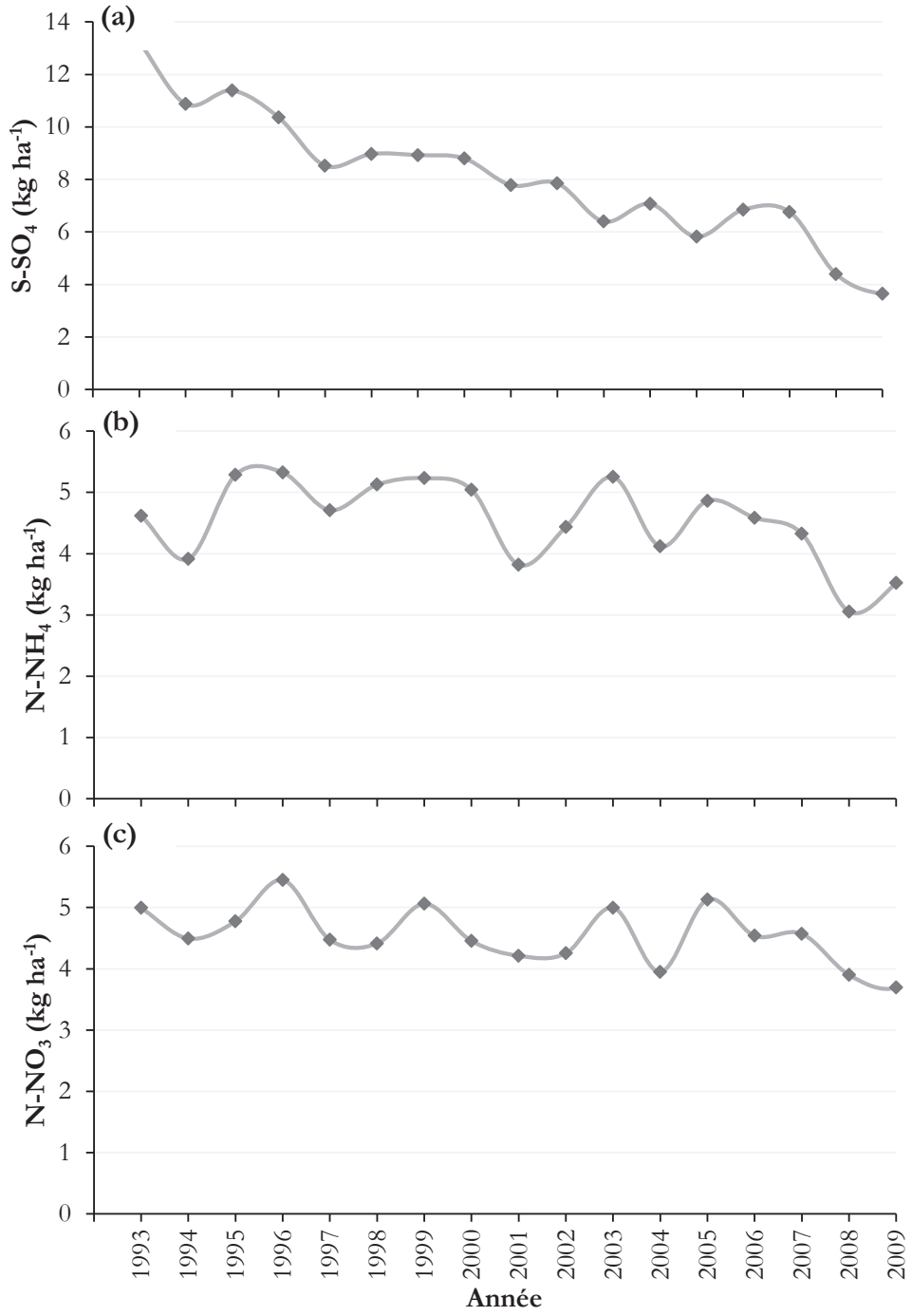


Figure 6-1 Évolution moyenne des dépôts **(a)** de sulfate, **(b)** d'ammonium et **(c)** de nitrate mesurés sous couvert forestier entre 1993 et 2009 à partir du sous-réseau CATAENAT (*n* = 26 placettes du réseau RENECOFOR).

6.1.2 Comparaison aux dépôts atmosphériques modélisés

Comme nous l'avons mentionné précédemment, la disponibilité de mesures de dépôts atmosphériques à long terme est faible (en France, aucune donnée n'est disponible avant

1990). Le moyen le plus courant pour pallier ce manque est d'utiliser des données issues de la modélisation spatio-temporelle (Croisé *et al.*, 2005; EMEP, 2011). Selon celles-ci, les dépôts atmosphériques modélisés sont passés de 445 mg S m^{-2} et 446 mg N m^{-2} en 1910, niveau considéré comme proche des émissions naturelles, à 1983 mg S m^{-2} et 1515 mg N m^{-2} au moment des pics de pollution de soufre et d'azote, respectivement, dans les années 1970 et 1980 (EMEP, 2011). Ensuite, les modèles montrent une importante diminution jusqu'en 2010 (au moins pour le soufre ; **Fig. 1-2** ; EMEP, 2011). L'évolution modélisée des dépôts atmosphériques acides (comprenant le soufre et l'azote) est cohérente avec les changements de pH bio-indiqués par la flore depuis le début du 20ème siècle. (**Fig. 3-3**). A l'inverse, les changements de disponibilité en azote du sol que nous avons déterminé par bio-indication (**Fig. 4-6**) ne correspondent pas à l'évolution des dépôts atmosphériques modélisés (**Fig. 1-2**, EMEP, 2011). En effet, au chapitre 4, nous avons mis en évidence une diminution de la quantité d'azote disponible dans le sol jusqu'en 1984 et 1997 (années moyennes), respectivement, dans les peuplements de conifères et de feuillus, opposée à l'augmentation des dépôts atmosphériques d'azote prédit par l'EMEP. Nous avons ensuite observé un accroissement de la disponibilité en azote du sol jusqu'à la période actuelle alors que les dépôts atmosphériques eutrophisants ont diminué. Il est difficile de déterminer la ou les causes d'une telle discordance mais plusieurs pistes peuvent être avancées.

Premièrement, il est vraisemblable que la modélisation réalisée par l'EMEP hors couvert forestier n'aboutisse pas à la même évolution des dépôts sous couvert forestier, alors que c'est effectivement ces derniers qui impactent directement la bio-indication que nous avons réalisé à partir de la flore forestière. L'une des preuves d'un tel problème (en gardant à l'esprit que nous comparons des valeurs modélisées à des valeurs mesurées) est visible lorsque nous confrontons l'évolution des dépôts sous couvert forestier obtenue à partir du réseau CATAENAT (**Fig. 6-1**) à celle modélisée par l'EMEP (**Fig. 1-2**) ne tenant pas compte de la présence ou non du couvert. En effet, la diminution des dépôts azotés observée sous couvert entre 1992 et 2008 est moins marquée que celle mise en évidence par l'EMEP.

Deuxièmement, il est reconnu que les forêts européennes sont en partie contraintes par les ressources disponibles du sol (Tamm, 1991). Selon cette hypothèse, on peut supposer que l'eutrophisation de cet écosystème et son effet sur la flore ne soient visibles qu'après une période d'accumulation d'azote expliquant ainsi que l'évolution bio-indiquée soit inversée ou plutôt décalée dans le temps (ce point est approfondi à la partie 6.1.5).

Troisièmement, il est possible que la réponse de la flore aux variations d'azote disponible dans le sol interagisse avec celle de l'acidité bruitant ainsi la bio-indication du C:N (le problème ainsi qu'une solution technique sont discutés aux parties 6.2 et 6.4.4). Il est enfin possible que l'approche par bio-indication et/ou l'utilisation de la variable C:N ne soient pas assez adaptées ou sensibles à la mise en évidence des variations de dépôts atmosphériques d'azote dans nos analyses (ces limites potentielles sont largement discutées aux parties 6.4.3 et 6.4.4).

Sur le plan spatial, nos résultats ne semblent pas cohérents avec les données modélisées de l'EMEP (**Table 3-3**). D'après le modèle de l'EMEP (Simpson *et al.*, 2003), les niveaux les plus bas de dépôts et de leur changement seraient principalement répartis dans le sud de la France alors que leur niveau maximum toucherait la moitié nord du territoire métropolitain. Cette tendance spatiale n'est pas retrouvée dans les changements d'acidité des sols obtenus par l'analyse des cortèges floristiques (chapitre 3). Ce manque de relation observée peut être en partie expliqué par la différence de résolution spatiale des approches. En effet, le modèle de l'EMEP vise à reproduire l'évolution passée des dépôts atmosphériques à l'échelle de l'Europe, soit à une résolution spatiale grossière de 50 x 50 km ne permettant pas d'atteindre la résolution locale des changements de pH du sol que nous avons bio-indiqués à partir de la flore présente sur des placettes de 400 m². De plus, comme nous l'avons soulevé précédemment, les prédictions du modèle de l'EMEP restent générales, ne tenant pas compte des caractéristiques de l'écosystème forestier (essentiellement, la présence d'un couvert). Comme nous l'avons enfin indiqué dans le paragraphe précédent, il existe des limites à la bio-indication qui peuvent restreindre le suivi spatio-temporel des changements de pH induits par les dépôts atmosphériques (e.g. la réactivité de la flore face au changement environnemental peut être plus ou moins rapide). Il est enfin possible que le modèle de l'EMEP soit en partie erroné.

Lorsque nous avons confronté nos résultats à une source de données plus en accord avec la résolution spatiale de nos prédictions (i.e. la répartition spatiale des dépôts bruts modélisés pour la France à une résolution de 10 x 10 km ; Croisé *et al.*, 2005), nous avons observé une amélioration sensible de la cohérence spatiale entre les dépôts modélisés et l'évolution des valeurs bio-indiquées. Des particularités spatiales mises en évidence dans nos résultats ont également été soulignées par Croisé et ses collaborateurs pour les périodes 1993-1998 et 1999-2004. Par exemple, dans le Massif Central et les Cévennes où les dépôts acidifiants sont élevés et la zone méditerranéenne où les dépôts sont faibles (**Fig. 2-4**), nous avons observé, respectivement, une acidification et une augmentation du pH des sols via la bio-indication

(**Fig. 3-4**). De plus, le Massif Central, la région des Alpes du Nord et les Pyrénées signalés comme des zones à dépôts azotés élevés (**Fig. 2-4**) révèlent toutes une augmentation de disponibilité en azote dans le sol à partir de la composition des communautés végétales (**Fig. 4-7**).

6.1.3 Comparaison aux mesures de pH et C:N du sol

Les mesures directes des paramètres du sol, tels que le pH et le C:N, sont importantes pour déterminer leurs évolutions. Cependant, peu d'études ont pu remonter loin dans les temps pour reconstruire les tendances à long terme et définir l'effet de la pollution atmosphérique (cf. Johnston *et al.*, 1986; Blake *et al.*, 1999). En Angleterre, une série de données mesurées sur quelques sites a permis d'évaluer l'influence des différents amendements sur le pH du sol (**Fig. 6-2a**) ainsi que les changements de pH du sol en milieu naturel depuis le 19ème siècle (**Fig. 6-2b**) en réponse aux dépôts atmosphériques (Johnston *et al.*, 1986). Une acidification du sol très nette est visible au cours du siècle écoulé, plus marquée dans l'horizon supérieur du sol, stimulée par l'apport d'ammonium et détectable même dans la placette n'ayant subi aucune fertilisation. En France, une évaluation des tendances à long terme à partir de mesures de pH et C:N n'est pas faisable du fait que les premières données mesurées ont été collectées dans les années 1960 (**Fig. 6-3**) et que la plupart des mesures ont été réalisées à partir des années 1990 (**Fig. 6-4**).

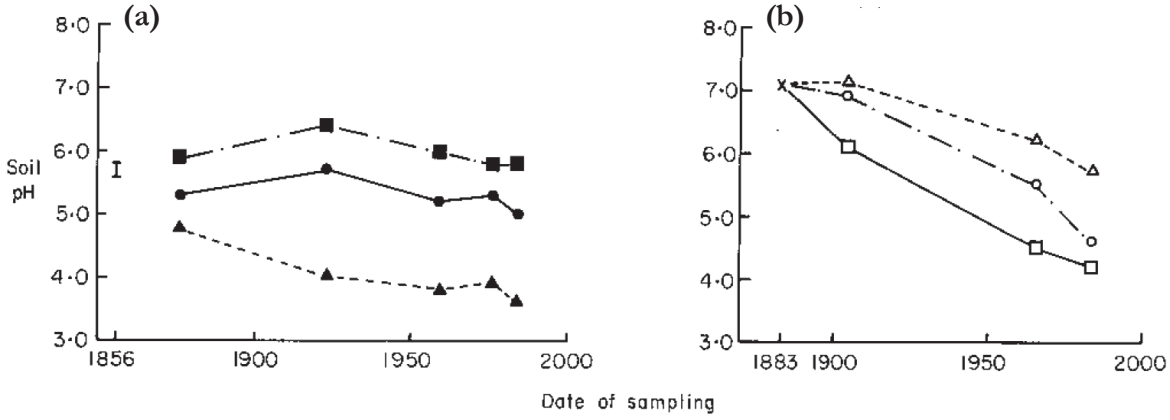


Figure 6-2 Évolution du pH du sol **(a)** de l'horizon de surface (0-23 cm) dans l'aire expérimentale de Park Grass suivant différents amendements (● non fertilisé ; ▲ apport d'ammonium-N_2PKNaMg ; ■ apport de nitrate-N_2PKNaMg ; et **(b)** des trois horizons d'un même sol dans l'espace naturel de Geescroft (suivi réalisé sans traitement ; □ 0-23 cm ; Δ 23-46 cm ; o 46-69 cm) (tiré de Johnston *et al.*, 1986).

L'utilisation de méthodes alternatives telles que la bio-indication se basant, entre autre, sur ces mesures permet de compléter les séries temporelles, et dans notre cas sur une durée de l'ordre du siècle (chapitres 3 et 4). Les résultats du pH obtenus au chapitre 3 sont cohérents avec les évolutions de pH que Johnston *et al.* (1986) ont observé jusqu'aux années 1980. En effet, une acidification des sols forestiers français a été bio-indiquée jusqu'à cette époque. Puis dans les forêts de milieu acide un arrêt de l'acidification est observé jusqu'à nos jours, et même une remontée du pH sur sol non-acide à partir des années 1990 (**Fig. 3-3**). Cependant, dans des régions comme la Flandre en Belgique où la pollution atmosphérique, principalement azotée, a augmenté après les années 1980, une acidification continue des sols a été signalée jusqu'aux années 2000 (De Schrijver *et al.*, 2006). Plus récemment, des études basées sur des données mesurées ont montré une tendance à l'augmentation du pH liée à la diminution des dépôts soufrés. Le niveau des changements qui y sont reportés sont similaires aux nôtres (Emmett *et al.*, 2010; Kirk *et al.*, 2010; Vanguelova *et al.*, 2010; Benham *et al.*, 2012) et confirment la remontée du pH que nous avons détectée dans les forêts françaises se développant sur substrat non-acide. Ceux-ci contrastent avec les résultats signalés par Yang *et al.* (2012) dans les prairies du nord de la Chine. Malgré le contenu élevé en carbonates des sols tamponnant l'effet acidifiant des dépôts, une baisse du pH a été observée entre les années 1980 et 2000. L'est de l'Asie est une des régions au monde où les dépôts atmosphériques de soufre et d'azote sont en augmentation (Dentener *et al.*, 2006b) ce qui peut expliquer les tendances observées. Concernant l'eutrophisation, nos résultats concordent avec ceux d'études expérimentales ou basées sur des mesures ayant montré une augmentation de l'azote disponible dans les sols due aux apports importants d'azote (Evans *et al.*, 2006; Nave *et al.*, 2009). À l'inverse, une étude menée dans un site de l'*Environmental Change Network* au sud de l'Angleterre basée sur l'échantillonnage répété des sols a montré que le C:N a augmenté entre 1994 et 2009 (Benham *et al.*, 2012). Le pH du sol avait diminué au cours de cette période, ce qui peut avoir réduit l'activité microbienne conduisant à une décomposition et minéralisation de la matière organique réduites *(*Benham *et al.*, 2012). La diversité des résultats présentés ici démontre que l'évolution de l'acidité et de la disponibilité en azote des sols, ainsi que son effet sur la végétation et plus largement sur les écosystèmes, est difficilement généralisable du fait de la grande hétérogénéité des réponses suivant les propriétés du sol et les conditions environnementales, ainsi que la forte variabilité spatiale de la nature et de l'évolution temporelle des pollutions.

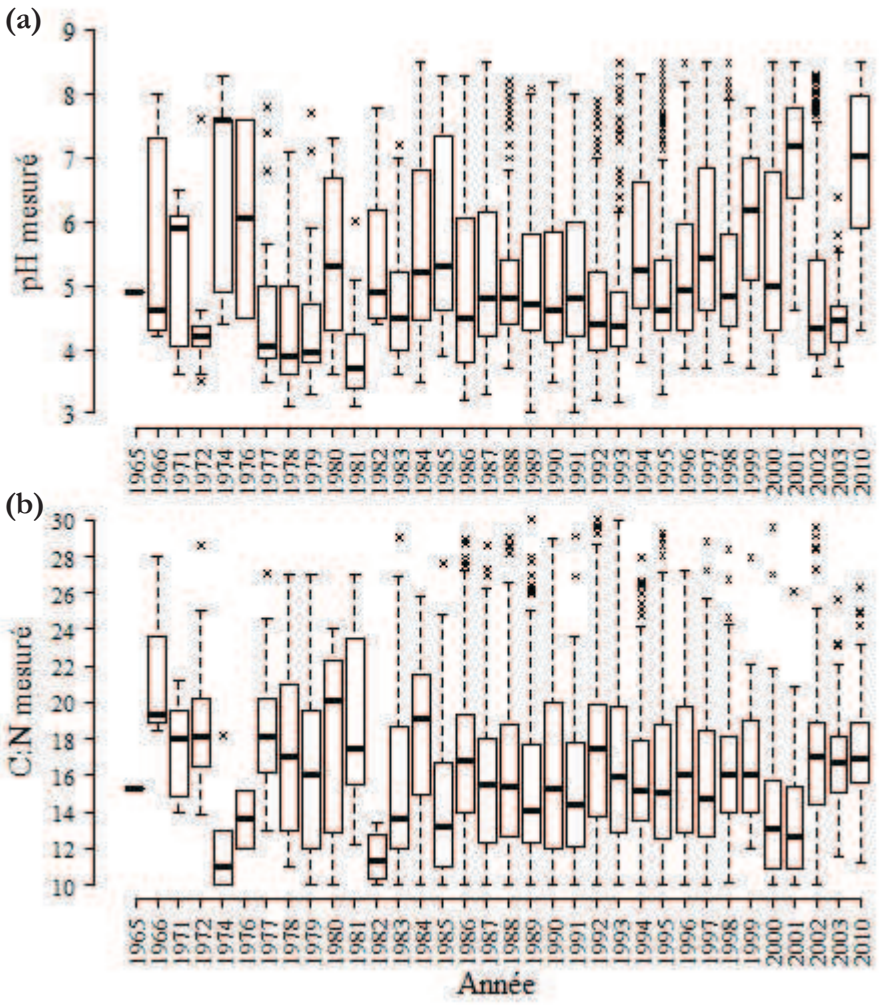


Figure 6-3 Boîte à moustache des mesure de **(a)** pH et **(b)** de C:N au cours du temps et disponible dans nos données. Les bases de données ayant des mesures de pH ou de C:N sont : EcoPlant (1965-2010, n_{pH} = 2854 placettes, $n_{C:N}$ = 2483 placettes) et le réseau 16 x 16 km (1989/2004, n_{pH} = 422 placettes, $n_{C:N}$ = 400 placettes). Les mesures ont été réalisées sur des placettes temporaires (principalement pour EcoPlant) qui ne permettent pas d'interpréter les variations temporelles comme une réelle évolution ou tendance (la variation et la représentativité spatiales des relevés ne sont pas contrôlées).

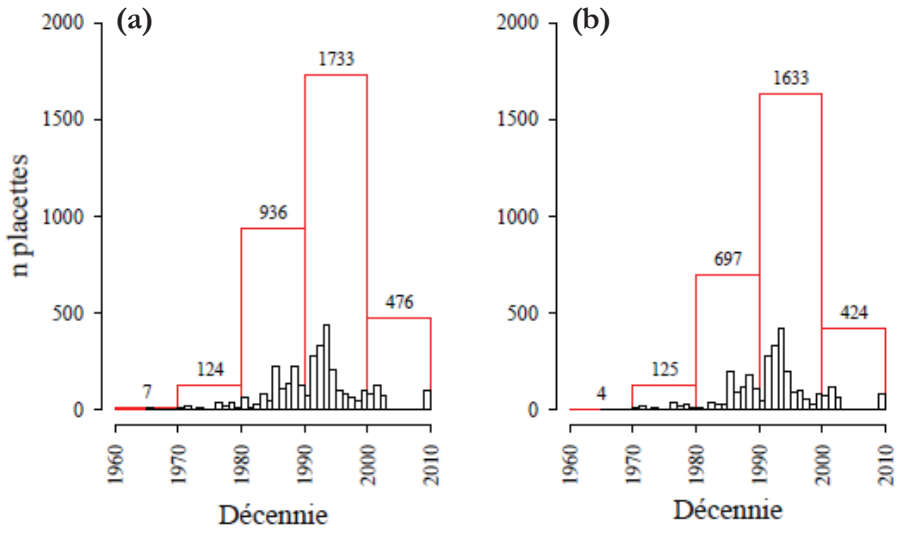


Figure 6-4 Distribution du nombre de placettes possédant des mesures **(a)** de pH et **(b)** de C:N dans les bases de données (utilisées aux chapitres 3 et 4) au cours du temps. L'histogramme noir illustre le nombre annuel de placettes ayant de mesures entre 1960 et 2010. L'histogramme rouge indique le nombre de placettes ayant de mesures par décennie. Les nombres sur les barres correspondent au nombre total de placettes par décennie.

À l'échelle locale (chapitre 5) l'établissement des placettes floristiques dans la forêt de Villey-Le-Sec en 1972 (Becker, 1979) et leur ré-échantillonnage en 1991 (Thimonier *et al.*, 1994) et 2011 (Riofrío-Dillon *et al.*, 2013) ont permis un suivi de la flore mais aussi des conditions d'acidité du sol puisque des mesures de pH ont été réalisées lors des campagnes de 1991 et 2011 (**Table 2-1**). Thimonier *et al.* (1994) ont montré une acidification et eutrophisation simultanées de la flore entre 1972 et 1991. Nos résultats mettent ensuite en évidence une remontée du pH entre 1991 et 2011 d'après les données mesurées (Δ moyen de pH = 0.34 ± 0.56 unités de pH ; n = 40 placettes, **Fig. 6-5**) et bio-indiquées (Δ moyen de R_E = 0.09 ± 0.33 unités de pH, non significatif ; n = 40 placettes). L'évolution des conditions d'acidité concorde avec la tendance signalée au chapitre 3 à partir des années 1980, portant sur une échelle spatiale globale, d'une acidification des sols s'atténuant (Riofrío-Dillon *et al.*, 2012). Les sols de la forêt de Villey-Le-Sec semblent donc se rétablir des effets historiques des dépôts acidifiants. Concernant l'évolution de la disponibilité en azote, nous avons observé une nette accélération de l'eutrophisation des sols à partir des valeurs indicatrices d'Ellenberg entre 1991 et 2011 (+0.06 sur le gradient N d'Ellenberg entre 1972 et 1991 contre +0.2 entre 1991 et 2011 ; **Table 5-3**). Bien qu'il nous soit impossible de confronter cette évolution à une variation des mesures réelles (seulement collectées en 2011), nous remarquons qu'à partir d'un indicateur différent (utilisation des valeurs indicatrices d'Ellenberg) à celui utilisé au chapitre 4 (bio-

indication à partir d'un modèle WA-PLS), nous mettons également en évidence une augmentation de la disponibilité en azote à partir des années 1990.

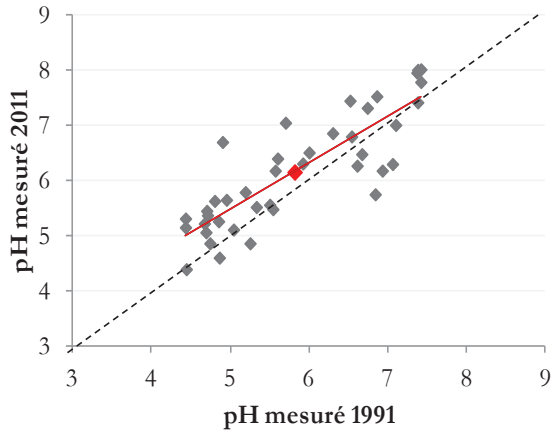


Figure 6-5 Relation entre le pH mesuré lors des campagnes de 1991 et 2011 (n = 40). Le point rouge indique les valeurs moyennes du pH en 1991 et 2011. Le trait rouge représente la relation linéaire entre le pH mesuré en 1991 et le pH mesuré en 2011. Le trait pointillé montre la relation $y = x$.

6.1.4 D'une période courte de mesures vers une période longue de valeurs bio-indiquées, quel est le niveau de confiance ?

L'évaluation du niveau de confiance de la bio-indication du pH et du C:N du sol au cours de la période 1910-2010 a été un enjeu important de ce travail de thèse. Tout d'abord, nous rappelons que notre travail repose sur l'hypothèse selon laquelle les espèces forestières herbacées conservent leur niche édaphique et modifient sans délai leur distribution face aux changements des conditions du sol. Pour montrer la pertinence de notre hypothèse, nous avons analysé les résidus entre les valeurs de pH et C:N bio-indiquées et celles mesurées au cours de la période où ces dernières étaient disponibles, soit 1965-2010. Nous avons voulu vérifier qu'aucun biais temporel n'était présent entre la bio-indication et les valeurs mesurées d'acidité et de disponibilité en azote du sol. Sur le plan écologique un tel biais serait révélateur de l'occurrence d'adaptations évolutives chez les espèces, soit dans le cas présent une réponse adaptative des espèces à une acidification et eutrophisation prolongée (principalement) via modification de leur niche écologique impactant directement leur tolérance et survie dans le milieu. Si cette hypothèse était vérifiée, nous devrions observer que tout ou partie des espèces deviennent plus acidiphiles et nitrophiles. Un tel changement se traduirait par un décalage progressif entre les mesures et les valeurs bio-indiquées au cours du temps, où la bio-

indication surestimerait les valeurs d'acidité et de disponibilité en azote réelles sur les périodes anciennes.

Nous avons constaté l'absence de corrélation entre les résidus de pH (pH bio-indiqué – pH mesuré) et le temps pour les zones forestières acides (R^2 = 0 ; P = 0.832 ; **Fig. 6-6a**) et non-acides (R^2 = 0 ; P = 0.468 ; **Fig. 6-6b**).

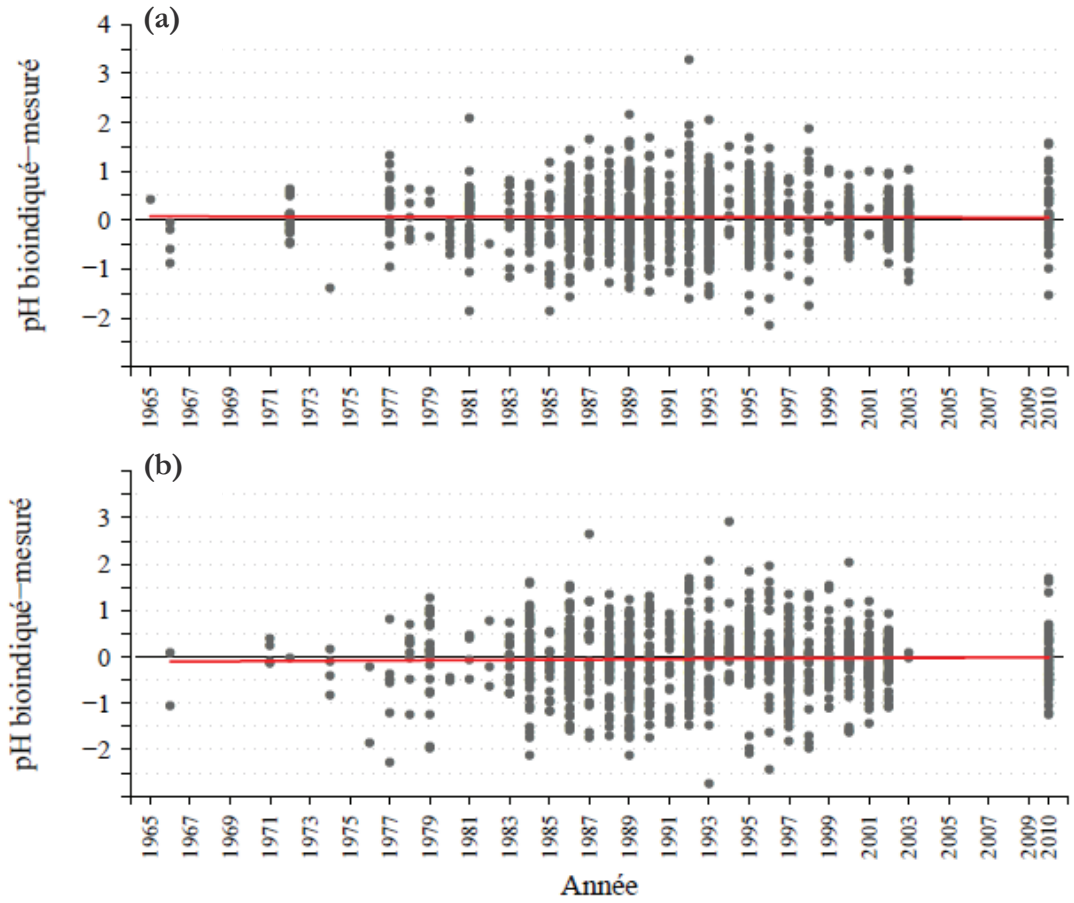


Figure 6-6 Évolution des résidus de pH (pH bio-indiqué –pH mesuré) et le temps dans le jeu de données de calibration pour **(a)** les zones forestières acides (R^2 = 0 ; P = 0.832 ; n = 1277 placettes) et **(b)** les zones forestières non-acides (R^2 = 0 ; P = 0.468 ; n = 1050 placettes). Le trait rouge représente la relation linéaire entretenue entre les résidus de pH et le temps.

Dans les cas de la variable C:N, nous avons constaté une absence de relation entre les valeurs résiduelles (C:N bio-indiqué – C:N mesuré) et le temps pour les forêts de feuillus (R^2 = 0 ; P = 0.552 ; **Fig. 6-7a**). Pour les forêts de conifères, nous avons mis en évidence l'existence d'une relation faible mais significative entre les résidus de C:N et le temps (R^2 = 0.01 ; P < 0.05 ; **Fig. 6-7b**). Cependant, nous avons remarqué ce qu'on a appelé un effet « étude » dans la tendance. En effet, les placettes de l'étude de Penel (1979) relevées en 1972 et 1977 dans le

massif Vosgien (n = 18 placettes) contribuent à la relation existante entre les résidus et le temps. Avec cette étude, la pente de cette relation est significative (a = 0.0395, $P < 0.05$), tandis qu'en son absence la pente et la relation deviennent non significatives (a = 0.0056, P = 0.7905 ; **Fig. 6-7b encadré haut**). Cela signifie par conséquent que le biais temporel à première vue mis en évidence dans les forêts de conifères n'est que la conséquence de conditions particulières observées sur une étude dont le faible poids dans nos résultats n'est pas de nature à fausser nos prédictions portant sur plus de 100 000 relevés.

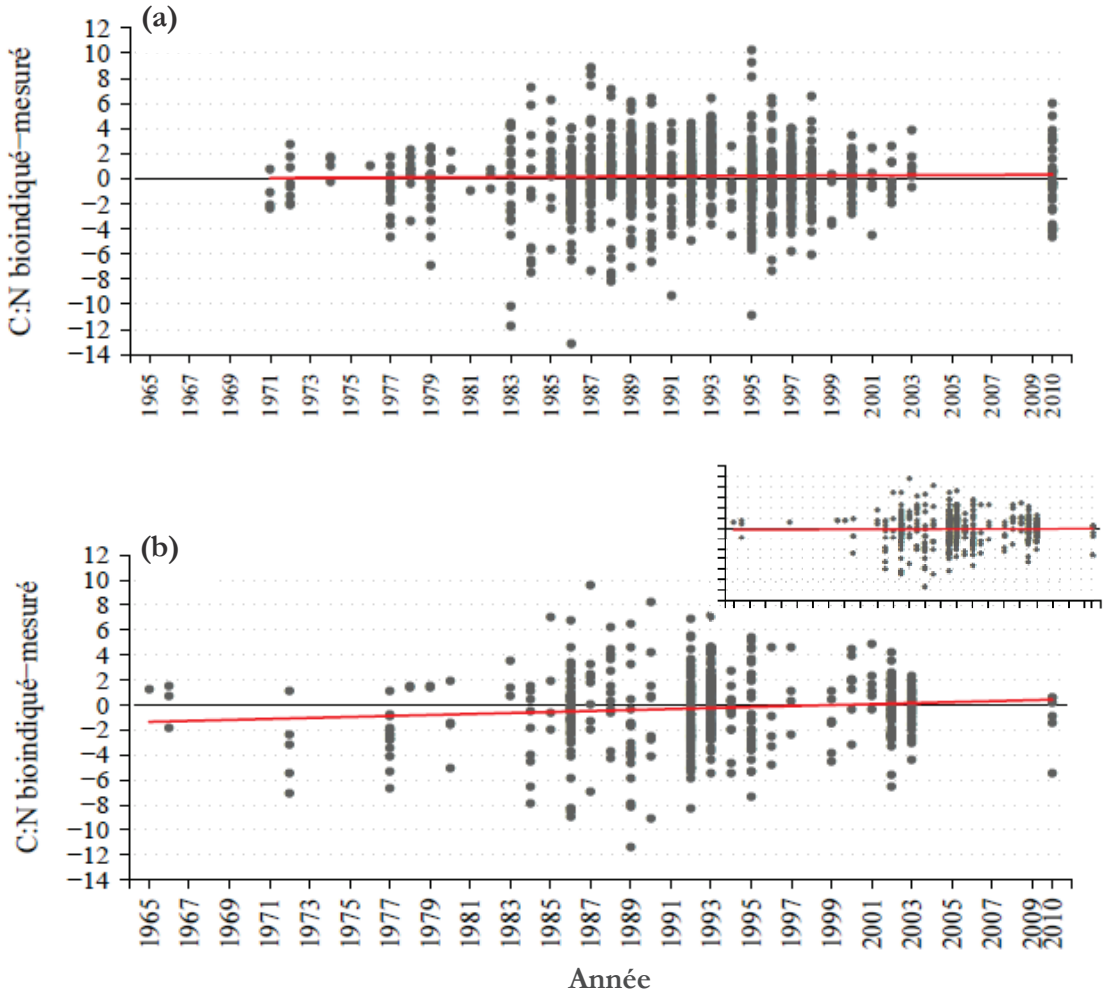


Figure 6-7 Évolution des résidus de C:N (C:N bio-indiqué – C:N mesuré) au cours du temps pour **(a)** les forêts de feuillus (R^2 = 0 ; P = 0.552 ; n = 1039 placettes) et **(b)** les forêts de conifères (R^2 = 0.01 ; P = 0.035 ; n = 467 placettes). Le trait rouge représente la relation linéaire entretenue entre les résidus de C:N et le temps. L'**encadré** en haut à droite de **(b)** montre la relation entre les résidus de C:N et les temps lorsque les relevés de Penel (1979) ne sont pas pris en compte (R^2 = 0; P = 0.7905; n = 449 plots).

Nous avons également vérifié la constance des résidus au cours du temps afin d'écarter toute structure temporelle de l'incertitude de nos prédictions qui pourrait être préjudiciable à

l'application des modèles de bio-indication développés aux chapitres 3 et 4 sur de long pas de temps. Nous avons observé qu'il n'existe pas de variations importantes de l'erreur de bio-indication entre les décennies analysées tant pour le pH que pour le C:N (**Table 6-1**).

Table 6-1 Erreur moyenne des prédictions (RMSE) entre les valeurs mesurées et bio-indiquées de **(a)** pH en zones acides et non-acides et **(b)** de C:N en forêts de conifères et de feuillus par décennie.

(a)	Décennie	*n* placettes	RMSE
Acide	1960	5	0.512
	1970	48	0.539
	1980	437	0.594
	1990	580	0.624
	2000	207	0.467
Non-acide	1960	2	0.732
	1970	48	0.836
	1980	327	0.737
	1990	449	0.727
	2000	224	0.542

(b)	Décennie	*n* placettes	RMSE
Conifères	1960	4	1.398
	1970	23	3.274
	1980	112	3.724
	1990	226	2.951
	2000	102	2.071
Feuillus	1960	0	-
	1970	63	1.974
	1980	373	2.852
	1990	513	2.484
	2000	90	2.097

L'ensemble de ces résultats indique une stabilité des résidus de pH et de C:N bio-indiqués pendant une période de 46 années. Aucune preuve notable de l'effet d'une possible adaptation des espèces sur la qualité de nos prédictions n'a donc été observée. Considérant que de forts changements de niveau de pollution atmosphérique ont été observés durant cette période (**Fig. 1-2**), il est probable que les mêmes relations s'appliquent au cours de l'ensemble de la période 1910-2010, et donc que la fonction de transfert utilisée pour la bio-indication y soit applicable.

6.1.5 La réponse de la flore aux conditions changeantes du sol est-elle décalée ?

Un décalage temporaire entre mesures (estimation des conditions au moment de la prise de données) et valeurs bio-indiquées (estimation des conditions antérieures à celles de la mesure) traduit un retard de la réponse de la flore aux changements de conditions de sols. A l'inverse une réaction rapide de la flore ne doit conduire à aucun décalage entre les mesures et les valeurs bio-indiquées (**Fig. 1-8**). Au cours de la période pour laquelle les mesures et les valeurs bio-indiquées de pH et C:N étaient disponibles (1965-2010), aucun décalage systématique n'a été observé. Il est vraisemblable que le délai de réponse de la flore aux

changements d'acidité et de disponibilité en azote des sols soit relativement faible car les écarts entre les mesures et les valeurs bio-indiquées restent constants et centrés sur zéro malgré de gros changements des niveaux de pollution au cours de la période 1960-2010 (**Figs. 6-6, 6-7**). De plus, nous avons observé une bonne cohérence entre l'évolution de pH et C:N bio-indiqués et celle des dépôts atmosphériques observés (partie 6.1.1) et modélisés (seulement pour le pH ; partie 6.1.2) ainsi qu'avec les tendances des conditions de sol mesurées par d'autres travaux (partie 6.1.3). Des études expérimentales ont montré que la flore répondait à peu près dans les 5 ans à la variation des conditions d'acidité (Fehlen et Picard, 1994; Hallbäcken et Zhang, 1998; Dulière *et al.*, 1999; Spiegelberger *et al.*, 2006) et de nutrition azotée du sol (Turkington *et al.*, 1998; Zechmeister *et al.*, 2007; Johansson *et al.*, 2012). Cela signifie que la flore répond à court terme aux variations d'acidité et de disponibilité en azote du sol, dans des délais qui semblent inférieurs à la résolution temporelle des chroniques présentées.

Bien que de nombreuses preuves semblent montrer que la réponse de la flore aux perturbations du sol soit assez réactive, nous avons toutefois pu mettre en évidence des différences d'évolution de pH bio-indiquées selon la nature du substrat (chapitre 3). En effet, nous avons montré que sur substrat acide la flore forestière répondait plus rapidement aux changements d'acidité du sol que sur substrat non-acide (**Fig. 3-3**). Nous pensons que la différence de propriétés géochimiques entre les substrats acide et non-acide est une explication pertinente à ce remaniement décalé des communautés végétales en milieu non-acide (Ulrich, 1983b; Kirk *et al.*, 2010). Nous considérons que la baisse du pH a été plus précoce en milieu acide (entre 1933 et 1984, années moyennes) que dans les zones non-acides (significative entre 1984 et 1997, années moyennes) car ces dernières ont une charge en cations basiques élevée (notamment en carbonates) conférant à ces sols un pouvoir tampon élevé retardant ainsi sa réponse aux dépôts acides (Ulrich, 1983b). Celui-ci aurait participé à la stabilité de la composition floristique des communautés herbacées, jusqu'à ce qu'il s'affaiblisse et que l'acidification se manifeste. De plus, le pic de dépôts azotés a été observé dans les années 1980 en France (**Fig. 1-2**). On pourrait donc penser que l'effet couplé des dépôts d'azote élevés et la haute nitrification ayant lieu dans les zones non-acides (Horswill *et al.*, 2008) pourrait expliquer l'acidification décalée de celles-ci en comparaison avec celle observée en zones acides.

Bien que nous ayons montré que l'évolution du C:N bio-indiquée était globalement en phase avec celle des dépôts atmosphériques d'azote mesurés sur le réseau CATAENAT à partir de

1993 (partie 6.1.1), elle le semble beaucoup moins lorsque nous la confrontons à l'évolution à long terme des dépôts modélisés par l'EMEP. En effet, un décalage sur le long terme de l'effet eutrophisant des dépôts atmosphériques azotés sur la flore semble possible dans ce cas. Alors que les dépôts d'azote n'ont cessé d'augmenter (principalement à partir de 1950), la bio-indication du C:N a révélé une nette diminution de la disponibilité en azote pour la flore jusqu'en 1984 et 1997 (années moyennes), respectivement, dans les peuplements de conifères et feuillus (**Fig. 4-6**). Une explication au décalage à long terme de l'évolution du C:N bio-indiqué pourrait être liée à l'effet du niveau d'acidité des sols sur la quantité d'azote mobilisable par les plantes (effet détaillé dans la partie suivante) ainsi qu'au vieillissement/développement des forêts.

6.2 Effet de l'interaction entre l'acidité et la disponibilité en azote des sols sur leurs évolutions bio-indiquées

Une augmentation de la disponibilité en azote (indiquée par une baisse de C:N) dans le sol était attendue en réponse à l'augmentation des dépôts d'azote observée au cours du 20ème siècle à l'échelle de la France. À l'inverse, nous avons obtenu un résultat étonnant : une augmentation du C:N indiquant une baisse de l'azote disponible dans les sols des forêts de conifères et de feuillus, respectivement, jusqu'en 1984 et 1997 (années moyennes), suivie d'une eutrophisation tardive de la flore depuis 1997 (année moyenne) soit une quinzaine d'années après le pic des dépôts atmosphériques azotés. Un tel décalage pourrait être lié aux changements d'acidité des sols qui déséquilibrent les conditions nutritionnelles (Ulrich et Matzner, 1986). L'acidification des sols des forêts françaises constatée jusqu'aux années 1980-1990 (chapitre 3) a en effet pu entraîner des changements majeurs dans les cycles des nutriments (cf. Johnston *et al.*, 1986; Emmett, 2007; Blanco *et al.*, 2012). À partir des données mesurées et bio-indiquées nous avons mis en évidence une relation négative entre le pH et le C:N du sol (**Fig. 6-8**), preuve que ces deux variables interagissent (cf. Stevens *et al.*, 2011b). Cependant la relation n'est pas uniforme. Lorsque le pH est inférieur à environ 5.5 cette relation négative est marquée ($R^2 = 0.10$, $P < 0.001$) tandis qu'à pH supérieur à 5.5 (environ) la relation disparaît ($R^2 = 0$; $P = 0.564$) (cf. Härdtle *et al.*, 2004). Une telle relation signifie que sur substrat acide les valeurs de pH et C:N sont liés, impliquant qu'une acidification supplémentaire de ces sols induit une réduction d'azote disponible par principalement l'inhibition des communautés microbiennes et des décomposeurs qui aboutit à la diminution de la décomposition et de la minéralisation de la matière organique et à l'accumulation de

litière (Baath *et al.*, 1980; Benham *et al.*, 2012). Elle induit aussi une diminution de la capacité d'échange cationique, du taux de saturation ainsi qu'un relargage des cations basiques du sol (Ulrich, 1983b; Blanco *et al.*, 2012). Ceux-ci participent à une diminution de la quantité d'azote disponible pouvant être stockée dans les sols et donc à une réduction des éléments nutritifs (e.g. N) directement mobilisables par les plantes (Blanco *et al.*, 2012).

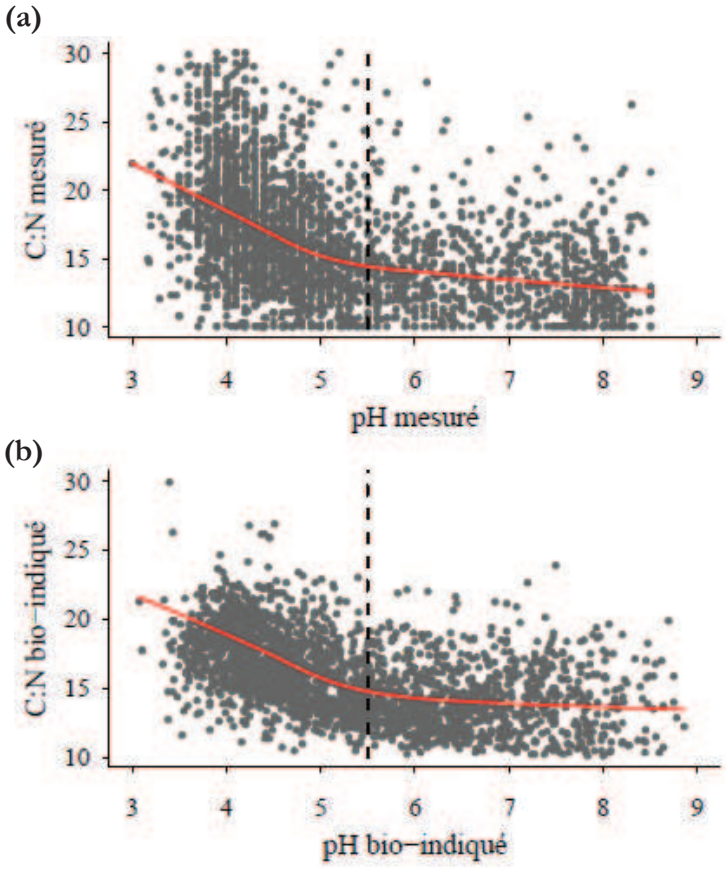


Figure 6-8 Relation entre le pH le C:N **(a)** mesurés et **(b)** bio-indiqués du sol (n = 2718). La courbe rouge montre la tendance des relations. Le trait pointillé indique le point d'inflexion de la courbe (pH ≈ 5.5).

De plus, le déséquilibre des nutriments, induit par l'acidification, a pu conduire à des changements dans la composition floristique (Thimonier *et al.*, 1994; Maskell *et al.*, 2010), surclassant ainsi le seul effet d'apports d'azote dans les écosystèmes forestiers français (au moins sur sol acide comme le montre la **figure 6-8**). Un tel processus est d'autant plus vraisemblable que l'effet cumulé de pollutions soufrées et azotées participe l'acidification des sols (Reuss et Johnson, 1986; De Schrijver, 2007). L'efficience de ce processus dans nos données est partiellement vérifiable par la comparaison des évolutions des changements d'acidité et de la disponibilité en azote obtenues par bio-indication sur substrat acide (partiellement car une corrélation entre des tendances n'est pas forcément une preuve

suffisante pour déterminer si effectivement les variables interagissent sur le plan temporel). Les évolutions présentées aux **figures 3-3** et **6-9** semblent corroborer une telle hypothèse, au moins sur les périodes les plus anciennes. En effet, sur substrat acide (qui nous intéresse particulièrement ici), nous avons observé une augmentation du C:N bio-indiqué jusqu'en 1966 (année moyenne) semblable à l'évolution de l'acidification mise en évidence par bio-indication sur la même période. Selon ce scénario le signal de l'effet de l'eutrophisation sur la flore serait devenu identifiable dans les zones forestières acides à partir de 1984 (année moyenne), c.-à-d. à partir de l'entrée dans une période de stabilité de pH (soit d'arrêt de l'acidification). Il est toutefois difficile de conclure à ce stade sans analyse complémentaire car sur sol non-acide, nous observons également une concordance entre l'augmentation du C:N bio-indiqué et l'acidification entre 1966 et 1984 (années moyennes) alors que pH et C:N ne sont normalement pas reliés sur un tel substrat (**Fig. 6-8**). À la **table 6-2** nous avons synthétisé l'effet, vraisemblable (mais qu'il nous est impossible de totalement vérifier), de l'évolution des dépôts acidifiants et eutrophisants (analysés de manière indépendante et combinée) sur le C:N du sol au cours du temps.

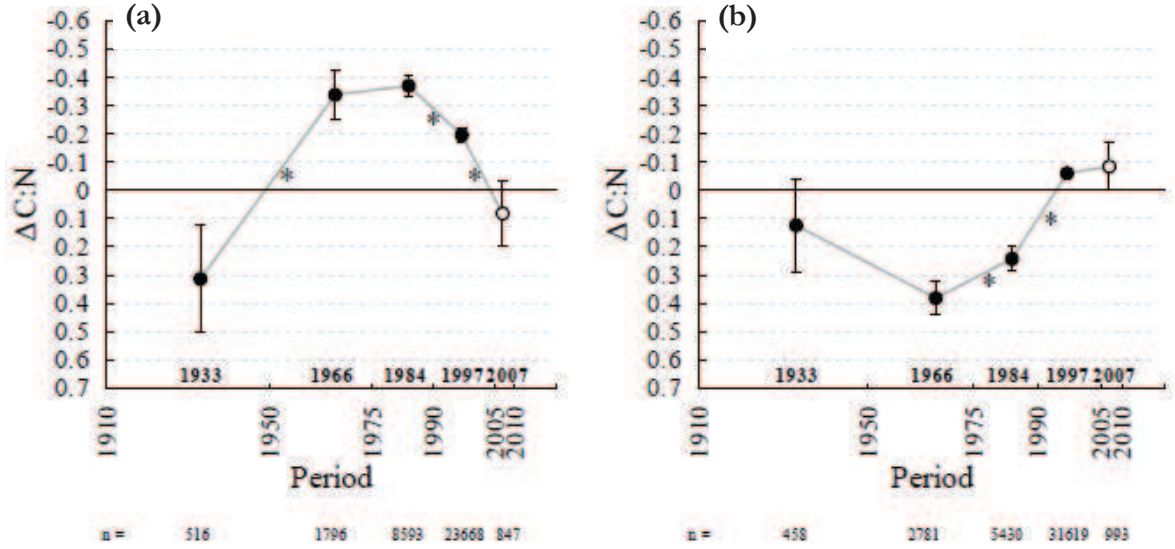


Figure 6-9 Comparaison des changements de la disponibilité en azote ($\Delta C{:}N$ = $C{:}N_{reference}$ – $C{:}N_{former}$) dans les sols forestiers français entre 1910 et 2010, retracés à partir du caractère bio-indicateur des communautés d'espèces herbacées sur substrat **(a)** acide et **(b)** non-acide. Les cercles représentent les valeurs moyennes des changements de C:N estimées à partir des paires de relevés disponibles pour chacune des périodes. Les barres d'erreur représentent l'écart-type de la moyenne. Les points noirs indiquent les changements de C:N significatifs dans une période *per se* ($P < 0.05$). Les astérisques indiquent des changements significatifs de C:N entre périodes successives ($P < 0.05$). Le test non-paramétrique de Wilcoxon a été appliqué. Le nombre de placettes (n) analysées pour chaque période dans les zones acides et non-acides est affiché en dessous de l'axe des abscisses.

Table 6-2 Schéma synthétique de l'effet indépendant et combiné de l'évolution des dépôts atmosphériques acidifiants et eutrophisants sur le C:N bio-indiqué des sols forestiers. La grosseur des cercles représente la quantité des dépôts à un instant *t* alors que l'orientation des flèches précise la nature de leurs effets sur la flore.

	1970	1990	2000
Dépôts acides	●	●	●
Effet sur le C:N	↗	↗	→
Dépôts azotés	●	●	●
Effet sur le C:N	→	↘	↘
Bilan des effets des dépôts acidifiants et eutrophisants sur le C:N	↗	→	↘

6.3 Effet des autres facteurs sur la flore : climat, gestion et vieillissement des peuplements *vs.* acidification et eutrophisation

Le changement climatique, l'eutrophisation, ainsi que l'acidification et le changement du type de gestion des écosystèmes font partie des changements globaux conduisant principalement le remaniement de la végétation (Brunet *et al.*, 1996; Decocq *et al.*, 2005; Van Calster *et al.*, 2007; Archaux *et al.*, 2009; Naaf et Wulf, 2011; Bertrand, 2012; Verheyen *et al.*, 2012) et l'érosion de la diversité végétale (Sala *et al.*, 2000; Baeten *et al.*, 2009). Même si le poids respectif de chaque facteur reste encore peu connu et que leur identification est toujours problématique (Emmett, 2007; Verheyen *et al.*, 2012), certaines études ont déterminé à partir des comparaisons spatio-temporelles la contribution des différents facteurs aux changements observés dans les écosystèmes (Duprè *et al.*, 2010; Stevens *et al.*, 2011a; Bertrand, 2012; Verheyen *et al.*, 2012). L'étude présentée au chapitre 5, nous a permis de tester à l'échelle locale les principaux facteurs susceptibles d'avoir contribué aux changements de flore. L'analyse de la composition floristique en lien avec les conditions changeantes de l'environnement nous a permis de mettre en évidence le rôle majeur de l'excès de nutriments dans le remaniement des communautés végétales de la forêt de Villey-Le-Sec, qui plus est en tenant compte de l'impact du climat, de la gestion forestière et de leurs changements respectifs sur ce processus.

6.3.1 Les effets de la gestion sylvicole et du vieillissement des peuplements

Les changements de la gestion forestière et d'occupation du sol, ainsi que l'acidification du sol sont connus pour avoir impacté la répartition des espèces herbacées forestières (Gilliam, 2007). Dans le nord-est de la France, le travail de Thimonier (1994) a montré que la sylviculture aurait participé au remaniement de la flore des forêts au début des années 1990, bien que le rôle majeur des dépôts atmosphériques dans ce processus ait été souligné (Thimonier, 1994). Au chapitre 5, nous avons utilisé la variation de l'indice de lumière d'Ellenberg (L) comme un indicateur global des perturbations naturelles ou anthropiques (tempête et gestion sylvicole révélé par l'ouverture du peuplement) et du vieillissement des peuplements (révélé par la fermeture du peuplement). Nous avons ainsi montré qu'à l'échelle de la forêt de Villey-Le-Sec, cet indice et celui de la disponibilité en azote sont ceux qui changent les plus entre les trois dates comparées (**Table 5-3**), révélant que la fermeture du milieu (cohérente avec un vieillissement normal du peuplement) et l'augmentation de la disponibilité en azote dans le sol (principalement à partir de 1991) ont impacté la flore. Dans une étude réalisée sur plusieurs forêts d'Europe, des changements semblables de composition

floristique (vers une prédominance d'espèces à haute demande nutritive et plus tolérantes à l'ombre) ont été observés. Toutefois, à la différence de nos résultats présentés au chapitre 5, les auteurs ont associé un tel changement à la diminution de l'intensité de la gestion qui aurait entraîné des changements dans la canopée (espèces à litière plus facilement décomposée et canopée plus dense), plus qu'aux dépôts azotés (Verheyen *et al.*, 2012). Dans notre cas, le fait que le poids estimé des changements de disponibilité en azote soit supérieur à celui des modifications de lumière sur la composition des communautés herbacées (**Table 5-2** ; **Fig. 5-3**), nous pousse à considérer que, dans la forêt de Villey-Le-Sec, l'apport croissant de litière en lien avec la fermeture du milieu n'est pas suffisante pour expliquer les changements de flore observés. De ce fait, l'accumulation des dépôts azotés y jouent très probablement un rôle important. Notre interprétation est aussi celle proposée par Thimonier *et al.* (1994) lors de l'analyse des deux premières campagnes d'inventaire réalisées dans la forêt de Villey-Le-Sec.

Afin de voir quel pourrait être l'impact du vieillissement sur nos résultats obtenus à large échelle spatiale, nous avons reconstruit l'évolution de l'indice L d'Ellenberg dans les forêts françaises de conifères et de feuillus au cours du 20ème siècle (**Fig. 6-10**). L'évolution que nous avons obtenue est cohérente avec celle que nous avons pu observer à l'échelle de la forêt de Villey-le-Sec (chapitre 5), soit une diminution de la lumière disponible pour les plantes du sous-bois que nous interprétons comme le signe d'une gestion sylvicole française basée principalement sur la capitalisation sur pied et donc globalement sur le vieillissement des peuplements forestiers. Parallèlement, nous avons observé une relation décroissante entre les indices N et L d'Ellenberg (**Fig. 6-11**). Si celle-ci peut expliquer l'augmentation de la disponibilité en azote combinée à la diminution de lumière à l'intérieur du peuplement observées entre 1972 et 2011 dans la forêt de Villey-Le-Sec (**Table 5-3**), elle est totalement contraire à l'évolution de la disponibilité en azote reportée au chapitre 4 à l'échelle du territoire forestier français (**Fig. 4-6**). En effet, la disponibilité en azote (mise en évidence par le suivi spatio-temporel des valeurs de C:N bio-indiquées) diminue jusqu'en 1984 et 1997, respectivement, pour les peuplements de conifères et de feuillus, alors que la luminosité dans les peuplements diminue elle aussi. Toutefois, à partir des années 2000, l'amélioration des conditions d'acidité et le niveau élevé des dépôts azotés combinés à l'augmentation (présumée) des dépôts de litière en lien avec le vieillissement des peuplements pourraient être une explication raisonnable à l'eutrophisation observée des forêts sur cette période. Bien qu'il soit extrêmement difficile de le vérifier avec l'approche utilisée, il est également intéressant d'observer un arrêt de la diminution de la disponibilité en azote entre 1966 et 1984 (années

moyennes ; avant une nouvelle baisse) dans les peuplements feuillus alors qu'au cours de cette même période la diminution se renforce dans les peuplements de conifères (**Fig. 4-6**). Considérant que la composition des espèces arborées est en partie contrôlée par la gestion sylvicole, cette différence pourrait s'avérer être le signe d'un impact de la sylviculture sur la disponibilité en azote des sols forestiers, où la litière des feuillus moins acidifiante et plus riche en azote que celle de conifères (McNulty *et al.*, 1991) participerait (entre autres facteurs) à une mobilisation plus rapide de l'azote pour la flore qu'en peuplement de conifères.

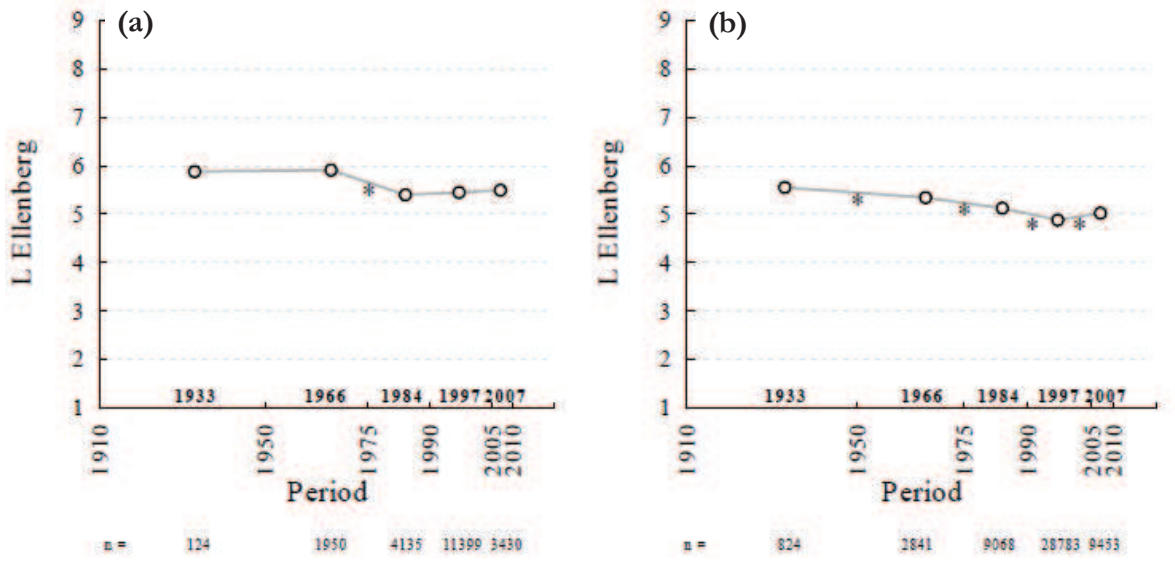


Figure 6-10 Evolution des conditions de lumière à l'intérieur des peuplements **(a)** de conifères et **(b)** des feuillus français entre 1910 et 2010 estimée à partir de l'indicateur de lumière (L) d'Ellenberg. Les cercles représentent les valeurs moyennes de L estimées à partir de la flore observée sur les relevés de chacune des périodes. Les astérisques indiquent la signification statistique de la différence des valeurs de L entre les périodes ($P < 0.05$). Le test non-paramétrique de Wilcoxon a été utilisé. Le nombre de placettes (n) analysé pour chaque période est noté en dessous de l'axe des abscisses.

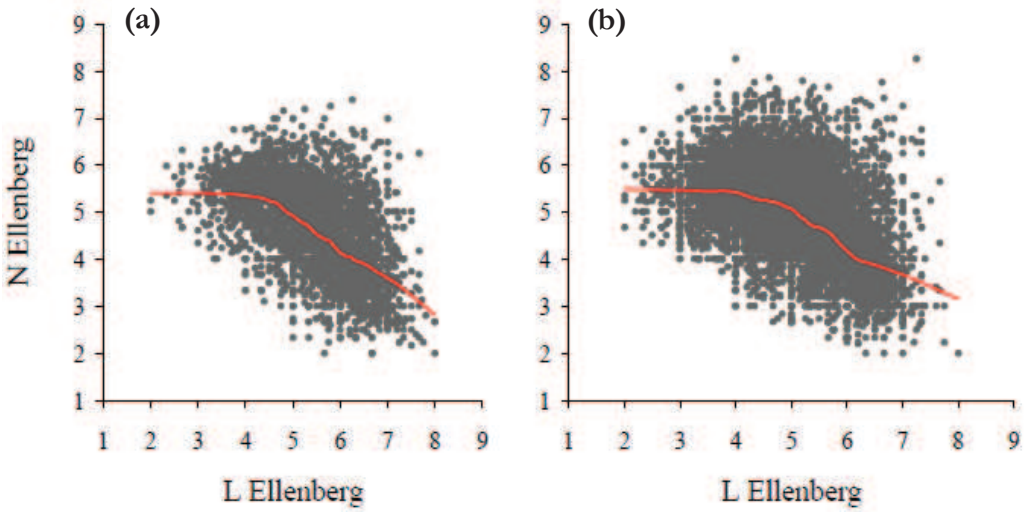


Figure 6-11 Relation entre les valeurs bio-indiquées de lumière (L) et de disponibilité en azote (N) d'Ellenberg dans les peuplements forestiers **(a)** de conifères (n = 3378) et **(b)** de feuillus (n = 9156) pour la période 2005-2010. Le trait rouge (*smooth curve*) représente la tendance de la relation entre les conditions lumineuses et de disponibilité en azote bio-indiquées.

6.3.2 Les effets du changement climatique

Le changement climatique est le phénomène actuellement le plus étudié parmi ceux qualifiés de changements globaux. À large échelle, le climat détermine la distribution des espèces et la composition des cortèges floristiques (Pearson et Dawson, 2003; Siefert *et al.*, 2012). Bertrand *et al.* (2011b) ont démontré que la flore forestière est soumise à une dette climatique en lien avec son incapacité à compenser totalement la hausse brutale des températures (**Annexe 1**). Cependant, les plantes répondent à d'autres changements environnementaux globaux étant donné le caractère multidimensionnel de la niche écologique (Vitousek *et al.*, 1997b; Bertrand, 2012). Ainsi, une récente étude a montré que le remaniement des communautés végétales forestières de plaine en réponse au réchauffement climatique actuel était modulé par d'autres changements écologiques et environnementaux parmi lesquels nous trouvons le changement de tolérance thermique dans les communautés, les évolutions des conditions lumineuses dans les peuplements forestiers et de la disponibilité en azote du sol entre 1965 et 2008 (Bertrand, 2012). Cela prouve donc que la réponse de la flore à l'évolution des conditions édaphiques observées au cours des 100 dernières années a très certainement interagit avec celle du climat. Si on se réfère aux résultats de Bertrand (2012), la récente eutrophisation des écosystèmes forestiers aurait favorisé le remaniement des communautés végétales herbacées vers des assemblages mieux adaptés au réchauffement climatique. Toutefois, il est difficile de déterminer précisément de quelle manière le changement climatique a pu interagir dans la réponse de la flore aux variations d'acidité et de disponibilité en azote que nous avons mise en évidence à large échelle (chapitres 3 et 4).

Dans l'étude que nous avons mené à Villey-Le-Sec (la seule où nous avons étudié l'effet potentiel du climat), nous avons observé que l'évolution des valeurs bio-indiquées de température reflétaient les effets du réchauffement climatique sur la flore entre 1991 et 2011. D'après les données météorologiques de la station de Tomblaine (station la plus proche ; distance = 20 km), la température moyenne a augmenté au cours de la seconde moitié du 20ème siècle s'accélérant à partir des années 1990 (température annuelle moyenne = 9.4°C entre 1954 et 1972, 9.7°C entre 1973 et 1991, et 10.7°C entre 1992 et 2010, données provenant de Météo-France). Nous mettons donc en évidence un effet du réchauffement climatique sur la flore de ce petit massif forestier localisé en plaine, tandis qu'à l'échelle de la France un tel effet n'a pas été observé (Bertrand *et al.*, 2011b). Dans les montagnes du Jura, Lenoir *et al.* (2010) ont signalé que la composition végétale des forêts était confrontée à des changements importants probablement liés à l'évolution climatique et à la dynamique des peuplements entre 1989 et

2007. Ils ont montré, à partir de la bio-indication, une variation vers des conditions de milieu plus chaudes et plus lumineuses par rapport aux conditions initiales qui expliqueraient l'augmentation de la fréquence des espèces thermophiles. À la différence de ce que nous constatons à Villey-Le-Sec, les changements observés de la composition végétale ne sont pas liés aux changements de disponibilité en azote qui restent stables au cours du temps (Lenoir *et al.*, 2010). D'autres études concordent avec ce que nous avons observé dans la forêt de Villey-Le-Sec indiquant qu'à l'échelle locale, l'interaction des dépôts azotés avec le climat module la composition des espèces dans les prairies acides atlantiques de France (Gaudnik *et al.*, 2011). Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, cela semble aussi se vérifier à large échelle spatiale (Bertrand, 2012), démontrant que l'interaction azote-climat peut jouer un rôle important dans le changement des communautés végétales et que le poids de ces facteurs sur les remaniements de flore diffèrent en fonction des échelles spatio-temporelles, des zones géographiques et des milieux étudiés.

6.4 Estimation des facteurs du sol par bio-indication

6.4.1 Intérêt et pertinence globaux de la méthode de bio-indication

Le fait que de nombreuses études ont mis en évidence des changements des conditions environnementales (à des échelles spatio-temporelles très variables) grâce au caractère bio-indicateur des espèces prouve la pertinence de cette approche ainsi que celle de la théorie de la conservation de la niche écologique chez les plantes (cf. Braak et Dame, 1989; Bertrand *et al.*, 2011b; Charru, 2012). La niche écologique, sur laquelle repose la bio-indication, apparaît donc être une base théorique robuste et fonctionnelle pour l'analyse de l'impact de changements environnementaux sur la flore. L'approche des indicateurs écologiques en représente une communément utilisée couvrant de larges niveaux d'organisation biologique, spatiale et temporelle au sein des écosystèmes (Niemi et McDonald, 2004). Certaines espèces végétales, ou groupes d'espèces indiquent, par leur présence ou absence, ou par leur vitalité, l'état sanitaire ou des conditions environnementales d'un milieu. Ainsi tout changement du milieu se reflète par un changement de fréquence (ou de vitalité) des espèces ayant un caractère bio-indicateur du facteur considéré, et spécialement celles qui sont les plus sensibles. Les plantes réagissent aux conditions des sols et le font assez vite face aux changements de leurs propriétés physico-chimiques (Falkengren-Grerup et Tyler, 1993; Fehlen et Picard, 1994; Payne *et al.*, 2012). Néanmoins dans certains cas, le remaniement des communautés d'espèces

n'opère pas aussi vite que les changements environnementaux (cf. Bertrand *et al.*, 2011b). Bien que dans cette situation la bio-indication ne permette plus une estimation précise et non biaisée des conditions environnementales étudiées, elle permet alors d'évaluer et quantifier la dynamique de la réponse des communautés aux changements environnementaux.

Les mesures des conditions environnementales (coûteuses en temps et en argent) couvrent rarement de longues périodes. Elles sont dans la plupart des cas limitées en quantité, en emprise géographique et concernent des périodes ponctuelles avant les années 1990. En France, les réseaux de surveillance (par exemple, les réseaux CATAENAT et MERA) ont été installés, seulement à partir des années 1990 et concernent un nombre restreint de placettes (n = 26 pour CATAENAT et 9 pour MERA). Ce type d'observations permet d'avoir un aperçu de l'intensité des pollutions et de leurs changements sur les trois dernières décennies et sur des sites particuliers qui ne peuvent à eux seuls être représentatifs de toutes les conditions et écosystèmes rencontrés en France. La question de l'évolution des sols et de la réponse de la végétation aux dépôts atmosphériques avant 1990 restait peu explorée. Comme les résultats de cette thèse le montrent, l'utilisation du caractère bio-indicateur de la flore est une approche intéressante pour répondre (au moins en partie) à ces manques et contraintes. Cette méthode statistique se base (dans notre travail) sur l'analyse et la calibration de la relation espèce/communauté-environnement à partir d'un échantillon de relevés floristiques pour lequel des mesures de l'environnement (dans notre cas le pH et le C:N) ont été réalisées. Celle-ci est ensuite appliquée plus largement sur un échantillon d'observations floristiques pour lequel nous ne disposons pas de mesures environnementales mais qui présente l'avantage d'être composé d'un nombre important de relevés couvrant une large emprise spatio (la totalité du territoire forestier français) -temporelle (la période 1910-2010 dans notre cas). La bio-indication a donc permis de reconstruire les conditions environnementales passées lorsque celles-ci manquaient, d'élargir la gamme des écosystèmes étudiés et de densifier la maille du territoire étudié. Plus précisément, nous avons étudié 31 972 placettes avant 1990 et 127 274 placettes après 1990 qui nous ont permis de reconstruire les conditions d'acidité et disponibilité en azote entre 1910-2010 (chapitres 3 et 4), période durant laquelle l'évolution des émissions et des dépôts atmosphériques polluants a été très contrastée. Cette utilisation de la bio-indication est aussi intéressante d'un point de vue coût-bénéfice (sur le plan financier et du temps requis) : (i) en valorisant d'importantes bases de données floristiques nationales (principalement financées par l'état) ainsi que par leur complémentarité (principal apport : EcoPlant = apport des mesures de pH et C:N ; Sophy = apport de relevés floristiques sur la

période antérieure à 1987 ; l'inventaire forestier = apport d'une grande quantité de relevés floristiques sur la période postérieure à 1987), et (ii) en nécessitant un nombre relativement limité de mesures directes de l'environnement pour la définition des valeurs indicatrices ou la calibration du modèle de bio-indication.

Notre approche pour déterminer l'évolution des changements de l'acidité et de la disponibilité en azote des sols forestiers dépend principalement de la relation entre ces conditions du sol et les espèces végétales qui structurent les communautés dans les forêts. Outre les avantages que nous avons déjà présenté, cette approche est d'autant plus pertinente dans le cadre de ce travail qu'il est reconnu que la disponibilité en nutriments (i) contraint les écosystèmes forestiers européens (Tamm, 1991), et (ii) représente une dimension importante de la niche écologique des espèces (par exemple, Bertrand et Marage, 2012) et de la composition des communautés (par exemple, Ellenberg *et al.*, 1992).

6.4.2 Les techniques de bio-indication

Comme détaillé dans le chapitre 2 (voir partie 2.4), plusieurs méthodes de bio-indication ont été testées et utilisées au cours de cette thèse. Si le cadre théorique de toutes ces méthodes est la niche écologique des espèces, la manière dont les valeurs bio-indiquées sont estimées varie grandement, allant de la détermination des préférences environnementales des espèces à dire d'expert (cf. Ellenberg *et al.*, 1992), au calcul statistique et à la modélisation de la niche des espèces indépendamment les unes des autres (cf. Gégout *et al.*, 2003), ou encore à la modélisation directe de la relation existant entre la composition des communautés et l'environnement (cf. Braak et Juggins, 1993). La méthode sans doute la plus utilisée, dont nous nous sommes aussi servis au chapitre 5, est celle d'Ellenberg (e.g. Diekmann et Dupré, 1997; Hawkes *et al.*, 1997; Falkengren-Grerup et Schöttelndreier, 2004; Šamonil et Vrška, 2008; Chytrý *et al.*, 2009; entre autres). Conçue à partir de l'expertise d'écologue sur l'écologie des espèces, cette approche n'est pas strictement comparable à la méthode que nous avons utilisée aux chapitres 3 et 4 de cette thèse pour prédire les valeurs bio-indiquées du pH et C:N. En effet bien que très pratiques et utilisées, les valeurs indicatrices d'Ellenberg s'apparentent plus à des classes ou catégories de condition environnementale balayant l'ensemble des gradients considérés. Cette caractéristique limite les comparaisons avec des mesures directes de l'environnement ainsi que d'un point de vue strictement statistique ne devrait pas permettre à ces valeurs indicatrices d'être moyennées pour estimer des conditions environnementales.

Cependant elles correspondent à des gradients de disponibilité en azote, eau, lumière, acidité, humidité- difficiles à mesurer et dont les mesures sont souvent partielles et parfois peu corrélées entre elles. Cette particularité justifie leur utilisation en complément des méthodes formalisées à partir de mesures de l'environnement. Parmi les méthodes statistiques que nous avons testé, la WA-PLS a été préférée car elle est la plus performante (erreur et biais minimal, et elle présente une corrélation maximale entre les valeurs prédites et observées pour le pH) et la plus pertinente sur le plan écologique (ajustement d'un modèle à partir de la réponse des communautés aux variations de pH et C:N alors que les autres méthodes sont centrées sur le comportement propre à chaque espèce vis-à-vis de ces facteurs). Bien que la méthode comme telle ait été déjà exploitée pour bio-indiquer le climat (Pla et Catalan, 2005; Bertrand *et al.*, 2011b), le pH de l'eau (Bradshaw *et al.*, 2000) ou l'humidité du sol (Woodland *et al.*, 1998), elle est utilisée pour la première fois pour suivre l'évolution de paramètres édaphiques, ainsi que leur impact sur la végétation à large échelle spatio-temporelle.

6.4.3 Les paramètres bio-indiqués : le pH et le C:N du sol

L'estimation de l'acidité des sols (pH) via la bio-indication réalisée à partir de la composition des communautés végétales teste la relation existant entre celles-ci et le gradient de pH. D'après les études expérimentales cette relation est très forte, conduisant à une forte réactivité de la flore en réponse aux changements des conditions d'acidité des sols (réponse dans les cinq ans post-traitement, Falkengren-Grerup et Tyler, 1993; Hallbäcken et Zhang, 1998; Dulière *et al.*, 1999; Spiegelberger *et al.*, 2006). Le présent travail vérifie et confirme *in situ* l'importance de cette relation comme le prouve la relative bonne performance prédictive du modèle WA-PLS utilisé pour la bio-indication (R^2 = 0.80 obtenu sur un jeu de données indépendant, **Fig. 3-2**). Dans le cas de la disponibilité en azote, bien que les plantes semblent très réactives aux variations de cette ressource (e.g. Fehlen et Picard, 1994; Turkington *et al.*, 1998; Carroll *et al.*, 1999; Nordin *et al.*, 2006; Zechmeister *et al.*, 2007; Payne *et al.*, 2012), la relation obtenue entre les valeurs bio-indiquées et mesurées est assez faible (R^2 = 0.31, **Fig. 4-4**) alors que l'erreur de prédiction est la plus faible de toutes les méthodes testées (RMSE = 3.192). Cette faible valeur de l'ajustement du modèle peut être due à des mesures directes imprécises du carbone et de l'azote ou à des différences dans les horizons prélevés (cf. Härdtle *et al.*, 2004; Kristensen *et al.*, 2004; Nave *et al.*, 2009) qui peuvent affaiblir la relation entre la disponibilité en azote du sol et la composition des communautés végétales (cf. Rowe *et al.*, 2006). La validité du C:N en tant qu'indicateur de la disponibilité en azote dans les sols n'est

cependant plus à démontrer et n'est pas remise en cause ici. Andrianarisoa *et al.* (2009) ont signalé une relation entre la valeur mesurée du pourcentage de nitrification et la valeur bio-indiquée de C:N plus forte (R^2 = 0.66) qu'avec la valeur mesurée de C:N (R^2 = 0.51). Toutefois des travaux ont montré qu'il était plus facile de mettre en évidence des changements de flore en lien avec la fluctuation de la disponibilité en azote lorsque la variable considérée (i) était moins intégrative (e.g. ne tenant pas compte de la quantité de carbone organique présent dans le sol) et (ii) rendait mieux compte de la quantité d'azote mobilisable par les plantes (e.g. le C:N est un bon indicateur du niveau de nitrification, moins de la quantité d'azote absorbable par les plantes) que le C:N (e.g. Stevens *et al.*, 2004; Emmett *et al.*, 2010), comme peut l'être par exemple une teneur en azote du sol directement mobilisable par les végétaux.

6.4.4 Les limites de la bio-indication

Même si les ajustements obtenus entre les mesures et les valeurs bio-indiquées montrent une relation étroite de la flore avec les conditions d'acidité et de disponibilité en azote, la bio-indication ne remplace pas les mesures directes. Comme Draaijers et Erisman (1995) le soutiennent, l'échantillonnage et les analyses chimiques des conditions du sol et des dépôts, ainsi que l'évaluation simultanée des composants biologiques des écosystèmes permettent une quantification précise des conditions et des apports réels des polluants dans les sols. De plus, jusqu'à présent la bio-indication à partir des espèces ou des cortèges floristiques reste (à notre connaissance) uni-variable (bien que la PLS, partie intégrante de la WA-PLS, devrait permettre de prédire plusieurs variables simultanément à partir d'un même cortège floristique ; Mevik et Wehrens, 2007). Une méthode prédisant simultanément plusieurs conditions environnementales à partir du même cortège floristique serait intéressante à développer et/ou tester, de manière à tenir compte de la colinéarité entre variables environnementales pendant la calibration. Cela permettrait alors de prédire des combinaisons de conditions environnementales propres aux différents assemblages floristiques rencontrés *in situ* en ayant un souci particulier à réduire (voire supprimer, dans le meilleur des cas) l'effet des co-variables environnementales sur les prédictions. Cela serait très appréciable dans notre travail pour différencier complètement les interactions entre l'acidité et la disponibilité en azote des sols présentes dans nos prédictions et pouvant nuire à leur exactitude.

Un autre point à considérer pouvant s'avérer limiter l'utilisation et la pertinence des méthodes de bio-indication, est le niveau de l'erreur des prédictions comparé à celui des changements

que l'on souhaite mettre en évidence. C'est lorsque l'on travaille à partir d'un nombre limité de données que ce point devient réellement problématique. Dans cette situation et principalement lorsque l'erreur des prédictions est supérieure au niveau des changements mis en évidence, il est difficile de conclure car il est impossible de déterminer si les variations des valeurs bio-indiquées au cours du temps ou dans l'espace sont induites par un réel changement écologique ou par l'erreur de prédiction. Dans ce travail, nous avons enregistré des erreurs de prédiction de l'ordre de 0.59 et 3.13 dans le jeu de données de validation, respectivement, pour le pH et le C:N. D'autre part, nous avons observé des changements de pH et C:N au cours du 20ème siècle compris entre –0.38 et 0.08 unités de pH et entre –0.57 et 0.13 unités de C:N, soit des changements inférieurs aux erreurs de prédictions respectives des valeurs de pH et C:N bio-indiquées. Le fait que nous travaillions sur de large base de données (n = 120 216 placettes et 82 581 placettes pour le pH et C:N, respectivement) augmente la représentativité de nos résultats, diminue l'intervalle de confiance de nos prédictions et permet de distinguer des évolutions significatives entre périodes (même pour le C:N où le niveau élevé de l'erreur de bio-indication pourrait être problématique).

Une dernière incertitude possible liée à la bio-indication concerne la pertinence des échelles spatio-temporelles entre les mesures et les valeurs bio-indiquées. En effet, le pH et le C:N sont mesurés à partir d'échantillons de sol prélevés sur l'horizon A d'une fosse pédologique, soit une zone très localisée à l'intérieur de la placette utilisée pour l'inventaire floristique (réalisée sur une surface de 400 m² dans la majorité des cas). Par conséquent, la mesure de pH et de C:N peut n'être que partiellement représentative de la flore s'y développant (dans le cas d'une variation sensible de ces gradients à l'intérieur de la placette). De plus, il existe très probablement aussi une incertitude temporelle de la mesure du fait qu'elle représente l'état du sol à la date du relevé alors que la flore est représentative de conditions environnementales couvrant des pas de temps plus long. Ces deux types d'incertitudes, spatiales et temporelles, entre la chimie mesurée du sol et la flore inventoriée participent indéniablement à l'incertitude de nos prédictions lors de la bio-indication et cela sans pouvoir le quantifier ni même le contrôler en amont de nos analyses (cf. Gégout, 2006). De plus, il faut souligner que la résolution spatiale de la bio-indication (la placette) et la résolution temporelle de notre étude (comparaison de périodes pluriannuelles) sont plus en accord avec la dynamique des végétaux qu'avec la résolution ponctuelle dans le temps et l'espace obtenue par la mesure de la chimie du sol. Dès lors, seule une part de la différence entre les valeurs mesurées et bio-indiquées peut être interprétée comme de « l'erreur ». Des répétitions de mesures sur les placettes, sur

des profondeurs variant légèrement (e.g. de 3 à 20 cm) et tout au long de l'année permettraient de déterminer l'incertitude de mesure du pH et du C:N à l'échelle de la placette et simultanément d'estimer l'erreur *stricto sensu* sur les valeurs prédites par bio-indication.

6.4.5 Qualité et exhaustivité des données

Comme mentionné précédemment la quantité des données floristiques que nous avons assemblée pour cette thèse est très élevée (n = 180 955 placettes) s'avèrant être un facteur important de la robustesse de nos résultats. Toutefois, l'utilisation de grandes bases de données en Écologie est souvent associée à des problèmes potentiels pouvant impacter les résultats tels que l'autocorrélation spatiale ou les différences de nomenclature taxonomique. L'autocorrélation spatiale, définie comme la variation spatiale non indépendante d'une variable (Legendre et Legendre, 1998; Fortin et Dale, 2005; Dormann *et al.*, 2007), a été rencontrée lorsque les relevés provenant de Sophy, EcoPlant et l'inventaire forestier ont été assemblés. Une telle quantité de données induit indéniablement une proximité spatiale entre relevés pouvant être préjudiciable à la modélisation de la relation espèce/communauté-environnement (Dormann *et al.*, 2007). Dans notre travail, nous avons conservé les relevés distants de plus de 500 m pour constituer notre base de calibration des modèles de bio-indication utilisés aux chapitres 3 et 4. Cela a permis de diminuer le sur-échantillonnage des zones géographiques et des conditions environnementales associées afin de limiter l'autocorrélation spatiale dans les modèles utilisés. Concernant les différences taxonomiques, il est reconnu que l'utilisation non-uniforme des noms de plantes compromet l'utilité des grandes bases de données floristiques (Jansen et Dengler, 2010). Nous avons effectué une vérification et homogénéisation des noms d'espèces, sous-espèces et variétés présentes dans notre base de données à partir des nomenclatures disponibles dans le but d'améliorer la robustesse de nos analyses. Un autre problème associé à la qualité des données est l'effet de l'observateur. Étant donné la nature et l'ampleur des bases de données utilisées ici, cette difficulté nous échappe. Cependant, dans la partie de cette thèse la plus sensible à cet effet (du fait du faible nombre de données inventoriées et de l'emprise locale de l'étude), c.-à-d. l'étude réalisée dans la forêt de Villey-Le-Sec (chapitre 5), nous avons tenté au mieux de contrôler cette difficulté potentielle (au moins partiellement). La participation de deux personnes ayant contribué à la campagne de 1991, nous a permis de caler les méthodes d'échantillonnage utilisées en 2011 sur le protocole des inventaires précédents, et donc minimiser les erreurs systématiques induites par l'utilisation de protocoles différents.

Bien que la base de données utilisée aux chapitres 3 et 4 couvre une période de temps très importante, le déséquilibre spatio-temporel des données disponibles entre 1910 et 2010 est évident. Ce dernier se traduit notamment par des mesures de pH et C:N disponibles seulement à partir de 1960 (**Fig. 6-4**) pour la calibration des modèles de bio-indication ce qui correspond à la période au cours de laquelle les émissions et dépôts atmosphériques étaient importants (**Fig. 1-2**). Afin de vérifier que l'incertitude liée aux valeurs bio-indiquées n'est pas dépendante de la période (et donc de l'évolution des dépôts atmosphériques et plus largement de l'environnement), nous avons vérifié sur les données disponibles que l'écart entre les valeurs mesurées et bio-indiquées restait constante au cours du temps (voir partie 6.1.4). Cela nous a permis d'être assurés de l'absence de biais temporel dans la reconstruction des conditions d'acidité et de disponibilité en azote passées des sols forestiers à partir de la flore. Cependant, le manque de mesures directes du pH et C:N entre 1910 et 1960 ne nous permet de valider avec certitude cette absence de biais pour cette période.

Toujours en lien avec le déséquilibre spatio-temporel des données disponibles entre 1910 et 2010, nous avons dû contrôler la variabilité spatiale des relevés floristiques entre les périodes analysées afin que les évolutions de pH et de C:N bio-indiqués traduisent de réels changements temporels. Les bases de données Sophy, EcoPlant et de l'inventaire national n'ont pas été conçues pour un suivi permanent de placettes, elles reposent au contraire sur une majorité de placettes temporaires plus ou moins bien réparties sur le territoire forestier au cours du temps (**Fig. 2-2**). Étant donné qu'elles constituent la base de notre analyse pour déterminer l'évolution des changements d'acidité et de disponibilité en azote des sols forestiers français, le traitement et contrôle d'une telle variabilité spatiale s'est imposé. La méthode novatrice que nous avons proposé aux chapitre 3 et 4, reposant sur la comparaison des valeurs bio-indiquées de paires de relevés de deux périodes différentes et proches spatialement, nous a permis de gérer ce problème. La validation de la méthode réalisée à partir de points de contrôle a montré son efficacité et l'élimination de tout biais possible dû à la variabilité géographique des relevés (**Figs. 3-3, 4-6**). L'application de cette approche à de grandes bases de données couvrant une longue période et de larges étendues géographiques, semble particulièrement fiable et apte à compléter le suivi que l'on peut réaliser sur un réseau de placettes (semi-)permanentes (caractérisé par un nombre souvent limité de placettes avec des mesures directes précises mais couvrant de courtes périodes de temps).

7 CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

Dans ce travail de thèse nous avons étudié les évolutions de l'acidité et de l'azote dans les sols forestiers dans un contexte où les pollutions atmosphériques ont fortement varié, ainsi que leurs effets sur les communautés végétales aux échelles nationale et locale. Premièrement, nous avons retracé les conditions d'acidité et de disponibilité en azote des sols forestiers au cours du 20ème siècle et début du 21ème siècle grâce au caractère bio-indicateur des espèces herbacées, assumant que celles-ci répondent rapidement aux changements des conditions d'acidité et de disponibilité en azote des sols. Nous avons ainsi révélé une acidification des sols, de l'ordre de -0.34 unités de pH jusqu'en 1984 en milieu acide et de -0.19 jusqu'en 1997 en milieu non-acide, cohérente avec l'augmentation des dépôts acidifiants sur cette période (chapitre 3). À partir de ces dates, nous avons mis en évidence, pour la première fois (à notre connaissance), un arrêt de l'acidification sur substrat acide et même un recouvrement de la flore vis-à-vis de l'acidification des sols sur substrat non-acide, c.-à-d. un remaniement des communautés végétales forestières herbacées vers des assemblages d'espèces moins acidiphiles que ceux observés par le passé. En milieu acide, nous n'avons observé aucun décalage dans la réponse de la flore par rapport à l'évolution des dépôts soufrés qui a diminué à partir des années 1980. En milieu non-acide, nous expliquons que le plus faible niveau des changements de pH ainsi que le décalage d'environ 13 ans de l'observation de l'arrêt de l'acidification à partir de la flore par rapport au milieu acide peuvent être dus aux caractéristiques biogéochimiques de ce type de milieu. En effet, la forte teneur en carbonates stockés dans ces sols ainsi que leur pouvoir tampon élevé peuvent neutraliser les protons H^+ libérés par les composés acidifiants et limiter/retarder l'acidification des sols. Spatialement, nos résultats confirment (i) l'entrée dans une période de recouvrement des effets de l'acidification sur les écosystèmes forestiers au cours des dernières décennies avec une majorité des zones ne montrant pas de changement de pH, et (ii) soulignent la grande variabilité spatiale des changements du pH qui n'a pu qu'être partiellement reliée à celle des dépôts atmosphériques acidifiants.

Sur le plan de la variation temporelle de l'azote disponible dans les sols forestiers, nous avons observé une augmentation du C:N (donc une diminution de l'azote disponible) de +0.79 et +0.74 unités de C:N jusqu'aux années 1980 et 1990, respectivement, dans les forêts de conifères et feuillus (chapitre 4). Après une phase de stabilité du C:N (visible dans les peuplements de conifères jusqu'en 1997), nous avons mis en évidence les premiers signes

d'une eutrophisation de la flore. Comparée à l'évolution de l'acidité mise en évidence au chapitre 3, la corrélation à l'évolution des dépôts azotés est beaucoup moins claire et les causes de l'évolution de la disponibilité en azote dans les sols forestiers estimée à partir du caractère bio-indicateur de la flore sont plus difficilement déterminables. Il est probable que :

(i) l'acidification des sols forestiers mis en évidence dans cette thèse au cours du 20ème siècle inhibe les communautés de décomposeurs aboutissant la diminution de la décomposition et de la minéralisation, ainsi que induit aussi une diminution de la capacité d'échange cationique, du taux de saturation et un relargage des cations basiques du sol. Ceux-ci participent à une diminution de la quantité d'azote disponible pouvant être stockée dans les sols et donc à une réduction des éléments nutritifs (e.g. N) directement mobilisables par les plantes. Sous cet effet, moins d'azote serait disponible lors d'une période intense d'acidification. Il est également possible que l'acidification des sols soit un facteur plus contraignant pour la flore. Sous ces deux scénarios, la flore ne pourrait répondre à l'augmentation des dépôts atmosphériques d'azote et au niveau élevé actuel de ceux-ci (comparé à ceux observés au début du siècle) qu'après un arrêt de l'acidification ou même après une diminution de l'acidité des sols forestiers.

(ii) la variable C:N ne soit pas la meilleure variable à étudier pour mettre en évidence des changements de disponibilité en azote par la flore. Il est vrai que le C:N est plus un indicateur du niveau de nitrification qu'un indicateur de la quantité d'azote disponible pour la nutrition des plantes.

À l'échelle du territoire français métropolitain, nos résultats montrent la grande variabilité spatiale des changements de la disponibilité en azote tant en forêts de conifères que de feuillus, et confirment la tendance temporelle de diminution de l'azote disponible dans les sols forestiers français jusqu'aux années 1980-1990.

Deuxièmement, nous avons analysé la nature et les causes environnementales des changements de flore à l'échelle locale (forêt de Villey-Le-Sec, localisée dans le nord-est de la France) à partir de la comparaison de trois campagnes d'inventaires sur des placettes semi-permanentes entre 1972 et 2011. Les facteurs d'acidité et de disponibilité en azote expliquent en partie la variation de la composition de la végétation de cette forêt. Nous avons mis en évidence une augmentation des espèces nitrophiles/mésophiles dans les communautés végétales herbacées s'accélérant à partir de 1991. Ces changements sont caractéristiques d'une

réponse à l'eutrophisation des sols forestiers. Bien que le gradient d'acidité semble expliquer majoritairement la variation spatiale de la composition des communautés végétales de la forêt, son effet temporel est beaucoup moins évident. La fermeture du milieu indiquée par une diminution de la luminosité à l'intérieur des peuplements et reflétant une gestion forestière n'altérant pas ou peu le vieillissement naturel des peuplements participe aussi au remaniement de la flore mais de manière sensiblement inférieure à l'eutrophisation des sols. Bien que nous n'ayons pu le mettre en évidence dans toutes les analyses pratiquées, l'effet du changement climatique sur la flore nous a été révélé par une hausse des valeurs bio-indiquées des températures montrant un remaniement des communautés végétales vers des assemblages d'espèces adaptées à un climat plus chaud.

Concernant les phénomènes d'acidification et d'eutrophisation des sols forestiers français, les dépôts atmosphériques d'origine anthropique jouent sans doute un rôle majeur, même si d'autres facteurs (d'ordre sylvicole, climatiques) peuvent aussi intervenir. Toutefois, le poids précis de chacun de ces facteurs reste difficile à déterminer et nous supposons qu'il est probablement différent suivant les échelles spatio-temporelles, les zones géographiques mais aussi les périodes étudiées. L'évaluation de l'impact des changements environnementaux sur la végétation reste complexe en raison des nombreux facteurs écologiques qui peuvent aussi être impliqués ou interagir. Cette thèse a fourni quelques progrès sur ce plan (l'effet des interactions acidité/disponibilité en azote, sylviculture/disponibilité en azote, et climat/disponibilité en azote sur les communautés végétales et les propriétés chimiques du sols ont été principalement discutés dans cette thèse), mais il reste encore beaucoup à faire pour réussir à quantifier et comprendre l'ensemble des effets des changements environnementaux et de leurs interactions possibles sur le fonctionnement des sols et la composition des communautés végétales forestières. Par exemple, nos résultats à l'échelle locale ne nous permettent pas de tirer des conclusions solides et généralisables sur l'importance des changements de chacun des facteurs dans la composition des communautés végétales. Ceci souligne le besoin d'études supplémentaires visant spécifiquement à étudier l'effet simultané des différents changements environnementaux impliqué dans les changements globaux comme cela a pu être fait par certaines études précurseurs (cf. Bertrand, 2012).

Cette thèse fournit une (rare) évaluation quantitative des changements des conditions d'acidité et de disponibilité en azote des sols forestiers sur le long terme et à large échelle spatiale. Cette double résolution souligne notre participation à la compréhension spatio-temporelle des

impacts des changements globaux sur les écosystèmes en complément des résultats obtenus par les nombreuses études qui ont abordé à ces échelles les effets du changement climatique. De plus, à l'échelle plus locale comme à celle globale nous mettons en évidence non seulement le niveau d'intensité des changements des conditions environnementales mais nous fournissons aussi une analyse de la dynamique des évolutions d'acidité et de disponibilité en azote du sol, soit une estimation de l'accélération ou du ralentissement de ces changements. Ce dernier point est particulièrement intéressant soulignant l'importance de pérenniser voir amplifier les réseaux de suivi mis en place à la fin du 20ème siècle afin d'atteindre une meilleure représentativité des écosystèmes français. Ceci pourrait contribuer à l'élucidation des effets interactifs des différents stress environnementaux sur les écosystèmes ainsi qu'à la compréhension des phénomènes de décalage de réponse des végétaux forestiers aux changements environnementaux (comme la pollution atmosphérique par exemple). La vérification des phénomènes de recouvrement de l'acidité des sols d'une part et l'analyse à moyen terme des dynamiques d'eutrophisation d'autre part représentent des intérêts forts du maintien des réseaux de suivi. Nous mettons également en avant ici l'importance des inventaires forestiers nationaux comme celui de l'IGN en France. À travers notre travail, nous montrons le potentiel et la puissance de l'utilisation des placettes de l'IGN comme observatoire spatio-temporel de l'effet des changements globaux sur les écosystèmes.

Les résultats de ma thèse montrent donc que les écosystèmes forestiers français ne semblent plus s'acidifier alors que leur eutrophisation n'a pas ralenti. De par ce résultat, le niveau encore élevé des dépôts azotés ainsi que le fait que des entrées mêmes modestes de polluants peuvent avoir des impacts significatifs et cumulatifs se prolongeant dans le temps ; il semble que l'application de mesures environnementales plus sévères visant à mieux contrôler et diminuer les dépôts atmosphériques soit nécessaire pour observer dans le futur les premiers signes du ralentissement de l'eutrophisation et une confirmation de l'arrêt ou recouvrement de l'acidification des écosystèmes forestiers. Il sera intéressant dans le futur de continuer le suivi entrepris ici afin de confirmer ou infirmer les tendances actuelles.

Sur le plan méthodologique, notre travail souligne l'importance de la flore herbacée pour retracer les conditions édaphiques passées et actuelles des écosystèmes forestiers à partir de son caractère bio-indicateur. Toutefois, la bio-indication ne doit pas être utilisée sans d'importantes vérifications statistiques, et notamment sans (i) la vérification que son incertitude n'est pas plus grande que les changements écologiques que l'on veut mettre en évidence, (ii) l'assurance qu'elle peut être appliquée sur de longues périodes sans biais, et (iii)

l'assurance de la pertinence statistique et écologique de la méthode employée. De plus, il est important de rappeler que sans une confrontation à des valeurs mesurées cette approche n'a aucun sens. Elle ne peut donc être considérée que comme un complément aux observations de mesures directes des conditions édaphiques et de leur variation dans les écosystèmes forestiers. Enfin, si elle est pratique pour mettre en évidence des changements de conditions environnementales ou de l'impact global de ceux-ci sur la flore à n'importe quelle échelle spatiale, la bio-indication ne peut remplacer une analyse rigoureuse des changements en terme de présence ou fréquence des espèces observées dans les cortèges floristiques pour déterminer si tout ou partie des espèces sont impliqués dans de tels changements, ou encore les espèces les plus sensibles aux changements environnementaux. Toujours sur le plan méthodologique, nous avons montré qu'il était possible, à partir d'une approche novatrice de comparaison spatio-temporelle, de valoriser les grosses bases de données floristiques disponibles présentant pourtant le désavantage d'être composées d'observations temporaires dont la variabilité spatio-temporelle ne devrait pas pouvoir permettre l'analyse et la comparaison des changements de flore au cours du temps.

En fonction du travail déjà réalisé dans ma thèse, une perspective immédiate de recherche est l'approfondissement de la compréhension de l'effet des changements globaux sur la flore et notamment de l'effet des interactions entre eux, ce qui implique de s'affranchir de l'actuelle difficulté à les déterminer. D'autres perspectives se dégagent à la suite des résultats obtenus :

Continuer le suivi des placettes (semi-)permanentes établies à Villey-Le-Sec. Les particularités du milieu dans ce petit massif forestier lui confèrent un grand intérêt : on y retrouve une grande variabilité des conditions édaphiques (i.e. on couvre la quasi-totalité du gradient du pH du sol [valeurs de pH entre 4 et 8] dans une aire de 350 ha) et donc des groupes d'espèces à préférences nutritionnelles variées (i.e. calcifuges, neutrophiles, calcicoles). Ce dispositif a déjà fait l'objet de trois campagnes de terrain couvrant une période de 40 ans tant sur le plan floristique qu'édaphique ce qui est plutôt rare dans les études écologiques publiées. Il est donc important de pérenniser ce dispositif de suivi temporel afin de valoriser les ressources déjà mobilisées et développer les nouvelles questions scientifiques que posent les résultats obtenus. Lors de la dernière campagne de terrain en 2011, des efforts ont été faits pour assurer une relocalisation plus précise des placettes, qui facilitera sans aucun doute de futurs ré-échantillonnages. De plus, Villey-Le-Sec pourrait être un site pilote pour la compréhension des effets des changements globaux sur la végétation.

Poursuivre le suivi à large échelle spatiale afin de voir si l'arrêt actuel de l'acidification des sols forestiers perdure, et de mettre en évidence les premiers signes d'un arrêt de l'eutrophisation.

Confronter les analyses à des résolutions spatiales différentes allant du global au local. Nous avons déjà vu qu'en changeant d'échelle (globale et locale) l'analyse d'un phénomène peut varier. Ce qu'il nous faut encore comprendre est jusqu'à quelle échelle les changements des conditions du milieu observés à petite échelle peuvent être généralisables à une échelle supérieure.

Continuer à améliorer la cartographie des conditions d'acidité et de disponibilité en azote du sol bio-indiquées tout en affinant sa résolution spatio-temporelle. Jusqu'à présent la résolution des cartes générées à partir des valeurs bio-indiquées de pH et C:N au niveau national est d'1 km, est-il possible de modéliser plus finement ? en combinant bio-indication et d'autres co-variables ? en améliorant les méthodes de bio-indication et de spatialisation utilisées ? Les résultats des premiers travaux réalisés à l'échelle régionale semblent prometteurs sur le sujet mais mérite confirmation (Riofrío-Dillon, 2010). De plus, l'apport annuel de données d'inventaires forestiers par l'IGN offre de nouvelles possibilités sur le plan temporel. En effet, si l'obtention de cartes annuelles par bio-indication ne semble pas pertinente sur le plan géo-statistique et écologique, il semble possible de cartographier les conditions édaphiques sur des périodes successives. Ce type de données pourrait à terme avoir un intérêt particulier pour la spatialisation actuelle et rétrospective de la distribution des espèces et des communautés. Concernant la disponibilité en azote du sol, il serait intéressant de tester si d'autres variables que le C:N (comme la quantité d'azote du sol par l'exemple) ne sont pas de meilleurs indicateurs de la quantité d'azote mobilisable par les plantes et donc plus à même à expliquer le déterminisme édaphique de la présence des espèces et les changements de flore au cours du temps.

Vérifier le lien avec les données des dépôts à l'échelle de la France. Celles modélisées sur le long terme par l'EMEP nous ont permis d'évaluer la relation spatio-temporelle des dépôts et des valeurs bio-indiquées par la flore en termes d'acidité et de disponibilité en azote. Nous observons une certaine cohérence temporelle des tendances, mais pas sur le plan spatial où l'échelle grossière des données des dépôts ainsi que la non prise en compte de l'effet du couvert forestier empêchent la comparaison. Des données modélisées sur une période de temps très courte mais à une résolution plus fine nous ont permis de comprendre les changements spatiaux spécifiques de l'acidité et de la nutrition azotée en lien avec les dépôts

atmosphériques. Me fondant sur ce qui précède, je pense qu'avec la nouvelle grille de l'EMEP d'une résolution spatiale de 10km x 10km nous serions capables d'améliorer les résultats obtenus jusqu'à présent et de démontrer quantitativement la relation dépôts-changements d'acidité et de disponibilité en azote des sols (à condition que le couvert forestier n'affecte pas de manière importante la quantité de dépôts acidifiants et eutrophisants).

8 BIBLIOGRAPHIE

BIBLIOGRAPHIE

Aardenne JAv, Dentener FJ, Olivier JGJ, Klein Goldewijk CGM, Lelieveld J (2001) A 1° x 1° resolution data set of historical anthropogenic trace gas emissions for the period 1890-1990. *Global Biogeochemical Cycles,* **15**, 909-928.

Aber J, Aber JD, Nadelhoffer K, Steudler JP, Melillo JM (1989) Nitrogen Saturation in Northern Forest Ecosystems. *BioScience,* **39**, 378-386.

Aber J, McDowell W, Nadelhoffer K, Magill A, Berntson G, Kamakea M, McNulty S, Currie W, Rustad L, Fernandez IJ (1998) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems. *BioScience,* **48**, 921-934.

Aber JD, Magill A, Boone R, Melillo JM, Steudler P (1993) Plant and Soil Responses to Chronic Nitrogen Additions at the Harvard Forest, Massachusetts. *Ecological Applications,* **3**, 156-166.

Adams M, Ineson P, Binkley D, Cadisch G, Tokuchi N, Scholes M, Hicks K (2004) Soil Functional Responses to Excess Nitrogen Inputs at Global Scale. *AMBIO: A Journal of the Human Environment,* **33**, 530-536.

Akselsson C, Belyazid S, Hellsten S, Klarqvist M, Pihl-Karlsson G, Karlsson PE, Lundin L (2010) Assessing the risk of N leaching from forest soils across a steep N deposition gradient in Sweden. *Environmental Pollution,* **158**, 3588-3595.

Alewell C, Manderscheid B, Gerstberger P, Matzner E (2000) Effects of reduced atmospheric deposition on soil solution chemistry and elemental contents of spruce needles in NE—Bavaria, Germany. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science,* **163**, 509-516.

Andrianarisoa KS (2009) Minéralisation de l'azote et nitrification dans les écosystèmes forestiers : effet du type de sol et de l'essence forestière. PhD thesis, Université Henri Poincaré, Nancy I, Nancy, 251 pp.

Andrianarisoa KS, Zeller B, Dupouey JL, Dambrine E (2009) Comparing indicators of N status of 50 beech stands (Fagus sylvatica L.) in northeastern France. *Forest Ecology and Management,* **257**, 2241-2253.

Anne P (1945) Carbone organique (total) du sol et de l'humus. *Ann. Agron.,* **15**, 161-172.

Archaux F, Boulanger V, Camaret S, Corcket E, Dupouey J-L, Forgeard F, Heuzé P, Lebret-Gallet M, Mårell A, Payet K, Ulrich E, Behr P, Bourjot P, Brethes A, Chevalier R, Dobremez J-F, Dumas Y, Dume G, Foret M, Kieffer C, Mirlyaz W, Picard J-F, Richard F, Savoie J-M, Seytre L, Timbal J, Touffet J, Triesch S (2009). *RENECOFOR - Dix ans de suivi de la végétation forestière: avancées méthodologiques et évolution temporelle de la*

flore (1994/95-2005). Office National des Forêts, Direction Technique et Commercial Bois, ISBN 978-2-84207-339-8.

Austin MP (2002) Spatial prediction of species distribution: an interface between ecological theory and statistical modelling. *Ecological Modelling,* **157**, 101-118.

Baath E, Berg B, Lohm U, Lundgren B, Lundkvist H, Rosswall T, Soderstrom B, Wiren A (1980) Effects of experimental acidification and liming on soil organisms and decomposition in a Scots pine forest. *Pedobiologia,* **20**, 85-100.

Badeau N, Landmann G (1996). *Les sols forestiers français : premiers résultats de l'inventaire écologique du réseau européen. Les Cahiers du DSF 1-1996. (La Santé des forêts [France] en 1995)*. Min. Agri., Pêche, Alim., DERF, Paris.

Baeten L, Bauwens B, De Schrijver A, De Keersmaeker L, Van Calster H, Vandekerkhove K, Roelandt B, Beeckman H, Verheyen K (2009) Herb layer changes (1954-2000) related to the conversion of coppice-with-standards forest and soil acidification. *Applied Vegetation Science,* **12**, 187-197.

Bahr A, Ellström M, Schnoor TK, Påhlsson L, Olsson PA (2012) Long-term changes in vegetation and soil chemistry in a calcareous and sandy semi-natural grassland. *Flora - Morphology, Distribution, Functional Ecology of Plants,* **207**, 379-387.

Baker LA, Herlihy AT, Kaufmann PR, Eilers JM (1991) Acidic Lakes and Streams in the United States: The Role of Acidic Deposition. *Science,* **252**, 1151-1154.

Becker M (1979) Une étude phyto-écologique sur les plateaux calcaires du Nord-Est (Massif de Haye-54). Utilisation de l'analyse des correspondances dans la typologie des stations. Relations avec la productivité et la qualité du hêtre et du chêne. *Annals of Science Forest,* **36**, 93-124.

Benham SE, Vanguelova EI, Pitman RM (2012) Short and long term changes in carbon, nitrogen and acidity in the forest soils under oak at the Alice Holt Environmental Change Network site. *Science of The Total Environment,* **421–422**, 82-93.

Bernhardt-Römermann M, Kudernatsch T, Pfadenhauer J, Kirchner M, Jakobi G, Fischer A (2007) Long-term effects of nitrogen deposition on vegetation in a deciduous forest near Munich, Germany. *Applied Vegetation Science,* **10**, 399-406.

Bertills U, Näsholm T (2000). *Effects of Nitrogen Deposition on Forest Ecosystems.* Report 5067, Swedish Environmental Protection Agency, Trelleborg.

Bertrand R, Gégout J-C, Bontemps J-D (2011a) Niches of temperate tree species converge towards nutrient-richer conditions over ontogeny. *Oikos,* **120**, 1479-1488.

Bertrand R, Lenoir J, Piedallu C, Riofrío-Dillon G, de Ruffray P, Vidal C, Pierrat J-C, Gégout J-C (2011b) Changes in plant community composition lag behind climate warming in lowland forests. *Nature,* **479**, 517-520.

Bertrand R (2012) Réponse spatio-temporelle de la végétation forestière au réchauffement climatique. Evaluation du remaniement de la végétation et caractérisation de l'effet des facteurs écologiques et géographiques le modulant à l'échelle de l'espèce et des communautés. PhD thesis, AgroParisTech, Nancy, France, 305 pp.

Bertrand R, Marage D (2012) Importance des variables non-climatiques pour le déterminisme environnemental des végétaux. In: *EcoVeg8*. Nancy, France.

Bertrand R, Perez V, Gégout J-C (2012) Disregarding the edaphic dimension in species distribution models leads to the omission of crucial spatial information under climate change: the case of Quercus pubescens in France. *Global Change Biology,* **18**, 2648-2660.

Birks HJB, Line JM, Juggins S, Stevenson AC, Braak CJFT (1990) Diatoms and pH Reconstruction. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. B, Biological Sciences,* **327**, 263-278.

Birks HJB (1998) D.G. Frey and E.S. Deevey Review 1: Numerical tools in palaeolimnology – Progress, potentialities, and problems. *Journal of Paleolimnology,* **20**, 307-332.

Blagodatskaya EV, Anderson T-H (1998) Interactive effects of pH and substrate quality on the fungal-to-bacterial ratio and qCO2 of microbial communities in forest soils. *Soil Biology and Biochemistry,* **30**, 1269-1274.

Blake L, Goulding KWT, Mott CJB, Johnston AE (1999) Changes in soil chemistry accompanying acidification over more than 100 years under woodland and grass at Rothamsted Experimental Station, UK. *European Journal of Soil Science,* **50**, 401-412.

Blanco JA, Wei XH, Jiang H, Jie CY, Xin ZH (2012) Impacts of enhanced nitrogen deposition and soil acidification on biomass production and nitrogen leaching in Chinese fir plantations. *Canadian Journal of Forest Research,* **42**, 437-450.

Bobbink R, Hornung M, Roelofs JGM (1998) The effects of air-borne nitrogen pollutants on species diversity in natural and semi-natural European vegetation. *Journal of Ecology,* **86**, 717-738.

Bobbink R, Hicks K, Galloway J, Spranger T, Alkemade R, Ashmore M, Bustamante M, Cinderby S, Davidson E, Dentener F, Emmett B, Erisman JW, Fenn M, Gilliam F, Nordin A, Pardo L, De Vries W (2010) Global assessment of nitrogen deposition effects on terrestrial plant diversity: a synthesis. *Ecological Applications,* **20**, 30-59.

Bodin J, Badeau V, Bruno E, Cluzeau C, Moisselin J-M, Walther G-R, Dupouey J-L (2012) Shifts of forest species along an elevational gradient in Southeast France: climate change or stand maturation? *Journal of Vegetation Science*, DOI: 10.1111/j.1654-1103.2012.01456.x.

Bontemps J-D, Hervé J-C, Leban J-M, Dhôte J-F (2011) Nitrogen footprint in a long-term observation of forest growth over the twentieth century. *Trees - Structure and Function,* **25**, 237-251.

Bouwman A, Van Vuuren D, Derwent R, Posch M (2002) A Global Analysis of Acidification and Eutrophication of Terrestrial Ecosystems. *Water, Air, & Soil Pollution,* **141**, 349-382.

Braak CJF, Dame H (1989) Inferring pH from diatoms: a comparison of old and new calibration methods. *Hydrobiologia,* **178**, 209-223.

Braak CJF, Juggins S (1993) Weighted averaging partial least squares regression (WA-PLS): an improved method for reconstructing environmental variables from species assemblages. *Hydrobiologia,* **269-270**, 485-502.

Bradshaw AD, Hardwick K (1989) Evolution and stress—genotypic and phenotypic components. *Biological Journal of the Linnean Society,* **37**, 137-155.

Bradshaw EG, Jones VJ, Birks HJB, Birks H (2000) Diatom responses to late-glacial and early-Holocene environmental changes at Kråkenes, western Norway. *Journal of Paleolimnology,* **23**, 21-34.

Brady TJ, Monleon VJ, Gray AN (2010) Calibrating vascular plant abundance for detecting future climate changes in Oregon and Washington, USA. *Ecological Indicators,* **10**, 657-667.

Braun-Blanquet J (1932) *Plant sociology, the study of plant communities.* New-York, NY, US.

Braun J (1915) *Les Cévennes Méridionales (Massif de l'Aigoual). Etude phytogéographique.* Société Générale d'Imprimerie, Genève.

Brisse H, Ruffray Pd, Grandjouan G, Hoff M (1995) European vegetation survey : la banque de données phytosociologiques "Sophy". *Annali di Botanica,* **53**, 191-222.

Brunet J, Falkengren-Grerup U, Tyler G (1996) Herb layer vegetation of south Swedish beech and oak forests—effects of management and soil acidity during one decade. *Forest Ecology and Management,* **88**, 259-272.

Brunet J, Diekmann M, Falkengren-Grerup U (1998) Effects of nitrogen deposition on field layer vegetation in south Swedish oak forests. *Environmental Pollution,* **102**, 35-40.

Bussotti F, Ferretti M (1998) Air pollution, forest condition and forest decline in Southern Europe: an overview. *Environmental Pollution,* **101**, 49-65.

Carpenter SR, Caraco NF, Correll DL, Howarth RW, Sharpley AN, Smith VH (1998) Nonpoint pollution of surface waters with phosphorus and nitrogen. *Ecological Applications,* **8**, 559-568.

Carroll JA, Caporn SJM, Cawley L, Read DJ, Lee JA (1999) The effect of increased deposition of atmospheric nitrogen on Calluna vulgaris in upland Britain. *New Phytologist,* **141**, 423-431.

Chapin III FS, Bloom AJ, Field CB, Waring RH (1987) Plant Responses to Multiple Environmental Factors. *BioScience,* **37**, 49-57.

Charru M (2012) La productivité forestière dans un environnement changeant. Caractérisation multi-échelle de ses variations récentes à partir des données de l'Inventaire Forestier National (IFN) et interprétation environnementale. PhD Thesis, AgroParisTech, Nancy, France, 417 pp.

Chase JM, Leibold MA (2003) *Ecological niches: linking classic and contemporary approaches.* University of Chicago Press, Chicago, Illinois, USA.

Chytrý M, Hejcman M, Hennekens SM, Schellberg J (2009) Changes in vegetation types and Ellenberg indicator values after 65 years of fertilizer application in the Rengen Grassland Experiment, Germany. *Applied Vegetation Science,* **12**, 167-176.

CITEPA (2012). *Inventaire des émissions de polluants atmosphériques en France au titre de la Convention sur la Pollution Atmosphérique Transfrontalière à Longue Distance et de la Directive Européenne relative aux plafonds d'émissions nationaux (NEC).* CITEPA 956nfr, Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique - CEE-NU, Paris, France.

Clark CM, Hobbie SE, Venterea R, Tilman D (2009) Long-lasting effects on nitrogen cycling 12 years after treatments cease despite minimal long-term nitrogen retention. *Global Change Biology,* **15**, 1755-1766.

Cluzeau C, Dupouey J-L, Drapier J, Virion R (2001) Etude des modifications a long terme de la végétation forestière a partir des données de l'IFN. *Revue Forestière Française*, 413-419.

Coudun C, Gégout J-C (2005) Ecological behaviour of herbaceous forest species along a pH gradient: a comparison between oceanic and semicontinental regions in northern France. *Global Ecology and Biogeography,* **14**, 263-270.

Crimmins SM, Dobrowski SZ, Greenberg JA, Abatzoglou JT, Mynsberge AR (2011) Changes in Climatic Water Balance Drive Downhill Shifts in Plant Species' Optimum Elevations. *Science,* **331**, 324-327.

Croisé L, Ulrich E, Duplat P, Jaquet O (2005) Two independent methods for mapping bulk deposition in France. *Atmospheric Environment,* **39**, 3923-3941.

Dambrine E, Ulrich E, Cénac N, Durand P, Gauquelin T, Mirabel P, Nys C, Probst A, Ranger J, Zéphoris M (1995). Atmospheric Deposition in France and Possible Relation with Forest Decline. In: *Forest Decline and Atmospheric Deposition Effects in the French Mountains.* (eds Landmann G, Bonneau M) pp. 177-200. Springer, Berlin.

Dambrine E, Pollier B, Poszwa A, Ranger J, Probst A, Viville D, Biron P, Granier A (1998) Evidence of current soil acidification in spruce stands in the Vosges Mountains, north-eastern France. *Water Air and Soil Pollution,* **105**, 43-52.

De Schrijver A, Mertens J, Geudens G, Staelens J, Campforts E, Luyssaert S, De Temmerman L, De Keersmaeker L, De Neve S, Verheyen K (2006) Acidification of forested podzols in North Belgium during the period 1950–2000. *Science of The Total Environment,* **361**, 189-195.

De Schrijver A (2007) Acidification and eutrophication of forests on sandy soil: effects of forest type and deposition load. Ph.D. thesis, Ghent University, Belgium, 189 pp.

De Schrijver A, De Frenne P, Ampoorter E, Van Nevel L, Demey A, Wuyts K, Verheyen K (2011) Cumulative nitrogen input drives species loss in terrestrial ecosystems. *Global Ecology and Biogeography,* **20**, 803-816.

de Tillesse M, Devillez F (1995) Modélisation du niveau trophique des sols forestiers : évaluation du pH en fonction des groupements phytosociologiques. *Ann. For. Sci.,* **52**, 353-364.

de Vries W, Leeters EEJM, Hendriks CMA, van Dobben H, van den Burg J, Boumans LJM (1995). Large scale impacts of acid deposition on forests and forest soils in the Netherlands. In: *Acid Atmospheric Deposition and its Effects on Terrestial Ecosystems in the Netherlands* (eds Heij GJ, Erisman JW) pp. 261-277. Elsevier.

de Vries W, van der Salm C, Reinds GJ, Erisman JW (2007) Element fluxes through European forest ecosystems and their relationships with stand and site characteristics. *Environmental Pollution,* **148**, 501-513.

Decocq G, Aubert M, Dupont F, Bardat J, Wattez-Franger A, Saguez R, de Foucault B, Alard D, Delelis-Dusollier A (2005) Silviculture-driven vegetation change in a European temperate deciduous forest. *Annals of Forest Science,* **62**, 313-323.

Degron R (1998) La conversion des forêts domaniales feuillues françaises (1860-1888) : Une grande vague brisée. *Revue Forestière Française,* **50**, 71-84.

Dengler J, Jansen F, Glöckler F, Peet RK, De Cáceres M, Chytrý M, Ewald J, Oldeland J, Lopez-Gonzalez G, Finckh M, Mucina L, Rodwell JS, Schaminée JHJ, Spencer N (2011) The Global Index of Vegetation-Plot Databases (GIVD): a new resource for vegetation science. *Journal of Vegetation Science,* **22**, 582-597.

Dentener F, Drevet J, Lamarque JF, Bey I, Eickhout B, Fiore AM, Hauglustaine D, Horowitz LW, Krol M, Kulshrestha UC, Lawrence M, Galy-Lacaux C, Rast S, Shindell D, Stevenson D, Van Noije T, Atherton C, Bell N, Bergman D, Butler T, Cofala J, Collins B, Doherty R, Ellingsen K, Galloway J, Gauss M, Montanaro V, Müller JF, Pitari G, Rodriguez J, Sanderson M, Solmon F, Strahan S, Schultz M, Sudo K, Szopa S, Wild O (2006a) Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: A multimodel evaluation. *Global Biogeochemical Cycles,* **20**, 1-21.

Dentener F, Stevenson D, Ellingsen K, van Noije T, Schultz M, Amann M, Atherton C, Bell N, Bergmann D, Bey I, Bouwman L, Butler T, Cofala J, Collins B, Drevet J, Doherty R, Eickhout B, Eskes H, Fiore A, Gauss M, Hauglustaine D, Horowitz L, Isaksen ISA, Josse B, Lawrence M, Krol M, Lamarque JF, Montanaro V, Müller JF, Peuch VH, Pitari G, Pyle J, Rast S, Rodriguez J, Sanderson M, Savage NH, Shindell D, Strahan S, Szopa S, Sudo K, Van Dingenen R, Wild O, Zeng G (2006b) The Global Atmospheric Environment for the Next Generation. *Environmental Science & Technology,* **40**, 3586-3594.

Dickinson NM, Turner AP, Lepp NW (1991) How Do Trees and Other Long-Lived Plants Survive in Polluted Environments? *Functional Ecology,* **5**, 5-11.

Diekmann M, Dupré C (1997) Acidification and eutrophication of deciduous forests in northwestern Germany demonstrated by indicator species analysis. *Journal of Vegetation Science,* **8**, 855-864.

Diekmann M, Falkengren-Grerup U (1998) A new species index for forest vascular plants: development of functional indices based on mineralization rates of various forms of soil nitrogen. *Journal of Ecology,* **86**, 269-283.

Diekmann M, Brunet J, Ruhling A, Falkengren-Grerup U (1999) Effects of Nitrogen Deposition: Results of a Temporal-Spatial Analysis of Deciduous Forests in South Sweden. *Plant Biology,* **1**, 471-481.

Diekmann M (2003) Species indicator values as an important tool in applied plant ecology – a review. *Basic and Applied Ecology,* **4**, 493-506.

Dirnböck T, Greimler J, Lopez S P, Stuessy TF (2003) Predicting Future Threats to the Native Vegetation of Robinson Crusoe Island, Juan Fernandez Archipelago, Chile. *Conservation Biology,* **17**, 1650-1659.

Dirnböck T, Mirtl M, Dullinger S, Grabner M-T, Hochrathner P, Hülber K, Karrer G, Kleinbauer I, Mayer W, Peterseil J, Pfefferkorn-Dellali V, Reimoser F, Reimoser S, Türk R, Willner W, Zechmeister H (2007). *Effects of nitrogen and sulphur deposition on forests and forest biodiversity. Austrian Integrated Monitoring Zöbelboden.* Umweltbundesamt, Vienna.

Dise NB, Wright RF (1995) Nitrogen leaching from European forests in relation to nitrogen deposition. *Forest Ecology and Management,* **71**, 153-161.

Dise NB, Matzner E, Forsius M (1998) Evaluation of organic horizon C:N ratio as an indicator of nitrate leaching in conifer forests across Europe. *Environmental Pollution,* **102**, 453-456.

Dormann CF, McPherson JM, Araújo MB, Bivand R, Bolliger J, Carl G, Davies RG, Hirzel A, Jetz W, Kissling WD, Kühn I, Ohlemüller R, Peres-Neto PR, Reineking B, Schröder B, Schurr FM, Wilson R (2007) Methods to account for spatial autocorrelation in the analysis of species distributional data: a review. *Ecography,* **30**, 609-628.

Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. *Water, Air, and Soil Pollution,* **85**, 2253-2258.

Driscoll CT, Likens GE, Church MR (1998) Recovery of Surface Waters in the Northeastern U.S. from Decreases in Atmospheric Deposition of Sulfur. *Water, Air, & Soil Pollution,* **105**, 319-329.

Driscoll CT, Lawrence GB, Bulger AJ, Butler TJ, Cronan CS, Eagar C, Lambert KF, Likens GE, Stoddard JL, Weathers KC (2001) Acidic deposition in the northeastern United States: sources and inputs, ecosystem effects, and management strategies. *BioScience,* **51**, 180-198.

Dudley B, Gunn I, Carvalho L, Proctor I, O'Hare M, Murphy K, Milligan A (2012) Changes in aquatic macrophyte communities in Loch Leven: evidence of recovery from eutrophication? *Hydrobiologia,* **681**, 49-57.

Dulière J-F, Carnol M, Dalem S, Remacle J, Malaisse F (1999) Impact of dolomite lime on the ground vegetation and on potential net N transformations in Norway spruce (Picea abies (L.) Karst.) and sessile oak (Quercus petraea (Matt.) Lieb.) stands in the Belgian Ardenne. *Annals of Forest Science,* **56**, 361-370.

Dupouey J-L, Thimonnier A, Lebourgeois F, Becker M, Picard J-F, Timbal J (1999) Changements de la végétation dans les forêts du Nord-Est de la France entre 1970 et 1990. *Revue Forestière Française,* **2**, 219-230.

Duprè C, Stevens CJ, Ranke T, Bleeker A, Peppler-Lisbach C, Gowing DJG, Dise NB, Dorland EDU, Bobbink R, Diekmann M (2010) Changes in species richness and composition in European acidic grasslands over the past 70 years: the contribution of cumulative atmospheric nitrogen deposition. *Global Change Biology,* **16**, 344-357.

Dzwonko Z (2001) Assessment of light and soil conditions in ancient and recent woodlands by Ellenberg indicator values. *Journal of Applied Ecology,* **38**, 942-951.

Ellenberg H, Weber HE, Düll R, Wirth V, Werner W, Paulissen D (1992) Zeigerwerte von Pfl anzen in Mitteleuropa. *Scripta Geobotanica,* **18**, 1-248.

EMEP (2011) EMEP/MSC-W modelled air concentrations and depositions. Available at: http://webdab.emep.int/Unified_Model_Results/ (accessed: 04/11/2011).

Emmett B (2007) Nitrogen Saturation of Terrestrial Ecosystems: Some Recent Findings and Their Implications for Our Conceptual Framework. *Water, Air, & Soil Pollution: Focus,* **7**, 99-109.

Emmett BA, Reynolds B, Chamberlain PM, Rowe E, Spurgeon D, Brittain SA, Frogbrook Z, Hughes S, Lawlor AJ, Poskitt J, Potter E, Robinson DA, Scott A, Wood C, Woods C (2010). *Countryside Survey: Soils Report from 2007*. Technical Report No. 9/07 NERC, Centre for Ecology & Hydrology, Wallingford.

Erisman JW, Sutton MA, Galloway J, Klimont Z, Winiwarter W (2008) How a century of ammonia synthesis changed the world. *Nature Geosci,* **1**, 636-639.

Evans C, Reynolds B, Jenkins A, Helliwell R, Curtis C, Goodale C, Ferrier R, Emmett B, Pilkington M, Caporn S, Carroll J, Norris D, Davies J, Coull M (2006) Evidence that Soil Carbon Pool Determines Susceptibility of Semi-Natural Ecosystems to Elevated Nitrogen Leaching. *Ecosystems,* **9**, 453-462.

Evans LS (1984) Acidic precipitation effects on terrestrial vegetation. *Annual review of phytopathology,* **22**, 397-420.

Falkengren-Grerup U (1986) Soil acidification and vegetation changes in deciduos forest in southern Sweden. *Oecologia,* **70**, 339-347.

Falkengren-Grerup U (1989) Soil acidification and its impact on ground vegetation. *Ambio,* **18**, 179-183.

Falkengren-Grerup U, 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.

Falkengren-Grerup U, Tyler G (1993) Experimental evidence for the relative sensitivity of deciduous forest plants to high soil acidity. *Forest Ecology and Management,* **60**, 311-326.

Falkengren-Grerup U, Brunet J, Quist ME, Tyler G (1995) Is the Ca:Al ratio superior to pH, Ca or Al concentrations of soils in accounting for the distribution of plants in deciduous forest? *Plant and Soil,* **177**, 21-31.

Falkengren-Grerup U (1998) Nitrogen response of herbs and graminoids in experiments with simulated acid soil solution. *Environmental Pollution,* **102**, 93-99.

Falkengren-Grerup U, Ericson L, Gunnarsson U, Nordin A, Rydin H, Wallén B (2000). Does nitrogen deposition change the flora? In: *Effects of Nitrogen Deposition on Forest Ecosystems.* (eds Bertills U, Näsholm T) pp. 77-104. Swedish Environmental Protection Agency, Report 5067, Trelleborg.

Falkengren-Grerup U, Schöttelndreier M (2004) Vascular plants as indicators of nitrogen enrichment in soils. *Plant Ecology,* **172**, 51-62.

Fehlen N, Picard JF (1994) Influence de la fertilisation sur la végétation spontanée et la croissance radiale de l'épicéa commun (Picea abies (L) Karst) dans une plantation adulte des Ardennes françaises *Annals of Forest Science,* **51**, 569-580.

Fenn ME, Poth MA, Aber JD, Baron JS, Bormann BT, Johnson DW, Lemly AD, McNulty SG, Ryan DF, Stottlemyer R (1998) Nitrogen excess in North American ecosystems: Predisposing factors, ecosystem responses, and management strategies. *Ecological Applications,* **8**, 706-733.

Fortin M-J, Dale M (2005) *Spatial Analysis. A Guide for Ecologists.* Cambridge University Press, New York.

Galloway J (2001) Acidification of the world: Natural and anthropogenic. *Water, Air, & Soil Pollution,* **130**, 17-24.

Galloway JN (1995) Acid deposition: Perspectives in time and space. *Water, Air, & Soil Pollution,* **85**, 15-24.

Galloway JN, Dentener FJ, Capone DG, Boyer EW, Howarth RW, Seitzinger SP, Asner GP, Cleveland CC, Green PA, Holland EA, Karl DM, Michaels AF, Porter JH, Townsend AR, Vöosmarty CJ (2004) Nitrogen Cycles: Past, Present, and Future. *Biogeochemistry,* **70**, 153-226.

Galloway JN, Townsend AR, Erisman JW, Bekunda M, Cai Z, Freney JR, Martinelli LA, Seitzinger SP, Sutton MA (2008) Transformation of the Nitrogen Cycle: Recent Trends, Questions, and Potential Solutions. *Science,* **320**, 889-892.

Galsomies L, Probst A (2006). *Programme international concerté - relatif à la modélisation et la cartographie des charges et niveaux critiques - (PIC-Modélisation et Cartographie).* ADEME.

Gaudnik C, Corcket E, Clément B, Delmas CEL, Gombert-Courvoisier S, Muller S, Stevens CJ, Alard D (2011) Detecting the footprint of changing atmospheric nitrogen deposition loads on acid grasslands in the context of climate change. *Global Change Biology,* **17**, 3351-3365.

Gégout J-C, Hervé J-C, Houllier F, Pierrat J-C (2003) Prediction of forest soil nutrient status using vegetation. *Journal of Vegetation Science,* **14**, 55-62.

Gégout J-C, Coudun C, Bailly G, Jabiol B (2005) EcoPlant: A forest site database linking floristic data with soil and climate variables. *Journal of Vegetation Science,* **16**, 257-260.

Gégout JC, Krizova E (2003) Comparison of indicator values of forest understory plant species in Western Carpathians (Slovakia) and Vosges Mountains (France). *Forest Ecology and Management*.

Gégout JC (2006) Distribution et caractère bioindicateur des espèces végétales forestières françaises vis-à-vis du sol et du climat. Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 109 pp.

Gégout JC (2008). *Validation de bioindicateurs floristiques pour la surveillance de l'état nutritionnel des sols forestiers français à partir des données de l'Inventaire Forestier National.* Convention 2005 – 2008 ADEME / IFN / ENGREF n° 0562C0029 Programme « Biondicateurs de qualité des sols ». AgroParisTech, ENGREF, Nancy, France.

Gilliam FS (2006) Response of the herbaceous layer of forest ecosystems to excess nitrogen deposition. *Journal of Ecology,* **94**, 1176-1191.

Gilliam FS (2007) The ecological significance of the herbaceous layer in temperate forest ecosystems. *BioScience,* **57**, 845-858.

Graf Pannatier E, Thimonier A, Schmitt M, Walthert L, Waldner P (2011) A decade of monitoring at Swiss Long-Term Forest Ecosystem Research (LWF) sites: can we observe trends in atmospheric acid deposition and in soil solution acidity? *Environmental Monitoring and Assessment,* **174**, 3-30.

Gribov A, Krivoruchko K, Ver Hoef JM (2006). Modeling the semivariogram: New approach, methods comparison, and simulation study. In: *Stochastic modeling and geostatistics:*

Principles,methods, and case studies, Volume II. (eds Coburn T, Yarus J, Chambers R) pp. 45-57. The American Association of Petroleum Geologists, Tulsa.

Grinnell J (1917) The Niche-Relationships of the California Thrasher. *The Auk,* **34**, 427-433.

Groffman P, Holland E, Myrold D, Robertson GP, Zou X (1999). Denitrification. In: *Standard Soil Methods for Long-Term Ecological Research.* (eds Robertson GP, Coleman DC, Bledsoe CS, Sollins P) pp. 272-288. Oxford University Press, New York.

Guisan A, Zimmermann NE (2000) Predictive habitat distribution models in ecology. *Ecological Modelling,* **135**, 147-186.

Gundersen P, Callesen I, de Vries W (1998) Nitrate leaching in forest ecosystems is related to forest floor C/N ratios. *Environmental Pollution,* **102**, 403-407.

Hallbäcken L, Zhang L-Q (1998) Effects of experimental acidification, nitrogen addition and liming on ground vegetation in a mature stand of Norway spruce (Picea abies (L.) Karst.) in SE Sweden. *Forest Ecology and Management,* **108**, 201-213.

Härdtle W, von Oheimb G, Friedel A, Meyer H, Westphal C (2004) Relationship between pH-values and nutrient availability in forest soils – the consequences for the use of ecograms in forest ecology. *Flora - Morphology, Distribution, Functional Ecology of Plants,* **199**, 134-142.

Hawkes JC, Pyatt DG, White IMS (1997) Using Ellenberg Indicator Values to Assess Soil Quality in British Forests from Ground Vegetation: A Pilot Study. *Journal of Applied Ecology,* **34**, 375-387.

Hédl R (2004) Vegetation of beech forests in the Rychlebské Mountains, Czech Republic, re-inspected after 60 years with assessment of environmental changes. *Plant Ecology,* **170**, 243-265.

Hédl R, Petřík P, Boublík K (2011) Long-term patterns in soil acidification due to pollution in forests of the Eastern Sudetes Mountains. *Environmental Pollution,* **159**, 2586-2593.

Hettelingh J, Posch M, Slootweg J (2008). *Critical load, dynamic modelling and impact assessment in Europe: CCE Status Report 2008*. Report 500090003, Coordination Centre for Effects, Netherlands Environmental Assessment Agency, www.pbl.nl/cce (www.mnp.nl/cce until 2009).

Högberg P, Bengtsson G, Berggren D, Högberg M, Nilsson I, Nohrstedt H-Ö, Persson T, Sjöberg M (2000). How are the nitrogen dynamics of forest soils affected? In: *Effects of Nitrogen Deposition on Forest Ecosystems.* (eds Bertills U, Näsholm T) pp. 29-52. Swedish Environmental Protection Agency, Report 5067, Trelleborg.

Horswill P, O'Sullivan O, Phoenix GK, Lee JA, Leake JR (2008) Base cation depletion, eutrophication and acidification of species-rich grasslands in response to long-term simulated nitrogen deposition. *Environmental Pollution,* **155**, 336-349.

Hubbell SP (2001) *The unified neutral theory od biodiversity and biogeography*. Princeton University Press, Princeton.

Hülber K, Dirnböck T, Kleinbauer I, Willner W, Dullinger S, Karrer G, Mirtl M (2008) Long-term impacts of nitrogen and sulphur deposition on forest floor vegetation in the Northern limestone Alps, Austria. *Applied Vegetation Science,* **11**, 395-404.

Hutchinson GE (1957) Concluding remarks. *Cold Spring Harbour Symposia on Quantitative Biology,* **22**, 415-427.

Jansen F, Dengler J (2010) Plant names in vegetation databases – a neglected source of bias. *Journal of Vegetation Science,* **21**, 1179-1186.

Johansson O, Palmqvist K, Olofsson J (2012) Nitrogen deposition drives lichen community changes through differential species responses. *Global Change Biology,* **18**, 2626-2635.

Johnston AE, Goulding KWT, Poulton PR (1986) Soil acidification during more than 100 years under permanent grassland and woodland at Rothamsted. *Soil Use and Management,* **2**, 3-10.

Jongman RHG, ter Braak CJF, van Tongeren OFR (1987) *Data analysis in community and landscape ecology*. Pudoc, Wageningen, The Netherlands.

Julve P (1998) Baseflor: Index botanique, écologique et chorologique de la flore de France. Available at: http://philippe.julve.pagesperso-orange.fr/catminat.htm.

Jump AS, Peñuelas J (2005) Running to stand still: adaptation and the response of plants to rapid climate change. *Ecology Letters,* **8**, 1010-1020.

Kapfer J, Virtanen R, Grytnes J-A (2012) Changes in arctic vegetation on Jan Mayen Island over 19 and 80 years. *Journal of Vegetation Science,* **23**, 771-781.

Kearney M (2006) Habitat, environment and niche: what are we modelling? *Oikos,* **115**, 186-191.

Keith SA, Newton AC, Morecroft MD, Bealey CE, Bullock JM (2009) Taxonomic homogenization of woodland plant communities over 70 years. *Proceedings of the Royal Society B: Biological Sciences,* **276**, 3539-3544.

Kirk GJD, Bellamy PH, Lark RM (2010) Changes in soil pH across England and Wales in response to decreased acid deposition. *Global Change Biology,* **16**, 3111-3119.

Kjeldahl J (1883) A new method for the determination of nitrogen in organic matter. *Zeitschreft fur Analytische Chemie*, 22-366.

Kristensen HL, Gundersen P, Callesen I, Reinds GJ (2004) Throughfall Nitrogen Deposition Has Different Impacts on Soil Solution Nitrate Concentration in European Coniferous and Deciduous Forests. *Ecosystems,* **7**, 180-192.

Krupa SV (2003) Effects of atmospheric ammonia (NH3) on terrestrial vegetation: a review. *Environmental Pollution,* **124**, 179-221.

Landmann G (1995). Forest Decline and Air Pollution Effects in the French Mountains: A Synthesis. In: *Forest Decline and Atmospheric Deposition Effects in the French Mountains.* (eds Landmann G, Bonneau M) pp. 407-452. Springer-Verlag, Berlin.

Landmann G, Bonneau M (1995) *Forest Decline and Atmospheric Deposition Effects in the French Mountains.* Springer-Verlag, Berlin.

Landolt E (1977) Ökologische Zeigerwerte zur Schweizer Flora. *Veröffentl. Geobot. Inst. Eidg. Tech. Hochsch. Stift. Rübel Zür.,* **64**, 1-208.

Lawesson JE, Mark S (2000) pH and Ellenberg reaction values for Danish forest plants. *Proceedings IAVS Symposium*, 151-153.

Le Gall AC (2004). *Effets des dépôts atmosphériques de soufre et d'azote sur les sols et les eaux douces en France.* DRC – 04-45928-ALe-049-v4.doc, INERIS.

Legendre P, Legendre L (1998) *Numerical Ecology. Second english edition.* Second english edition. Elsevier Science B.V., Amsterdam, The Netherlands.

Lenoir J (2009) Impacts d'un réchauffement rapide du climat sur la distribution des espèces végétales forestières le long du gradient d'altitude. PhD, AgroParisTech, Nancy, France, 281 pp.

Lenoir J, Gégout JC, Dupouey JL, Bert D, Svenning JC (2010) Forest plant community changes during 1989-2007 in response to climate warming in the Jura Mountains (France and Switzerland). *Journal of Vegetation Science,* **21**, 949-964.

MacDonald JA, Dise NB, Matzner E, Armbruster M, Gundersen P, Forsius M (2002) Nitrogen input together with ecosystem nitrogen enrichment predict nitrate leaching from European forests. *Global Change Biology,* **8**, 1028-1033.

Marage D, Garraud L, Rameau J-C (2008) The influence of management history on spatial prediction of Eryngium spinalba, an endangered endemic species. *Applied Vegetation Science,* **11**, 139-148.

Maskell LC, Smart SM, Bullock JM, Thompson KEN, Stevens CJ (2010) Nitrogen deposition causes widespread loss of species richness in British habitats. *Global Change Biology,* **16**, 671-679.

Matson P, Lohse KA, Hall SJ (2002) The Globalization of Nitrogen Deposition: Consequences for Terrestrial Ecosystems. *AMBIO: A Journal of the Human Environment,* **31**, 113-119.

McClean CJ, van den Berg LJL, Ashmore MR, Preston CD (2011) Atmospheric nitrogen deposition explains patterns of plant species loss. *Global Change Biology,* **17**, 2882-2892.

McGovern S, Evans CD, Dennis P, Walmsley C, McDonald MA (2011) Identifying drivers of species compositional change in a semi-natural upland grassland over a 40-year period. *Journal of Vegetation Science,* **22**, 346-356.

McGovern ST, Evans CD, Dennis P, Walmsley CA, Turner A, McDonald MA (2013) Resilience of upland soils to long term environmental changes. *Geoderma,* **197–198**, 36-42.

McNulty SG, Aber JD, Boone RD (1991) Spatial changes in forest floor and foliar chemistry of spruce-fir forests across New England. *Biogeochemistry,* **14**, 13-29.

McNulty SG, Aber JD, Newman SD (1996) Nitrogen saturation in a high elevation New England spruce-fir stand. *Forest Ecology and Management,* **84**, 109-121.

Meier ES, Lischke H, Schmatz DR, Zimmermann NE (2012) Climate, competition and connectivity affect future migration and ranges of European trees. *Global Ecology and Biogeography,* **21**, 164-178.

Mészáros E (1981) *Atmospheric Chemistry: Fundamental Aspects.* Elsevier, New York.

Mevik B-H, Wehrens R (2007) The pls package: Principal component and partial least squares regression in R. *Journal of Statistical Software,* **18**, 1-24.

Moncoulon D, Probst A, Martinson L (2007) Modeling Acidification Recovery on Threatened Ecosystems: Application to the Evaluation of the Gothenburg Protocol in France. *Water, Air, & Soil Pollution: Focus,* **7**, 307-316.

Naaf T, Wulf M (2011) Traits of winner and loser species indicate drivers of herb layer changes over two decades in forests of NW Germany. *Journal of Vegetation Science,* **22**, 516-527.

Nagel H-D, Scheuschner T, Schlutow A, Granke O, Clarke N, Fischer R (2011). 5. Exceedance of critical loads for acidity and nitrogen and scenarios for the future development of soil solution chemistry. In: *Forest Condition in Europe, 2011 Technical Report of ICP Forests and FutMon.* (eds Fischer R, Lorenz M) pp. 97-112. ICP Forests, Hamburg.

Näsholm T, Persson T (2000). How are soils and plants affected by nitrogen deposition? – A synthesis. In: *Effects of Nitrogen Deposition on Forest Ecosystems.* (eds Bertills U, Näsholm T) pp. 127-136. Swedish Environmental Protection Agency, Report 5067, Trelleborg.

Nave LE, Vance ED, Swanston CW, Curtis PS (2009) Impacts of elevated N inputs on north temperate forest soil C storage, C/N, and net N-mineralization. *Geoderma,* **153**, 231-240.

Niemi GJ, McDonald ME (2004) Application of ecological indicators. *Annual Review of Ecology, Evolution and Systematics,* **35**, 89-111.

Nilsson J, Grennfelt P (1988). *Critical loads for sulphur and nitrogen.* Miljørapport No. 15, UN-ECE/Nordic Council workshop report, Skokloster, Sweden, Nordic Council of Ministers, Copenhagen.

Nordin A, Strengbom J, Witzell J, Näsholm T, Ericson L (2005) Nitrogen Deposition and the Biodiversity of Boreal Forests: Implications for the Nitrogen Critical Load. *AMBIO: A Journal of the Human Environment,* **34**, 20-24.

Nordin A, Strengbom J, Ericson L (2006) Responses to ammonium and nitrate additions by boreal plants and their natural enemies. *Environmental Pollution,* **141**, 167-174.

Normand S, Ricklefs RE, Skov F, Bladt J, Tackenberg O, Svenning J-C (2011) Postglacial migration supplements climate in determining plant species ranges in Europe. *Proceedings of the Royal Society B: Biological Sciences,* **278**, 3644-3653.

O'Sullivan OS, Horswill P, Phoenix GK, Lee JA, Leake JR (2011) Recovery of soil nitrogen pools in species-rich grasslands after 12 years of simulated pollutant nitrogen deposition: a 6-year experimental analysis. *Global Change Biology,* **17**, 2615-2628.

Odén S (1976) The acidity problem — An outline of concepts. *Water, Air, & Soil Pollution,* **6**, 137-166.

Oksanen J, Blanchet FG, Kindt R, Legendre P, Michin PR, O'Hara B, Simpson GL, Solymos P, Henry M, Stevens H, Wagner H (2012) Vegan: Community Ecology Package. In: http://vegan.r-forge.r-project.org/: http://cran.r-project.org/.

Oppenheimer M, Galloway JN, Likens GE, Norton SA (1985) Acid Deposition. *Science,* **227**, 1154-1156.

Oulehle F, Hleb R, Houška J, Šamonil P, Hofmeister J, Hruška J (2010) Anthropogenic acidification effects in primeval forests in the Transcarpathian Mts., western Ukraine. *Science of The Total Environment,* **408**, 856-864.

Party J-P, Probst A, Thomas A-L, Dambrine E (2001) Charges critiques d'acidité en polluants atmosphériques en France : conséquences vis-à-vis des sols et des peuplements forestiers. *Pollution Atmosphérique,* **172**, 519-527.

Payne RJ, Thompson AM, Standen V, Field CD, Caporn SJM (2012) Impact of simulated nitrogen pollution on heathland microfauna, mesofauna and plants. *European Journal of Soil Biology,* **49**, 73-79.

Payne RJ, Caporn SJM, Stevens CJ, Carroll JA, Edmondson JL, Gowing DJ, Dise NB (2013) Inferring nitrogen deposition from plant community composition. *Ecological Indicators,* **26**, 1-4.

Pearson RG, Dawson TP (2003) Predicting the impacts of climate change on the distribution of species: are bioclimate envelope models useful? *Global Ecology and Biogeography,* **12**, 361-371.

Penel M (1979) Caractérisation physico-chimique et classification des humus forestiers acides en relation avec la végétation et ses exigences écologiques. PhD, Université Nancy l, Nancy, France, 112 pp.

Peñuelas J, Sardans J, Rivas-ubach A, Janssens IA (2012) The human-induced imbalance between C, N and P in Earth's life system. *Global Change Biology,* **18**, 3-6.

Persson T (2000). The nitrogen problem in historical perspective. In: *Effects of Nitrogen Deposition on Forest Ecosystems.* (eds Bertills U, Näsholm T) pp. 9-12. Swedish Environmental Protection Agency, Report 5067, Trelleborg.

Peterson AT, Soberón J, Sánchez-Cordero V (1999) Conservatism of Ecological Niches in Evolutionary Time. *Science,* **285**, 1265-1267.

Peterson AT, Ortega-Huerta MA, Bartley J, Sanchez-Cordero V, Soberon J, Buddemeier RH, Stockwell DRB (2002) Future projections for Mexican faunas under global climate change scenarios. *Nature,* **416**, 626-629.

Phoenix GK, Emmett BA, Britton AJ, Caporn SJM, Dise NB, Helliwell R, Jones L, Leake JR, Leith ID, Sheppard LJ, Sowerby A, Pilkington MG, Rowe EC, Ashmore MR, Power SA (2012) Impacts of atmospheric nitrogen deposition: responses of multiple plant and soil parameters across contrasting ecosystems in long-term field experiments. *Global Change Biology,* **18**, 1197-1215.

Pihl Karlsson G, Akselsson C, Hellsten S, Karlsson PE (2011) Reduced European emissions of S and N – Effects on air concentrations, deposition and soil water chemistry in Swedish forests. *Environmental Pollution,* **159**, 3571-3582.

Pinto PE, Gégout J-C, Hervé J-C, Dhôte J-F (2007) Changes in environmental controls on the growth of *Abies alba* Mill. in the Vosges Mountains, north-eastern France, during the 20th century. *Global Ecology and Biogeography,* **16**, 472-484.

Pitcairn CER, Leith ID, Sheppard LJ, Sutton MA, Fowler D, Munro RC, Tang S, Wilson D (1998) The relationship between nitrogen deposition, species composition and foliar nitrogen concentrations in woodland flora in the vicinity of livestock farms. *Environmental Pollution,* **102**, 41-48.

Pla S, Catalan J (2005) Chrysophyte cysts from lake sediments reveal the submillennial winter/spring climate variability in the northwestern Mediterranean region throughout the Holocene. *Climate Dynamics,* **24**, 263-278.

Power SA, Ashmore MR, Cousins DA (1998) Impacts and fate of experimentally enhanced nitrogen deposition on a British lowland heath. *Environmental Pollution,* **102**, 27-34.

Power SA, Green ER, Barker CG, Bell JNB, Ashmore MR (2006) Ecosystem recovery: heathland response to a reduction in nitrogen deposition. *Global Change Biology,* **12**, 1241-1252.

Probst A, Viville D, Fritz B, Ambroise B, Dambrine E (1992) Hydrochemical budgets of a small forested granitic catchment exposed to acid deposition: The strengbach catchment case study (Vosges massif, France). *Water, Air, & Soil Pollution,* **62**, 337-347.

Probst A, Party JP, Fevrier C, Dambrine E, Thomas AL, Stussi JM (1999) Evidence of springwater acidification in the Vosges Mountains (North-East of France): Influence of bedrock buffering capacity. *Water Air and Soil Pollution,* **114**, 395-411.

Probst A, Leguédois S (2008). France. In: *Critical load, dynamic modelling and impact assessment in Europe : CCE Status Report 2008*. (eds Posch M, Slootweg J, Hettelingh J) pp. 133-140. Coordination Centre for Effects, Netherlands Environmental Assessment Agency, www.pbl.nl/cce (www.mnp.nl/cce until 2009).

Pulliam HR (1988) Sources, Sinks, and Population Regulation. *The American Naturalist,* **132**, 652-661.

Pulliam HR (2000) On the relationship between niche and distribution. *Ecology Letters,* **3**, 349-361.

R Development Core Team (2011) R: A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing.

Rabu D, Chantraine J (2004) Carte géologique de la France à 1/1 000 000. Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM).

Rameau JC, Mansion D, Dumé G (1989) *Flore forestière française. Guide écologique illustré, Volume 1 : Plaines et collines.* Institut pour le Développement Forestier, Paris, France.

Rameau JC, Mansion D, Dumé G (1993) *Flore forestière française. Guide écologique illustré, Volume 2 : Montagnes.* Institut pour le Développement Forestier, Paris, France.

Rameau JC, Mansion D, Dumé G, Gauberville C, Bardat J, Bruno E, Keller R (2008) *Flore forestière française: Guide écologique illustré, Volume 3: région méditerranéenne.* Paris, France.

Raxworthy CJ, Martinez-Meyer E, Horning N, Nussbaum RA, Schneider GE, Ortega-Huerta MA, Townsend Peterson A (2003) Predicting distributions of known and unknown reptile species in Madagascar. *Nature,* **426**, 837-841.

Reuss JO, Johnson DW (1986) *Acid Deposition and the Acidification of Soils and Waters.* Springer-Verlag, New York Berlin Heidelberg Tokyo.

Riofrío-Dillon G (2010). *Predictive mapping of pH at fine resolution at regional scale.* AgroParisTech, ENGREF, Nancy, France.

Riofrío-Dillon G, Bertrand R, Gégout J-C (2012) Toward a recovery time: forest herbs insight related to anthropogenic acidification. *Global Change Biology,* **18**, 3383-3394.

Riofrío-Dillon G, Bertrand R, Dupouey J-L, Gégout J-C (2013) Forest eutrophication does not slow down: evidence from the Northeastern France. *Journal of Vegetation Science, submitted.*

Robert N, Vidal C, Colin A, Hervé JC, Hamza N, Cluzeau C (2010). France. In: *National Forest Inventories—Pathways for Common Reporting.* (eds Tomppo E, Gschwantner T, Lawrence M, Mcroberts RE) pp. 207–221. Springer, Heidelberg, Dordrecht, London, New York.

Robertson GP, Wedin D, Groffman P, Blair J, Nadelhoffer KJ, Holland E, Harris D (1999). Soil carbon and nitrogen availability. Nitrogen mineralization, nitrification and soil respiration potentials. In: *Standard Soil Methods for Long-Term Ecological Research.* (eds Robertson GP, Coleman DC, Bledsoe CS, Sollins P) pp. 258-271. Oxford University Press, New York.

Rowe E, Evans C, Emmett B, Reynolds B, Helliwell R, Coull M, Curtis C (2006) Vegetation Type Affects the Relationship Between Soil Carbon to Nitrogen Ratio and Nitrogen Leaching. *Water, Air, & Soil Pollution,* **177**, 335-347.

Sala OE, Chapin FS, Armesto JJ, Berlow E, Bloomfield J, Dirzo R, Huber-Sanwald E, Huenneke LF, Jackson RB, Kinzig A, Leemans R, Lodge DM, Mooney HA, Oesterheld Mn, Poff NL, Sykes MT, Walker BH, Walker M, Wall DH (2000) Global Biodiversity Scenarios for the Year 2100. *Science,* **287**, 1770-1774.

Šamonil P, Vrška T (2008) Long-Term Vegetation Dynamics in the Šumava Mts. Natural Spruce-Fir-Beech Forests. *Plant Ecology,* **196**, 197-214.

Schöpp W, Posch M, Mylona S, Johansson M (2003) Long-term development of acid deposition (1880-2030) in sensitive freshwater regions in Europe. *Hydrology and Earth Systems Science,* **7**, 436-446.

Sebesta J, Samonil P, Lacina J, Oulehle F, Houska J, Bucek A (2011) Acidification of primeval forests in the Ukraine Carpathians: Vegetation and soil changes over six decades. *Forest Ecology and Management,* **262**, 1265-1279.

Siefert A, Ravenscroft C, Althoff D, Alvarez-Yépiz JC, Carter BE, Glennon KL, Heberling JM, Jo IS, Pontes A, Sauer A, Willis A, Fridley JD (2012) Scale dependence of vegetation–environment relationships: a meta-analysis of multivariate data. *Journal of Vegetation Science,* **23**, 942-951.

Simpson D, Fagerli H, Jonson JE, Tsyro S, Wind P, Tuovinen J-P (2003). *The Unified EMEP Eulerian Model. Model Description.* EMEP MSC-W Report 1/2003, Norwegian Meteorological Institute, Oslo.

Skjelkvåle BL, Stoddard JL, Jeffries DS, Tørseth K, Høgåsen T, Bowman J, Mannio J, Monteith DT, Mosello R, Rogora M, Rzychon D, Vesely J, Wieting J, Wilander A, Worsztynowicz A (2005) Regional scale evidence for improvements in surface water chemistry 1990–2001. *Environmental Pollution,* **137**, 165-176.

Smart S, Robertson JC, Shield EJ, Van de Poll HM (2003) Locating eutrophication effects across British vegetation between 1990 and 1998. *Global Change Biology,* **9**, 1763-1774.

Smith VH, Tilman GD, Nekola JC (1999) Eutrophication: impacts of excess nutrient inputs on freshwater, marine, and terrestrial ecosystems. *Environmental Pollution,* **100**, 179-196.

Soberón J, Nakamura M (2009) Niches and distributional areas: Concepts, methods, and assumptions. *Proceedings of the National Academy of Sciences,* **106**, 19644-19650.

Solberg S, Dobbertin M, Reinds GJ, Lange H, Andreassen K, Fernandez PG, Hildingsson A, de Vries W (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,* **258**, 1735-1750.

Spiegelberger T, Hegg O, Matthies D, Hedlund K, Schaffner U (2006) Long-term effects of short-term perturbation in a subalpine grassland. *Ecology,* **87**, 1939-1944.

Stanton ML, Roy BA, Thiede DA (2000) Evolution in Stressful Environments. I. Phenotypic Variability, Phenotypic Selection, and Response to Selection in Five Distinct Environmental Stresses. *Evolution,* **54**, 93-111.

Stevens C, Duprè C, Gaudnik C, Dorland E, Dise N, Gowing D, Bleeker A, Alard D, Bobbink R, Fowler D, Vandvik V, Corcket E, Mountford JO, Aarrestad PA, Muller S, Diekmann M (2011a) Changes in species composition of European acid grasslands observed along a gradient of nitrogen deposition. *Journal of Vegetation Science,* **22**, 207-215.

Stevens CJ, Dise NB, Mountford JO, Gowing DJ (2004) Impact of nitrogen deposition on the species richness of grasslands. *Science,* **303**, 1876-1879.

Stevens CJ, Dise NB, Gowing DJG, Mountford JO (2006) Loss of forb diversity in relation to nitrogen deposition in the UK: regional trends and potential controls. *Global Change Biology,* **12**, 1823-1833.

Stevens CJ, Thompson K, Grime JP, Long CJ, Gowing DJG (2010) Contribution of acidification and eutrophication to declines in species richness of calcifuge grasslands along a gradient of atmospheric nitrogen deposition. *Functional Ecology,* **24**, 478-484.

Stevens CJ, Duprè C, Dorland E, Gaudnik C, Gowing DJG, Bleeker A, Diekmann M, Alard D, Bobbink R, Fowler D, Corcket E, Mountford JO, Vandvik V, Aarrestad PA, Muller S, Dise NB (2011b) The impact of nitrogen deposition on acid grasslands in the Atlantic region of Europe. *Environmental Pollution,* **159**, 2243-2250.

Strengbom J, Walheim M, Näsholm T, Ericson L (2003) Regional Differences in the Occurrence of Understorey Species Reflect Nitrogen Deposition in Swedish Forests. *Ambio,* **32**, 91-97.

Sverdrup H, Warfvinge P (1993). *The effect of soil acidification on the growth of trees, grass and herbs as expressed by the (Ca+Mg+K)/Al ratio. Report in ecology and environmental engineering.* Report No. 2, University of Lund, Lund, Sweden.

Tamm CO (1976) Acid Precipitation: Biological Effects in Soil and on Forest Vegetation. *Ambio,* **5**, 235-238.

Tamm CO (1991) *Nitrogen in terrestrial ecosystems: Questions of productivity, vegetational changes and ecological stability.* Springer-Verlag, Berlin, New York.

Taylor GE, Jr. (1978) Genetic Analysis of Ecotypic Differentiation Within an Annual Plant Species, Geranium carolinianum L., in Response to Sulfur Dioxide. *Botanical Gazette,* **139**, 362-368.

ter Braak CJF (1985) Correspondence Analysis of Incidence and Abundance Data: Properties in Terms of a Unimodal Response Model. *Biometrics,* **41**, 859-873.

ter Braak CJF, Barendregt LG (1986) Weighted averaging of species indicator values: Its efficiency in environmental calibration. *Mathematical Biosciences,* **78**, 57-72.

ter Braak CJF, van Dam H (1989) Inferring pH from diatoms: a comparison of old and new calibration methods. *Hydrobiologia,* **178**, 209-223.

ter Braak CJF, Juggins S, Birks HJB, van der Voet H (1993). Weighted averaging partial least squares regression (WA-PLS) : definition and comparison with other methods for species-environment calibration. In: *Multivariate Environmental Statistics.* (eds Patil G, Rao C) pp. 525-560. Elsevier Science Publishers B.V., North-Holland, Amsterdam.

ter Braak CJF (1995) Non-linear methods for multivariate statistical calibration and their use in palaeoecology: a comparison of inverse (k-nearest neighbours, partial least squares and weighted averaging partial least squares) and classical approaches. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems,* **28**, 165-180.

Thimonier A, Dupouey JL, Timbal J (1992) Floristic changes in the herb-layer vegetation of a deciduous forest in the Lorraine Plain under the influence of atmospheric deposition. *Forest Ecology and Management,* **55**, 149-167.

Thimonier A (1994) Changements de la végétation et des sols en forêt tempérée européenne au cours de la période 1970-1990 : rôle possible des apports atmosphériques. PhD thesis, Université Paris XI Orsay, Nancy, 177 pp.

Thimonier A, Dupouey J-L, Bost F, Becker M (1994) Simultaneous eutrophication and acidification of a forest ecosystem in North-East France. *New Phytologist,* **126**, 533-539.

Thimonier A, Dupouey J-L, Tacon FL (2000) Recent Losses of Base Cations from Soils of Fagus sylvatica L. Stands in Northeastern France. *Ambio,* **29**, 314-321.

Thimonier A, Graf Pannatier E, Schmitt M, Waldner P, Walthert L, Schleppi P, Dobbertin M, Kräuchi N (2010) Does exceeding the critical loads for nitrogen alter nitrate leaching, the nutrient status of trees and their crown condition at Swiss Long-term Forest Ecosystem Research (LWF) sites? *European Journal of Forest Research,* **129**, 443-461.

Thimonier A, Kull P, Keller W, Moser B, Wohlgemuth T (2011) Ground vegetation monitoring in Swiss forests: comparison of survey methods and implications for trend assessments. *Environmental Monitoring and Assessment,* **174**, 47-63.

Thimonier A, Graf Pannatier E, Schmitt M, Waldner P, Schleppi P, Braun S (2012) Dépôts atmosphériques azotés et leurs effets en forêt: un bilan des sites d'observation à long terme. *Schweiz Z Forstwes,* **163**, 343-354.

Thuiller W (2003) BIOMOD – optimizing predictions of species distributions and projecting potential future shifts under global change. *Global Change Biology,* **9**, 1353-1362.

Turkington R, John E, Krebs CJ, Dale MRT, Nams VO, Boonstra R, Boutin S, Martin K, Sinclair ARE, Smith JNM (1998) The Effects of NPK Fertilization for Nine Years on

Boreal Forest Vegetation in Northwestern Canada. *Journal of Vegetation Science,* **9**, 333-346.

UBA (2004). *Manual on methodologies and criteria for Modelling and Mapping Critical Loads and Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends.* UN-ECE Convention on Long Range Transboundary Air Pollution, Federal Environmental Agency (Umweltbundesamt), Berlin.

Ulrich B (1983a). Interaction of forest canopies with atmospheric constituents: SO_2, alkali and earth alkali cations and chloride. In: *Effects of accumulation of air pollutants in forest ecosystems.* (eds Ulrich B, Pankrath J) pp. 33-45. D. Reidel Publishing Company, Dordrecht.

Ulrich B (1983b). Soil acidity and its relations to acid deposition. In: *Effects of accumulation of air pollutants in forest ecosystems.* (eds Ulrich B, Pankrath J) pp. 127-146. D. Reidel Publishing Company, Dordrecht.

Ulrich B, Matzner E (1986) Anthropogenic and natural acidification in terrestrial ecosystems. *Cellular and Molecular Life Sciences,* **42**, 344-350.

Ulrich E, Williot B, Landmann G (1993) *Les dépôts atmosphériques en France de 1850 à 1990.* Imprimerie de l'Office National des Forêts, France.

van Breemen N, Burrough PA, Velthorst EJ, van Dobben HF, de Wit T, Ridder TB, Reijnders HFR (1982) Soil acidification from atmospheric ammonium sulphate in forest canopy throughfall. *Nature,* **299**, 548-550.

Van Calster H, Baeten L, De Schrijver A, De Keersmaeker L, Rogister JE, Verheyen K, Hermy M (2007) Management driven changes (1967–2005) in soil acidity and the understorey plant community following conversion of a coppice-with-standards forest. *Forest Ecology and Management,* **241**, 258-271.

Van Calster H, Vandenberghe R, Ruysen M, Verheyen K, Hermy M, Decocq G (2008) Unexpectedly high 20th century floristic losses in a rural landscape in northern France. *Journal of Ecology,* **96**, 927-936.

Van Den Berg LJL, Dorland E, Vergeer P, Hart MAC, Bobbink R, Roelofs JGM (2005) Decline of acid-sensitive plant species in heathland can be attributed to ammonium toxicity in combination with low pH. *New Phytologist,* **166**, 551-564.

Van Den Berg LJL, Vergeer P, Rich TCG, Smart SM, Guest DAN, Ashmore MR (2011) Direct and indirect effects of nitrogen deposition on species composition change in calcareous grasslands. *Global Change Biology,* **17**, 1871-1883.

van der Heijden G, Legout A, Nicolas M, Ulrich E, Johnson DW, Dambrine E (2011) Long-term sustainability of forest ecosystems on sandstone in the Vosges Mountains (France) facing atmospheric deposition and silvicultural change. *Forest Ecology and Management,* **261**, 730-740.

van Dobben H, de Vries W (2010) Relation between forest vegetation, atmospheric deposition and site conditions at regional and European scales. *Environmental Pollution,* **158**, 921-933.

van Dobben HF, van Hinsberg A, Schouwenberg EPAG, Jansen M, Mol-Dijkstra JP, Wieggers HJJ, Kros J, de Vries W (2006) Simulation of Critical Loads for Nitrogen for Terrestrial Plant Communities in The Netherlands. *Ecosystems,* **9**, 32-45.

Van Landuyt W, Vanhecke L, Hoste I, Hendrickx F, Bauwens D (2008) Changes in the distribution area of vascular plants in Flanders (northern Belgium): eutrophication as a major driving force. *Biodiversity and Conservation,* **17**, 3045-3060.

Vanguelova EI, Benham S, Pitman R, Moffat AJ, Broadmeadow M, Nisbet T, Durrant D, Barsoum N, Wilkinson M, Bochereau F, Hutchings T, Broadmeadow S, Crow P, Taylor P, Durrant Houston T (2010) Chemical fluxes in time through forest ecosystems in the UK – Soil response to pollution recovery. *Environmental Pollution,* **158**, 1857-1869.

Verheyen K, Baeten L, De Frenne P, Bernhardt-Römermann M, Brunet J, Cornelis J, Decocq G, Dierschke H, Eriksson O, Hédl R, Heinken T, Hermy M, Hommel P, Kirby K, Naaf T, Peterken G, Petřík P, Pfadenhauer J, Van Calster H, Walther G-R, Wulf M, Verstraeten G (2012) Driving factors behind the eutrophication signal in understorey plant communities of deciduous temperate forests. *Journal of Ecology,* **100**, 352-365.

Vitousek PM (1994) Beyond Global Warming: Ecology and Global Change. *Ecology,* **75**, 1861-1876.

Vitousek PM, Aber JD, Howarth RW, Likens GE, Matson PA, Schindler DW, Schlesinger WH, Tilman DG (1997a) Human Alteration of The Global Nitrogen Cycle: Sources and Consequences. *Ecological Applications,* **7**, 737-750.

Vitousek PM, Mooney HA, Lubchenco J, Melillo JM (1997b) Human Domination of Earth's Ecosystems. *Science,* **277**, 494-499.

Wamelink W, Goedhart P, Van Dobben H, Berendse F (2005) Plant species as predictors of soil pH: Replacing expert judgement with measurements. *Journal of Vegetation Science,* **16**, 461-470.

Warfvinge P, Falkengren-Grerup U, Sverdrup H, Andersen B (1993) Modelling long-term cation supply in acidified forest stands. *Environmental Pollution,* **80**, 209-221.

Willis KJ, Whittaker RJ (2002) Species Diversity--Scale Matters. *Science,* **295**, 1245-1248.

Wisz MS, Pottier J, Kissling WD, Pellissier L, Lenoir J, Damgaard CF, Dormann CF, Forchhammer MC, Grytnes J-A, Guisan A, Heikkinen RK, Høye TT, Kühn I, Luoto M, Maiorano L, Nilsson M-C, Normand S, Öckinger E, Schmidt NM, Termansen M, Timmermann A, Wardle DA, Aastrup P, Svenning J-C (2013) The role of biotic interactions in shaping distributions and realised assemblages of species: implications for species distribution modelling. *Biological Reviews,* **88**, 15-30.

Woodland WA, Charman DJ, Sims PC (1998) Quantitative estimates of water tables and soil moisture in Holocene peatlands from testate amoebae. *The Holocene,* **8**, 261-273.

Yang Y, Ji C, Ma W, Wang S, Wang S, Han W, Mohammat A, Robinson D, Smith P (2012) Significant soil acidification across northern China's grasslands during 1980s–2000s. *Global Change Biology,* **18**, 2292-2300.

Zech W, Senesi N, Guggenberger G, Kaiser K, Lehmann J, Miano TM, Miltner A, Schroth G (1997) Factors controlling humification and mineralization of soil organic matter in the tropics. *Geoderma,* **79**, 117-161.

Zechmeister HG, Dirnböck T, Hülber K, Mirtl M (2007) Assessing airborne pollution effects on bryophytes – lessons learned through long-term integrated monitoring in Austria. *Environmental Pollution,* **147**, 696-705.

9 ANNEXES

ANNEXES

9.1 Annexe 1

[ARTICLE 4]

Changes in plant community composition lag behind climate warming in lowland forests

Romain Bertrand[1,2], Jonathan Lenoir[3], Christian Piedallu[1,2], **Gabriela Riofrío-Dillon**[1, 2], Patrice de Ruffray[4], Claude Vidal[5], Jean-Claude Pierrat[1,2] & Jean-Claude Gégout[1,2]

Nature 479 (2011), pp. 517-520, DOI: 10.1038/nature10548

9.1.1 Abstract

Climate change is driving latitudinal and altitudinal shifts in species distribution worldwide (Parmesan & Yohe, 2003 ; Rosenzweig *et al.*, 2007), leading to novel species assemblages (Wing *et al.*, 2005 ; Williams & Jackson, 2007). Lags between these biotic responses and contemporary climate changes have been reported for plants and animals (Davis, 1986). Theoretically, the magnitude of these lags should be greatest in lowland areas, where the velocity of climate change is expected to be much greater than that in highland areas (Loarie *et al.*, 2009). We compared temperature trends to temperatures reconstructed from plant assemblages (observed in 76634 surveys) over a 44-year period in France (1965–2008). Here we report that forest plant communities had responded to 0.54°Cof the effective increase of 1.07°C in highland areas (500–2600 m above sea level), while they had responded to only 0.02°C of the 1.11°C warming trend in lowland areas. There was a larger temperature lag (by 3.1 times) between the climate and plant community composition in lowland forests than in highland forests. The explanation of such disparity lies in the following properties of

[1] AgroParisTech, ENGREF, UMR1092 Laboratoire d'Etude des Ressources Forêt-Bois (LERFoB), 14 rue Girardet, F-54000 Nancy, France.

[2] INRA, Centre de Nancy, UMR1092 Laboratoire d'E´tude des Ressources Foreˆt-Bois (LERFoB), F-54280 Champenoux, France.

[3] Ecoinformatics & Biodiversity Group, Department of Bioscience, Aarhus University, Ny Munkegade 114, DK-8000 Aarhus C, Denmark.

[4] CNRS, Institut de Biologie Moléculaire des Plantes (IBMP), Université de Strasbourg (UDS), 12 rue du Général Zimmer, F-67084 Strasbourg Cedex, France.

[5] Inventaire Forestier National, Château des Barres, F-45290 Nogent-sur-Vernisson, France.

lowland, as compared to highland, forests: the higher proportion of species with greater ability for local persistence as the climate warms (Thuiller *et al.*, 2005), the reduced opportunity for short-distance escapes (Jump *et al.*, 2009 ; Scherrer & Korner, 2011), and the greater habitat fragmentation. Although mountains are currently considered to be among the ecosystems most threatened by climate change (owing to mountaintop extinction), the current inertia of plant communities in lowland forests should also be noted, as it could lead to lowland biotic attrition (Colwell *et al.*, 2008).

9.1.2 Introduction

Despite the general pattern of poleward and upward range shifts (Parmesan & Yohe, 2003 ; Rosenzweig *et al.*, 2007), the timing, magnitude and direction of these biotic responses vary greatly among species and geographic conditions (Doak & Morris, 2010 ; Lenoir *et al.*, 2010b ; Crimmins *et al.*, 2011). This variation can prevent biotic communities from migrating as intact units in response to climate change (Williams & Jackson, 2007). Since the last interglacial, biotic communities have been reshuffled, leading to the formation of novel species assemblages linked to new climatic conditions (Wing *et al.*, 2005 ; Williams & Jackson, 2007). Recent changes supporting this pattern have occurred within plant and animal communities in response to contemporary climate warming (Cannone *et al.*, 2007 ; le Roux & McGeoch, 2008 ; Moritz *et al.*, 2008 ; Hillebrand *et al.*, 2010 ; Lenoir *et al.*, 2010a). Even though these biotic signals are coherent with climate change (Rosenzweig *et al.*, 2007), many studies suggest a lag between the magnitude of climate warming and the reshuffling observed in biotic communities (Davis, 1986; Lenoir *et al.*, 2008; Moritz *et al.*, 2008 ; Doak & Morris, 2010 ; Lenoir *et al.*, 2010a). However, comparisons between the extent of the observed biotic signals and that expected based on the intensity of climate warming are still scarce, especially for lowland areas, which offer no short-distance escapes for species facing climate change (Jump *et al.*, 2009 ; Scherrer & Korner, 2011). If biotic communities respond synchronously without lagging behind climate warming, current species compositions would reflect contemporary climatic conditions within both lowland and highland areas. However, the greater velocity of climate change in lowland areas compared to highland areas (Loarie *et al.*, 2009) suggests that reshuffling in biotic communities is more likely to lag behind climate warming in lowland areas compared to highland areas. However, this theory remains unverified.

Climate change in France has been characterized by increases in mean annual temperatures of far greater magnitude than the worldwide average, reaching up to about +1.05°C on average

during 1987–2008, compared to about +0.35°C for the worldwide average (Brohan *et al.*, 2006). Assuming that species assemblages can be used to infer climatic conditions at a given location and time (an approach commonly used by paleoclimatologists (Heikkilä & Seppä, 2003), who refer to the relationship as a transfer function), we report a study monitoring plant communities across French forests over 44 years, 1965–2008 (totalling 76 634 surveys). Here we compare temperature trends reconstructed from observed reshuffling of plant assemblages ('floristically reconstructed' temperatures based on 760 species) with temperature trends reconstructed from instrumental records and climate models ('climatically reconstructed' temperatures based on 237 stations) in lowland (<500 m.a.s.l.) and highland forests (500–2600 m.a.s.l.) (see part 'Supplementary Methods'). Changes in floristically reconstructed temperatures involve reshuffling of plant community composition towards more heat- or cold-demanding species assemblages. Following the current climate warming, small differences between floristically and climatically reconstructed temperatures may indicate important reshuffling of plant community composition, close to the magnitude of climate change (that is, high recovery of the climate–flora equilibrium; **Fig. 1**). In contrast, large differences between floristically and climatically reconstructed temperatures may indicate that reshuffling in plant communities lags behind climate warming (that is, low recovery of the climate–flora equilibrium; **Fig. 1**).

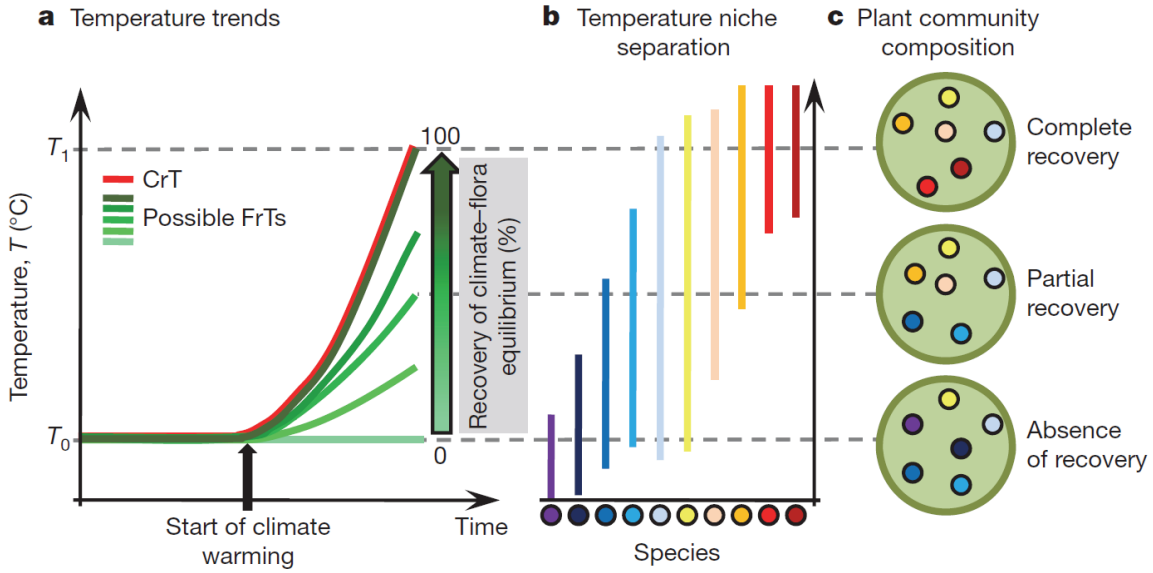


Figure 1 Theoretical response of plant communities to climate warming. **a)**, Floristically (green scale; FrT) and climatically (red; CrT) reconstructed temperature trends over time. The green scale (0–100%) describes different hypothetical floristically reconstructed temperature trends corresponding to increasing intensity of the plant community responses and leading to increasing recovery of the climate–flora equilibrium (measured as the actual change in FrT over time relative to the effective change in CrT over the same time period; see Supplementary Methods for complete formula). **b)**, Temperature niche separation among 10 virtual species. The range of temperature requirements for each species is represented by a vertical line. **c)**, Three illustrative cases of increasing recovery of the climate–flora equilibrium in plant community composition (based on the 10 virtual species in **b**. Bottom, absence of climate–flora equilibrium recovery, corresponding to plant communities composed mainly of cold-demanding species, reflecting temperature conditions before climate warming (T_0), and leading to an important temperature lag between FrT and CrT. Middle, partial recovery of the climate–flora equilibrium, corresponding to reshuffled plant communities, leading to a mixed assemblage of cold- and heat-demanding species and to reduced temperature lag between FrT and CrT. Top, complete recovery of the climate–flora equilibrium, corresponding to important reshuffling of the plant community, leading to an assemblage of heat-demanding species reflecting the effective temperature increase (T_1-T_0) and to the absence of temperature lag between FrT and CrT. The small circles represent virtual plant species; the three large green disks each depict a community of plants.

9.1.3 Methods summary

To achieve our aim, we compiled a complete species list including the year and location of 79 621 floristic surveys (44 509 and 35 112 in lowland and highland areas, respectively) that were recorded across the French forest territory between 1965 and 2008. We computed a 1-km^2 grid of the mean annual temperature across the French territory for each year between 1965 and 2008 using a modeling approach based on 237 non-interrupted

meteorological stations (R^2 = 0.93 for 13 620 independent temperature observations) (Ninyerola *et al.*, 2000). These climatically reconstructed temperatures were extracted at the location and year of each of the 79 621 floristic surveys. We then subsampled a training data set of 2987 floristic surveys before the recent climate warming event (1975–85) to calibrate a transfer function using a combination of weighted averaging partial least squares (Braak & Dame, 1989) and Breiman's random forest (Breiman, 2001) to infer temperatures from the plant assemblages (R^2 = 0.83 in a validation data set). These floristically reconstructed temperatures were then predicted across the French territory between 1965 and 2008 using the 76 634 floristic surveys. This predictive data set was bootstrapped separately in lowland and highland areas for each year to control for artificial temperature variations associated with inter-annual variations in floristic survey locations. We reconstructed 1000 pairs of floristically and climatically reconstructed mean annual temperature trends separately for lowland and highland areas. We tested temperature differences in each pair of trends between 1965–86 and 1987–2008, as well as annually. To discuss our results, we assessed changes in plant community composition in four biogeographic groups of species. We then computed the mean distance separating equal isotherms between periods, in addition to performing independent spatial analysis of the degree of habitat fragmentation in lowland and highland forest areas (see Supplementary Methods for more details).

9.1.4 Results

Before the contemporary climate warming event (1965–86), we found no significant differences between floristically and climatically reconstructed temperatures in lowland and highland forests (**Table 1**), suggesting close equilibrium between species composition in biotic assemblages and temperature conditions. In contrast, during the current climate warming period (1987–2008), we found significant differences between floristically and climatically reconstructed temperatures in lowland and highland forests (**Table 1**), indicating a lag in the response of herbaceous forest species to climate change. In lowland forests, we found no significant increase in floristically reconstructed temperatures between 1965–86 and 1987–2008 (+0.02°C on average), whereas climatically reconstructed temperatures increased by +1.11°C on average (**Table 1a**). In contrast, the floristically reconstructed temperatures of highland forests increased by +0.54°C, with climate warming reaching +1.07°C over the same period (**Table 1b**). This discrepancy indicates an important lag in the response of herbaceous forest species to climate change, being 3.1 times larger in lowland forests (temperature lag =

1.29°C on average) than inhighland forests (temperature lag = 0.42°C on average; **Table 1**). In 2008, the most recently investigated year, this lag decreased to an average of 0.28°C in highland forests but was still 1.26°C in lowland forests (**Fig. 2**). Our results suggest that the recovery of forest plant communities facing climate warming is weak in lowland forests but strong and fast in highland forests, reaching +0.26°C per decade (**Fig. 2**). This rate of increase in floristically reconstructed temperatures confirms the results of a previous study, which reported a similar trend of +0.25°C per decade for herbaceous forest plants in the French mountains, despite the use of a completely different approach based on the comparison of species' optimum elevation between 1905–85 and 1986–2005 (Lenoir *et al.*, 2008). In a Mediterranean forest, the flora turnover observed over the last decade was half that expected from temperature changes (Vennetier & Ripert, 2009), whereas we found that reshuffling of forest plant communities recovered 0% and 60.7% (up to 68.2% in 2008) of the effective temperature increase between 1965–86 and 1987–2008 in lowland and highland areas, respectively. In highland forests, plant communities even completely recovered the effective change in temperature (that is, no significant differences between floristically and climatically reconstructed temperatures) for the years 1991, 1999, 2002, 2004 and 2005 (**Fig. 2**). Thus, lowland areas seem to be one of the least reactive terrestrial ecosystems to climate warming with respect to forest plant communities.

Table 1 Comparison of floristically and climatically reconstructed temperatures.

(a) Lowland				**(b) Highland**			
Reconstruction	Period			Reconstruction	Period		
	1965–1986 (P_1)	1987–2008 (P_2)	$P_2 - P_1$		1965–1986 (P_1)	1987–2008 (P_2)	$P_2 - P_1$
CrT	10.54 (1.2)	11.66 (1.23)	1.11 (0.02)**	CrT	7.98 (1.8)	9.05 (1.8)	1.07 (0.03)**
FrT	10.35 (1.23)	10.37 (1.22)	0.02 (0.02)	FrT	8.09 (1.77)	8.63 (1.61)	0.54 (0.03)**
CrT - FrT	0.19 (0.87)	1.29 (0.99)**		FrT - CrT	-0.11 (1.12)	0.42 (1.23)*	

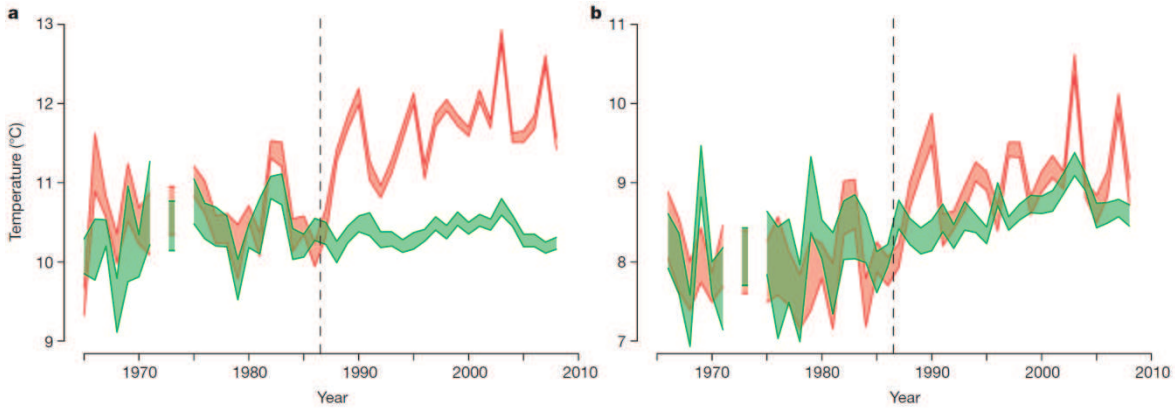


Figure 2 Comparison of floristically (green) and climatically (red) reconstructed temperature trends between 1965 and 2008. **a)**, Trends in lowland forest plant communities (<500 m.a.s.l.). **b)**, Trends in highland forest plant communities (500–2600 m.a.s.l.). The thickness of lines shows the range of reconstructed temperature trends (n = 1000 trends). Dashed lines indicate the start of the contemporary climate warming period (1987–2008). Breaks in trends are due to no sample convergence for the years 1965 (in highland areas), 1972 and 1974 (in both lowland and highland areas).

9.1.5 Discussion

Several possible factors may explain the lower recovery of forest plant communities in response to climate warming in lowland versus highland areas. First, the larger proportion of cosmopolitan and thermophilous species (Supplementary Methods) in lowland communities (75.2% and 15.3% on average) compared to highland communities (67.2% and 8.8% on average) may result in a greater tolerance of lowland communities to climate warming throughout local persistence (Thuiller *et al.*, 2005). We did not find any significant changes in the composition of lowland plant communities between 1965–86 and 1987–2008 (**Fig. 3**), whereas the proportion of mountainous and alpine species in highland plant communities decreased significantly (24.6%on average), to the benefit of cosmopolitan species (15.1% on average). In addition, we suggest that compensatory changes in demographic rates may buffer population dynamics against the negative effects of climate warming, causing a temporary delay in species turnover, especially in lowland plant communities (for example, a higher growth of individuals can compensate for the lower survival and recruitment rates, allowing persistence of threatened populations) (Doak & Morris, 2010). Second, highland forests offer shorter-distance escapes for species facing climate warming compared to lowland forests (Jump *et al.*, 2009; Scherrer *et al.*, 2011), especially for forest plants that have strongly limited dispersal abilities (Primack &Miao, 1992). Thus, species distributions are expected to migrate 11.1km (median value; 5th to 95th percentile range ($PR_{5;95}$) = [0.4; 15]) upward in French

highland forests, but 135.6 km (median value; $PR_{5;95}$ = [2.1; 137.6]) northward in French lowland forests to track their climatic niches according to the contemporary climate warming event (1987–2008). Third, the migration rate of plant species may be delayed by the level of habitat fragmentation (Jump *et al.*, 2009; Primack &Miao, 1992). Forest patches exceeding $5km^2$ cover a larger proportion of highland areas (67.3%) than lowland areas (29.1%). Moreover, forest patches are closer in highland areas (median proximity index (PI) = 3813.7; $PR_{5;95}$ = [15.3; 122 034.3]; see Supplementary Methods for details) than in lowland areas (median PI = 31.6; $PR_{5;95}$ = [1.3; 14 644.2]). All of these factors are not mutually exclusive and may, independently or combined, explain our results showing that reshuffling of plant communities in lowland forests strongly lag behind climate warming.

In this study, we linked reshuffling observed in plant assemblages in French forests to temperature changes between 1965 and 2008. However, water stress may also drive species range shifts (Crimmins *et al.*, 2011; Vennetier & Ripert, 2009). In California, the core of the altitudinal range of 46 out of 64 forest plant species shifted downward in response to regional changes in climatic water balance between 1935 and 2005 (Crimmins *et al.*, 2011). In contrast, no significant changes in the level of annual precipitation was observed throughout the French territory between 1965–86 and 1987–2008 (mean value of precipitation changes [s.d.] = +1.04mm [48.56] in lowland areas, $P = 0.35$, Student's t test for paired samples; -0.93mm [60.09] in highland areas, $P = 0.44$, Student's t test for paired samples). Thus, the absence of changes in precipitation patterns over the 44-year study period is unlikely to explain the differences of reshuffling between lowland and highland forest plant communities. Similarly, acclimation or adaptation processes may also explain the differences we observed between floristically and climatically reconstructed temperatures. The large difference in temperature recovery between highland and lowland forest plant communities may indicate distinct interchanges between migration and adaptation, with migration being more prevalent in highland forests and adaptation more prevalent in lowland forests. Nevertheless, such processes are probably insufficient to mitigate completely the effects of the high temperature increase in just 22 years, especially at the scale of a large pool of perennial species in a fragmented landscape (Huntley, 2007; Jump & Peñuelas, 2005).

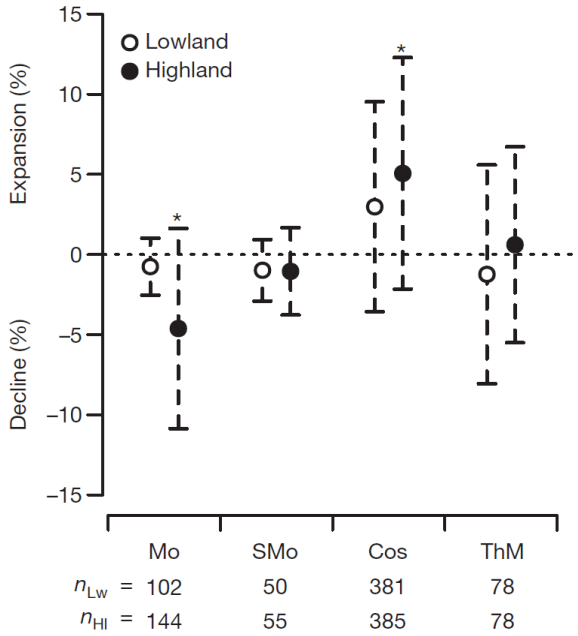


Figure 3 Compositional changes in the plant communities of lowland and highland forests according to four different biogeographic groups. Mean shifts in the proportions of plant communities are shown (data points) with standard deviations (error bars) estimated from 1000 floristic samples used to reconstruct temperatures. The significance of changes from the null hypothesis of zero shift is displayed (* $P < 0.05$ for more than 95% of the floristic samples; Wilcoxon paired signed-rank test). The number of species analysed in lowland (n_{Lw}) and highland (n_{Hl}) plant communities are displayed below the figure. Mo, mountainous to alpine species; SMo, sub-mountainous to lowland species; Cos, cosmopolitan species; ThM, thermophilous to Mediterranean species. See Annexe 1 for more details about the different biogeographic groups.

Although a potential lag between the magnitude of climate warming and the extent of changes within biotic communities has already been suggested (Davis, 1986; Doak & Morris, 2010; Lenoir *et al.*, 2010; Moritz *et al.*, 2008; Lenoir *et al.*, 2008), we provide the first (to our knowledge) assessment of such a lag and show that it is more important in lowland areas. This finding has important implications in terms of conservation issues. To date, a strong focus has been placed on mountaintop extinctions for species facing climate warming (Colwell *et al.*, 2008). However, mountaintop extinctions are just one example, although important, of the likely consequences of contemporary species range shifts in highland areas. Highland areas offer short-distance escapes for species facing climate change (Jump *et al.*, 2009; Scherrer *et al.*, 2011) and provide ideal refuges for plant species to track their climatic requirements (Colwell *et al.*, 2008), which could lead to the formation of novel species assemblages. In lowland areas, the current inertia of forest plant communities suggests delayed extinction and immigration in the face of climate warming (Jackson & Sax, 2010) due to species tolerance and low migration

rate. Considering the velocity of predicted future climate change (Loarie *et al.*, 2009), the low dispersal abilities of forest plants (Primack &Miao, 1992) and the low opportunity for short-distance escape to track climate changes in lowland areas (Jump *et al.*, 2009; Scherrer *et al.*, 2011), the current inertia of forest plant communities will not be indefinite. Consequently, abrupt reshuffling of these plant communities may occur in the future, possibly leading to lowland biotic attrition (Colwell *et al.*, 2008) with important changes expected in ecosystem functioning (Walther, 2010). Therefore, we recommend that research efforts be focused on understanding the implications of climate change in lowland areas.

9.1.6 Acknowledgements

We thank J.-D. Bontemps and P. Mérian for comments; V. Perez, F. Lebourgeois and E. K. Cavalheri for help in the compilation of the meteorological database; V. Perez for technical support in GIS; I. Seynave for management of the EcoPlant database; H. Brisse, J. Drapier and F. Morneau for contributions to the Sophy and NFI databases; and all who have participated in the conception of the EcoPlant, Sophy and NFI databases. The phytoecological database (EcoPlant) was funded by the French Institute of Agricultural, Forest and Environmental Engineering (ENGREF, AgroParisTech), the National Forest Department (ONF), and the French Agency for Environment and Energy Management (ADEME). J.L. acknowledges a grant from the Danish Council for Independent Research – Natural Sciences (272-07-0242 to J.-C. Svenning). This study was funded through a PhD grant to R.B. by ADEME and the Regional Council of Lorraine.

9.1.7 Author Contributions

R.B. designed the study, methodology and modelling approach, performed all the statistical analysis and wrote the paper; P.d.R. provided the Sophy database; C.V. provided the NFI database; J.-C.G. provided the EcoPlant database, helped to design the methodology and supervised the work; R.B. and G.R. contributed equally to format the floristic database; J.-C.P. advised the use of the Breiman's random forest regression to infer temperatures from the plant assemblages; R.B. and C.P. contributed equally to compute the climate model of historic temperature prediction; J.L. contributed actively to improve the clarity of the paper. All authors discussed and commented on the results.

9.1.8 References

Parmesan, C.& Yohe, G. A globally coherent fingerprint of climate change impacts across natural systems. Nature 421, 37–42 (2003).

Rosenzweig, C. et al. in Climate Change 2007: Impacts, Adaptation and Vulnerability (eds Parry, M. L. et al.) 79–131 (Cambridge Univ. Press, 2007).

Williams, J. W. & Jackson, S. T. Novel climates, no-analog communities, and ecological surprises. Front. Ecol. Environ 5, 475–482 (2007).

Wing, S. L. et al. Transient floral change andrapid globalwarming at the Paleocene- Eocene boundary. Science 310, 993–996 (2005).

Davis, M. B. in Community Ecology (eds Diamond, J. & Case, T. J.) 269–284 (Harper and Row, 1986).

Loarie, S. R. et al. The velocity of climate change. Nature 462, 1052–1055 (2009).

Thuiller, W., Lavorel, S., Araujo, M. B., Sykes, M. T. & Prentice, I. C. Climate change threats to plant diversity in Europe. Proc. Natl Acad. Sci. USA 102, 8245–8250 (2005).

Jump, A. S.,Matyas, C.&Penuelas, J. The altitude-for-latitude disparity in the range retractions of woody species. Trends Ecol. Evol. 24, 694–701 (2009).

Scherrer, D. & Korner, C. Topographically controlled thermal-habitat differentiation buffers alpine plant diversity against climate warming. J. Biogeogr. 38, 406–416 (2011).

Colwell, R. K., Brehm, G., Cardelus, C. L., Gilman, A. C. & Longino, J. T. Global warming, elevational range shifts, and lowland biotic attrition in the wet tropics. Science 322, 258–261 (2008).

Crimmins, S. M., Dobrowski, S. Z., Greenberg, J. A., Abatzoglou, J. T.&Mynsberge, A. R. Changes in climatic water balance drive downhill shifts in plant species' optimum elevations. Science 331, 324–327 (2011).

Doak, D. F. & Morris, W. F. Demographic compensation and tipping points in climate-induced range shifts. Nature 467, 959–962 (2010).

Lenoir, J. et al. Going against the flow: potential mechanisms for unexpected downslope range shifts in a warming climate. Ecography 33, 295–303 (2010).

Cannone, N., Sgorbati, S. & Guglielmin, M. Unexpected impacts of climate change on alpine vegetation. Front. Ecol. Environ 5, 360–364 (2007).

Hillebrand, H., Soininen, J. & Snoeijs, P. Warming leads to higher species turnover in a coastal ecosystem. Glob. Change Biol. 16, 1181–1193 (2010).

le Roux, P. C. & McGeoch, M. A. Rapid range expansion and community reorganization in response to warming. Glob. Change Biol. 14, 2950–2962 (2008).

Lenoir, J., Gegout, J.-C., Dupouey, J.-L., Bert, D. & Svenning, J.-C. Forest plant community changes during 1989–2007 in response to climate warming in the Jura Mountains (France and Switzerland). J. Veg. Sci. 21, 949–964 (2010).

Moritz, C. et al. Impact of a century of climate change on small-mammal communities in Yosemite National Park, USA. Science 322, 261–264 (2008).

Lenoir, J., Gegout, J.-C., Marquet, P. A., de Ruffray, P. & Brisse, H. A significant upward shift in plant species optimumelevation during the 20th century. Science 320, 1768–1771 (2008).

Brohan, P., Kennedy, J. J., Harris, I., Tett, S. F. B.&Jones, P. D.Uncertainty estimates in regional and global observed temperature changes: a new data set from1850. J. Geophys. Res. Atmos. 111, D12106, 1–21 (2006).

Heikkila¨, M. & Seppa¨, H. A 11,000 yr palaeotemperature reconstruction from the southern boreal zone in Finland. Quat. Sci. Rev. 22, 541–554 (2003).

Vennetier, M. & Ripert, C. Forest flora turnover with climate change in the Mediterranean region: a case study in Southeastern France. For. Ecol. Mgmt 258, S56–S63 (2009).

Primack, R. B.&Miao, S. L. Dispersal can limit local plant-distribution. Conserv. Biol. 6, 513–519 (1992).

Huntley, B. Evolutionary response to climatic change? Heredity 98, 247–248 (2007).

Jump, A. S. & Penuelas, J. Running to stand still: adaptation and the response of plants to rapid climate change. Ecol. Lett. 8, 1010–1020 (2005).

Jackson, S. T. & Sax, D. F. Balancing biodiversity in a changing environment: extinction debt, immigration credit and species turnover. Trends Ecol. Evol. 25, 153–160 (2010).

Walther, G. R. Community and ecosystem responses to recent climate change. Phil. Trans. R. Soc. B 365, 2019–2024 (2010).

Ninyerola, M., Pons, X. & Roure, J. M. A methodological approach of climatological modelling of air temperature and precipitation through GIS techniques. Int. J. Climatol. 20, 1823–1841 (2000).

ter Braak, C. J. F.& Dame, H. InferringpHfromdiatoms: a comparison of old and new calibration methods. Hydrobiologia 178, 209–223 (1989).

Breiman, L. Random forests. Mach. Learn. 45, 5–32 (2001).

RÉSUMÉ

Les activités humaines ont, depuis plus d'une centaine d'années, influencé de plus en plus fortement les cycles géochimiques contrôlant les niveaux d'acidité et de disponibilité en azote dans la nature. Les dépôts acides et azotés conduisent à une modification des conditions du milieu et notamment à des changements sensibles de la composition des communautés d'espèces végétales.

L'objectif de cette thèse est de retracer l'évolution spatio-temporelle de l'acidité et de la disponibilité en azote des sols forestiers français au cours du 20ème siècle à partir du caractère bio-indicateur de la flore, à l'échelle locale ainsi qu'à l'échelle globale. L'utilisation de la flore comme bio-indicateur vise à pallier l'absence de données de mesures directes des conditions édaphiques et des dépôts atmosphériques acides et azotés couvrant une large emprise spatio-temporelle. Premièrement, les variations de pH (indicateur d'acidité) et C:N (indicateur de disponibilité en azote) bio-indiquées ont été calculées à partir d'environ 100 000 relevés floristiques temporaires réalisés dans toute la France de 1910 à 2010. Elles ont été analysées par une méthode novatrice de comparaison spatio-temporelle, en différenciant les zones forestières sur substrat acide et non-acide ainsi que les forêts de conifères et de feuillus. Dans un second temps, nous avons analysé les changements des conditions édaphiques entre 1972 et 2011 à l'échelle de la forêt de Villey-Le-Sec, et ceux de la flore qu'ils induisent en lien avec d'autres évolutions environnementales, toujours à partir du caractère bio-indicateur de la flore.

À l'échelle globale, nous avons observé une acidification des forêts françaises en milieu acide (-0.34 unités du pH en moyenne) et milieu non-acide (-0.19 unités du pH en moyenne), respectivement, jusqu'en 1984 et 1997. Nous avons ensuite mis en évidence, pour la première fois à notre connaissance, un arrêt dans l'acidification des sols forestiers et même une diminution de l'acidité sur substrat non-acide ainsi que un décalage temporel entre l'acidification des zones acides et non-acides. Cette évolution apparaît tout à fait cohérente avec celle connue des dépôts atmosphériques acidifiants en France depuis le début du 20ème siècle. Spatialement, nous confirmons la tendance temporelle, montrons une évolution régionalisée de l'acidification principalement sur substrat non-acide et soulignons la grande variabilité spatiale des changements de pH des sols forestiers. Concernant l'évolution de la disponibilité en azote, nous observons une diminution non attendue de celle-ci jusqu'en 1984 et 1997, respectivement, dans les forêts de conifères (+0.79 unités de C:N en moyenne) et de feuillus (+0.74 unités de C:N en moyenne). Une tendance à l'eutrophisation des sols forestiers a ensuite été observée dans les forêts de conifères et de feuillus à partir de 1997 (-0.10 et -0.16 unités de C:N en moyenne, respectivement). Cette évolution apparaît décalée par rapport à celle des dépôts azotés en France. Deux raisons principales peuvent être avancées pour expliquer cette différence : (i) une inhibition des communautés microbiennes et de décomposeurs impliquées dans la minéralisation de l'azote due à l'acidification des sols, et (ii) le vieillissement et/ou développement des forêts. Spatialement, nos résultats montrent la diminution du C:N au cours de la période 1997-2007 ainsi que le caractère régional de l'eutrophisation, principalement dans les forêts de feuillus. À l'échelle locale, nous confirmons les évolutions mises en évidence à l'échelle globale. Nous montrons également que le remaniement de la flore s'est accéléré à partir de 1991 dans la forêt de Villey-Le-Sec sous l'effet principal de l'accentuation de son eutrophisation. Il ressort également de cette étude que le remaniement des communautés végétales sous l'effet des changements globaux est un processus complexe où bon nombre de changements environnementaux supplémentaires interviennent (e.g. changement climatique et de gestion sylvicole) et interagissent.

L'ensemble de nos résultats met en évidence que les sols et la flore forestière sont entrés dans une période caractérisée par le recouvrement des effets de l'acidification (subis jusqu'aux années 1990) et les premiers effets de leur eutrophisation. Notre travail montre l'intérêt de l'application de la bio-indication à de larges bases de données floristiques pour suivre l'évolution des changements de propriétés chimiques des sols et des impacts des polluants acidifiants et eutrophisants sur les écosystèmes forestiers, à long terme et sur de vastes zones géographiques mais aussi à des échelles plus locales où cette approche peut permettre de comprendre l'effet des changements globaux ainsi que leur interaction sur les changements floristiques.

Mots-clés : Acidification, bio-indication, changements globaux, décalage temporel, échelles nationale et locale, écosystème forestier tempéré, eutrophisation, évolution spatio-temporelle, flore, long terme, modélisation, niche écologique, pollution atmosphérique, recouvrement, remaniement des communautés végétales, sol.