

TH - GD18

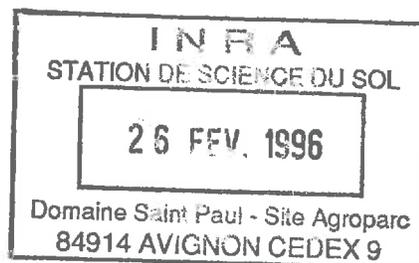
MÉMOIRE

N° 97

1995

ISSN 0302-2684

SCIENCES

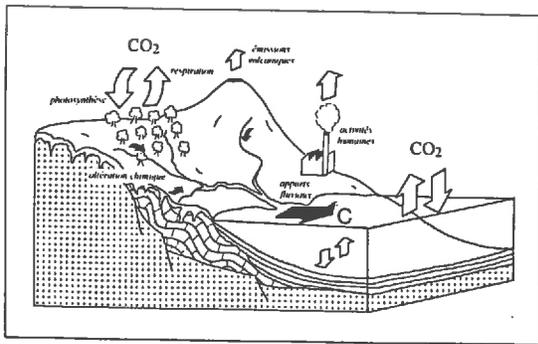


GÉOLOGIQUES

**CYCLE DU CARBONE, ÉROSION CHIMIQUE DES
CONTINENTS ET TRANSFERTS VERS LES OCÉANS**

Philippe AMIOTTE SUCHET
Docteur de l'Université Louis Pasteur, Strasbourg

CYCLE DU CARBONE, ÉROSION CHIMIQUE DES CONTINENTS ET TRANSFERTS VERS LES OCÉANS



Philippe AMIOTTE SUCHET

Docteur de l'Université Louis Pasteur, Strasbourg
Centre de Géochimie de la Surface, CNRS, UPR 6251,
1 rue Blessig, 67084 Strasbourg Cedex (France)

Thèse soutenue à Strasbourg le 8 avril 1994

Table des matières

INTRODUCTION	1
Chapitre I CYCLE DU CARBONE ET ÉROSION CHIMIQUE	3
I – LE CYCLE ACTUEL DU CARBONE	3
A – Taille des réservoirs	3
1. Le réservoir atmosphère	3
2. Le réservoir océanique	3
3. Le réservoir biosphère	6
a) La végétation	6
b) Les sols	7
4. Le réservoir lithosphère	7
a) La croûte terrestre	7
b) Le manteau supérieur	8
c) Les combustibles fossiles	8
B – Les flux entre réservoirs	9
1. Les échanges océans-atmosphère	9
2. Les échanges biosphère-atmosphère	10
a) Bilan des échanges atmosphère-végétation	10
b) Respiration des sols	10
c) Le flux net biosphère-atmosphère	11
3. Rejets anthropiques de CO ₂ dans l'atmosphère	11
4. Les apports fluviaux aux océans	12
5. Les flux d'entrée et de sortie de la lithosphère	13
a) Les apports de carbone par sédimentation	13
b) Le volcanisme	14
c) Bilan des entrées/sorties de la croûte terrestre	14
6. Les temps de résidence	15
7. Le problème du "carbone manquant"	15
C – Les variations temporelles de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère et leurs conséquences	15
1. Fluctuations saisonnières	16
2. Fluctuations interannuelles	16
3. Conséquences	17

a) Changements climatiques	17
b) Les effets rétroactifs	18
II – LE CYCLE DU CARBONE AU COURS DES TEMPS GÉOLOGIQUES	18
A – Variations de la concentration de CO ₂ dans l’atmosphère au cours des 500 derniers millions d’années	19
1. Le cycle géochimique des carbonates-silicates : un effet rétroactif négatif	19
2. Le modèle BLAG (BERNER, LASAGA et GARRELS, 1983)	19
3. Le modèle de BERNER (1991)	21
4. Le modèle de BUDYKO <i>et al.</i> (1987)	22
B – Variations de la concentration de CO ₂ dans l’atmosphère au cours des 150 derniers milliers d’années	23
1. Les archives glaciaires	23
2. Rôle des océans et de la biosphère	24
3. Rôle potentiel de l’érosion continentale	24
III – L’ALTÉRATION CHIMIQUE DES CONTINENTS : UN PUIT DE CO ₂ ATMOSPHERIQUE	25
A – Du CO ₂ atmosphérique aux bicarbonates dans les eaux fluviales	25
1. Le carbone inorganique dans les eaux de surface	25
2. Le CO ₂ dans les solutions de sol	26
3. L’altération chimique des minéraux	27
a) Les réactions de dissolution	27
b) Influence des variations de la température sur la dissolution des minéraux	28
c) Influence des variations de la pCO ₂ sur la dissolution des minéraux	28
4. Transport par les fleuves vers les océans	29
a) La précipitation de calcite et le dégazage de CO ₂	29
b) L’oxydation de la matière organique	30
5. Conclusion sur les facteurs potentiels de la consommation de CO ₂ par érosion chimique	31
IV – CONCLUSION : IMPORTANCE DE L’ÉROSION DANS LE CYCLE DU CARBONE	31
A – Importance des flux d’érosion dans le cycle actuel	31
B – Importance de l’érosion au cours des temps géologiques	31
C – Importance des facteurs de l’érosion	32
Chapitre II FLUX DE CO₂ CONSOMMÉ PAR ÉROSION CHIMIQUE DES PRINCIPAUX TYPES DE ROCHES	33
I – MÉTHODES D’ESTIMATION DU FLUX DE CO ₂ CONSOMMÉ	33
A – Méthode du bilan de l’altération chimique par type de roche	34
B – Méthode de décomposition des flux d’éléments majeurs dissous	34
C – Utilisation du rapport isotopique ¹² C/ ¹³ C des bicarbonates	36
II – FLUX DE CO ₂ CONSOMMÉ PAR TYPE DE ROCHE	37
A – Matériels et méthodes	37
1. Choix des données	37

2. Méthode	38
B – Résultats	39
1. Les relations flux de CO ₂ consommé – débit par type de roche	39
a) Les roches magmatiques et métamorphiques	39
b) Les roches détritiques argileuses	41
c) Les sables et les grès	41
d) Les roches carbonatées et les évaporites	41
2. Conséquence : variabilité spatiale de la consommation de CO ₂	41
III – CONCLUSIONS	42
Chapitre III BILAN ET MODÉLISATION DE LA CONSOMMATION DE CO₂ PAR ÉROSION CHIMIQUE SUR LES GRANDS BASSINS FLUVIAUX	43
I – LES DONNÉES UTILISÉES DANS CETTE ÉTUDE	43
A – Facteurs de l’environnement	44
1. Paramètres déjà acquis	44
2. La lithologie	44
a) Paramétrisation de la lithologie	44
b) Carte de lithologie globale	46
3. Le drainage	49
B – Les flux d’éléments majeurs dissous	50
II – DÉTERMINATION DU FLUX DE CO ₂ CONSOMMÉ PAR ÉROSION CHIMIQUE SUR	
LES GRANDS BASSINS VERSANTS	53
A – Estimation des apports atmosphériques	53
B – Méthode de calcul du flux de CO ₂	53
1. Hypothèses de base	53
a) Bilan géochimique direct basé sur le flux total de bicarbonates	55
b) Bilan géochimique indirect basé sur les bilans par minéraux	55
2. Estimation des rapports R _{sil} et R _{pyr} sur les bassins fluviaux	55
C – Résultats	56
1. Flux de bicarbonates et flux de CO ₂ consommé par bassin	56
2. Influence du drainage et de la lithologie	58
a) Influence du drainage	58
b) Influence de la lithologie	59
3. Origine des éléments dissous transportés par les fleuves	60
a) Bilan du CO ₂ consommé	60
b) Bilan de la silice	60
III – BILAN GLOBAL DE LA CONSOMMATION DE CO ₂	63
A – Méthode	63
B – Résultats	65
IV – MODÉLISATION	67

A – Méthode de calcul	68
B – Résultats	68
V – CONCLUSIONS	70
Chapitre IV VARIATIONS SAISONNIÈRES ET INTERANNUELLES DE LA CONSOMMATION DE CO₂. CAS DES BASSINS DE LA GARONNE ET DU CONGO	73
I – BASSIN DE LA GARONNE	73
A – Matériel	73
1. Présentation du bassin	73
2. Les données	74
B – Fluctuations des débits et de la température de l'air depuis 1950	75
1. Choix des données de température	75
2. Variations saisonnières des débits et de la température de l'air	75
3. Variations interannuelles des débits et de la température de l'air	77
C – Fluctuations de la consommation de CO ₂ sur le bassin de la Garonne de 1971 à 1991	78
1. Variations saisonnières de la concentration en HCO ₃ ⁻	78
2. Détermination du flux de CO ₂ consommé par érosion chimique	78
a) Validité des données publiées par le Ministère de l'Environnement (1971–1989)	79
b) Correction des apports atmosphériques	80
c) Décomposition des flux d'éléments majeurs dissous	80
3. Variations saisonnières de la consommation de CO ₂	82
a) Influence du débit sur la contribution du CO ₂ atmosphérique au flux total de HCO ₃ ⁻	82
b) Variations saisonnières interannuelles des concentrations en HCO ₃ ⁻	84
4. Variations interannuelles de la consommation de CO ₂ de 1971 à 1991	85
a) Bilan de l'altération chimique	85
b) Fluctuations de la consommation de CO ₂ de 1971 à 1991	87
c) Fluctuations de la consommation de CO ₂ sur le bassin de la Garonne au cours des 80 dernières années	88
II – BASSINS DE L'OUBANGUI ET DU CONGO	88
A – Introduction	88
1. Présentation des bassins du Congo et de l'Oubangui	88
2. Les données	89
B – Consommation de CO ₂ sur les bassins du Congo et de l'Oubangui de 1987 à 1990	90
1. Les études précédentes	90
2. Détermination du flux de CO ₂ consommé	91
a) Correction des apports atmosphériques	91
b) Procédure de calcul du flux de CO ₂ consommé	91
3. Bilan moyen annuel de la consommation du CO ₂	92
4. Fluctuations saisonnières de la consommation de CO ₂	93
a) Bassin de l'Oubangui	93

b) Bassin du Congo	93
III – CONCLUSIONS	95
Chapitre V UN MODÈLE GLOBAL POUR LA CONSOMMATION DE CO₂ PAR ÉROSION CHIMIQUE DES ROCHES CONTINENTALES	97
I – LES BASES DE LA MODÉLISATION	98
A – Les lois de base	98
B – Fonctionnement du modèle GEM-CO ₂	98
II – VALIDATION DU MODÈLE SUR LES BASSINS DE LA GARONNE, DU CONGO ET DE L'AMAZONE	99
A – Application au bassin de la Garonne	99
B – Application au bassin du Congo	100
C – Application au bassin de l'Amazone	101
D – Conclusion	102
III – APPLICATION DU MODÈLE A L'ÉCHELLE GLOBALE	104
A – Les cartes de base	104
B – Cartographie de la consommation de CO ₂ à l'échelle globale	104
1. Flux de CO ₂ moyens annuels	104
2. Variabilité saisonnière	106
C – Application du modèle à l'ensemble des grands bassins fluviaux	107
D – Bilan du CO ₂ consommé pour différentes régions du globe	109
1. Bilan par tranche de latitude	109
a) Bilan annuel	110
b) Variations saisonnières	110
2. Bilan par continents	111
3. Bilan par océans	112
4. Comparaison avec des estimations antérieures	114
IV – CONCLUSIONS	114
Chapitre VI INFLUENCE DES PRÉCIPITATIONS ACIDES SUR LA CONSOMMATION DE CO₂ PAR ÉROSION CHIMIQUE	117
I – PERTURBATIONS A L'ÉCHELLE DES PETITS BASSINS VERSANTS	117
A – Influence des précipitations acides sur l'altération chimique	117
1. Perturbation de l'érosion chimique	117
2. Perte d'alcalinité et précipitations acides	118
B – Comparaison entre un bassin très perturbé et un bassin peu perturbé par les apports acides	119
1. Influence des précipitations acides sur les bassins du Ringelbach et du Strengbach	120
a) Caractéristiques physiques et hydrologiques des deux bassins	120
b) Bilans hydrochimiques	120
2. Flux de CO ₂ consommé	121
a) Flux exportés par les ruisseaux	121

b) Modélisation thermodynamique et cinétique	123
3. Conclusion	125
II – SENSIBILITÉ DE LA CONSOMMATION GLOBALE DE CO ₂ AUX PRÉCIPITATIONS ACIDES	125
A – Extension mondiale des précipitations acides	125
B – Méthode	125
C – Résultats des simulations	127
III – CONCLUSIONS	129
CONCLUSIONS GÉNÉRALES	131
Erosion chimique et cycle du carbone	131
Estimation des flux de CO ₂ consommé par érosion chimique : deux approches différentes	132
Bilan des flux de CO ₂ consommé à l'échelle globale	132
Les facteurs qui contrôlent la consommation de CO ₂	133
Variabilité spatiale et transferts vers les océans	134
Variabilité temporelle	134
Les perturbations naturelles et anthropogéniques	135
Perspectives	136
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	137
Annexes	149
Liste des figures	151
Liste des tableaux	155

INTRODUCTION

Si l'atmosphère terrestre possède une température moyenne propice au développement de la vie, c'est grâce à l'effet de serre, qui est en grande partie lié à la concentration de CO_2 dans l'atmosphère. Le niveau de celle-ci est maintenu plus ou moins constant par les nombreux processus qui contrôlent les transferts de carbone entre les différents réservoirs du cycle bio-géochimique du carbone.

Parmi ces processus, l'érosion chimique des roches continentales, et la précipitation des minéraux carbonatés dans les lacs et les océans, règlent le transfert de carbone inorganique par les fleuves de l'atmosphère vers les océans et la lithosphère. Pour simplifier, le CO_2 atmosphérique est fixé sous forme de carbone organique par la photosynthèse, lequel est ensuite oxydé au niveau des sols et se dissout dans les eaux de percolation. L'acide carbonique ainsi fabriqué participe à l'altération chimique des minéraux des roches avant d'être évacué en solution sous forme d'ions bicarbonates par les eaux de drainage vers les océans, où une partie sera fixée par précipitation de minéraux carbonatés. Cependant, les ions bicarbonates proviennent également de la dissolution des minéraux carbonatés. C'est pourquoi la quantité de CO_2 d'origine atmosphérique consommé par érosion chimique ne peut être estimée que par le biais de méthodes permettant de distinguer la part de CO_2 atmosphérique dans le flux total de bicarbonates transportés par les fleuves.

Les travaux réalisés jusqu'à présent sur la consommation de CO_2 par érosion chimique des roches continentales (GARRELS et MACKENZIE, 1971 ; HOLLAND, 1978 ; MEYBECK, 1979, 1987 ; BERNER *et al.*, 1983 ; WOLLAST et MACKENZIE, 1983 ; TARDY, 1986 ; PROBST, 1992) se sont surtout attachés à en établir le bilan global. Cependant, toutes ces estimations sont basées sur la même approche et, pour les plus récentes, sur le bilan établi par MEYBECK (1979).

Les principaux objectifs de ce travail sont de faire une étude précise des différents facteurs qui contrôlent les flux de CO_2 consommé par érosion chimique, de quantifier les relations entre ces facteurs et les flux de CO_2 . Ces relations seront abordées à différentes échelles de temps (fluctuations saisonnières et interannuelles) et d'espace (à l'échelle de petits bassins versants, des grands bassins fluviaux et à l'échelle des continents). Il s'agit aussi de développer un modèle qui permette de simuler la distribution spatiale des flux de CO_2 consommé à l'échelle des continents, d'établir une nouvelle estimation des flux transférés aux océans pour l'ensemble des surfaces continentales, d'estimer les flux apportés aux différents océans et de simuler les variations de ces flux en réponse à différentes perturbations de l'environnement global.

Le premier chapitre de ce mémoire présente le cycle biogéochimique actuel du carbone, en s'appuyant sur les nombreux travaux récemment publiés sur ce sujet, et tente d'évaluer l'importance de l'érosion chimique des continents dans ce cycle.

Dans le second chapitre, nous abordons les différentes méthodes qui permettent de distinguer la part du CO_2 d'origine atmosphérique dans les flux de bicarbonates exportés par les fleuves. Les relations entre l'intensité du drainage et le flux de CO_2 consommé sont alors quantifiées pour différents types de roches altérées, en utilisant des données de débit et de concentrations en HCO_3^- déjà publiées sur des petits bassins versants monolithologiques français.

Le troisième chapitre est consacré à l'estimation des flux de CO_2 consommé sur un ensemble de 45 grands bassins fluviaux et à l'étude des différents facteurs qui contrôlent ces flux à l'échelle globale. Les flux de CO_2 ainsi calculés servent ensuite à établir un premier bilan à l'échelle globale.

Les variations temporelles des flux de CO₂ consommé sont analysées dans le quatrième chapitre. Les variations saisonnières sur les bassins de la Garonne, du Congo et de l'Oubangui sont plus particulièrement étudiées. On analyse également les variations interannuelles au cours des 20 dernières années sur le bassin de la Garonne.

Dans le cinquième chapitre, on développe un modèle permettant de faire une cartographie des flux de CO₂ consommé mensuellement et annuellement sur l'ensemble des surfaces continentales. On utilise ensuite ce modèle pour établir un nouveau bilan de la consommation de CO₂ à l'échelle globale.

L'influence des précipitations acides sur les flux de CO₂ consommé par érosion chimique est étudiée dans le sixième et dernier chapitre. On compare tout d'abord les flux de bicarbonates estimés à l'exutoire d'un petit bassin versant granitique très perturbé par les précipitations acides (le bassin du Strengbach dans les Vosges) aux flux de bicarbonates estimés à l'exutoire d'un bassin versant similaire mais peu perturbé par les précipitations acides (le bassin du Ringelbach dans les Vosges). Ensuite, à l'aide du modèle développé dans le chapitre précédent, on effectue des simulations de flux de CO₂ consommé à l'échelle globale en réponse à différents scénarii de précipitations acides. On tente alors de déterminer si les précipitations acides provoquent actuellement une diminution de la consommation de CO₂ à l'échelle globale.

Ce travail a été réalisé dans le cadre des programmes de recherches suivants :

- ESCOBA (The Global Carbon Cycle and its perturbation by Man and Climate II - Terrestrial Biosphere) du Programme Environnement de la CEE ;
- PIRAT et PEGI (Programme Environnement Géosphère Intertropicale) / opération GBF (Grands Bassins Fluviaux) de l'INSU-CNRS/ORSTOM ;
- DBT-I (Dynamique et Bilan de la Terre) / Fleuves et Erosion / ONT Garonne (Observatoire National de Terrain) de l'INSU-CNRS ;
- le programme MRT "Transfert de solutés dans le système eaux sol plante atmosphère à différentes échelles spatiales en moyenne montagne tempérée" et l'action "Eau Sol Plante" du programme Environnement du CNRS.

Chapitre I

CYCLE DU CARBONE ET ÉROSION CHIMIQUE

Le but de ce chapitre est de situer le processus de consommation de CO₂ par altération chimique des roches dans le cycle du carbone et d'évaluer son importance relative par rapport aux autres processus qui le régulent. Pour cela nous dresserons tout d'abord un portrait précis du cycle du carbone tel qu'il nous apparaît aujourd'hui, puis nous décrirons ses fluctuations au cours des temps géologiques. Pour finir, nous détaillerons le processus de consommation de CO₂ par altération chimique des roches.

I – LE CYCLE ACTUEL DU CARBONE

L'intérêt accru ces 20 dernières années pour le cycle du carbone a amené la publication de très nombreux travaux sur le cycle global actuel. Quelques rapports font périodiquement la synthèse de ces travaux. On peut notamment citer les synthèses du programme SCOPE (BOLIN *et al.*, 1979 ; BOLIN, 1981 ; BOLIN et COOK, 1983), le rapport de "l'U.S. Department of Energy" édité par TRABALKA (1985) et le rapport de "l'Intergovernmental Panel on Climate Change" (IPCC) édité par HOUGHTON *et al.* (1990).

L'objectif de cette première partie est de décrire le cycle global actuel du carbone. La taille des réservoirs, les flux d'entrée et de sortie des réservoirs ainsi que les temps de résidence, discutés dans le texte, sont donnés avec le plus de précision possible dans le tableau 1 et sont schématiquement représentés sur la figure 1.

A – TAILLE DES RÉSERVOIRS

1. Le réservoir atmosphère

C'est le plus petit et semble-t-il le plus simple des réservoirs majeurs de carbone. La concentration moyenne de CO₂ dans l'atmosphère est de 353 ppmv en 1990 d'après WATSON *et al.* (1990), soit 750 GtC. Cette concentration est mesurée régulièrement depuis la fin des années 50 sur des sites de plus en plus nombreux répartis à la surface du globe et dans les différentes couches de l'atmosphère (PEARMAN *et al.* 1983 ; GAMMON *et al.*, 1985 ; CONWAY *et al.*, 1988 ; KEELING *et al.*, 1989 a et b ; TANS *et al.*, 1989). Ces mesures montrent un accroissement important de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère depuis 1958, au rythme moyen de 1,8 ppmv par an (WATSON *et al.*, 1990).

2. Le réservoir océanique

La masse de carbone dissous dans les océans est estimée à 38 400 GtC (tabl. 1), soit environ 37 400 GtC sous forme inorganique et 1000 GtC sous forme organique (BOLIN *et al.*, 1981). OLSON *et al.* (1985) donnent

Tableau 1 - Taille des réservoirs et des flux dans le cycle biogéochimique global du carbone.

RESERVOIRS	TAILLE (Gt.C)	FLUX D'ENTREE (Gt.C/an)			FLUX DE SORTIE (Gt.C/an)			BLAN ENTREES/ SORTIES*** (Gt.C/an)	TEMPS DE RESIDENCE MOYEN (années)	
		estimation*	min**	max**	estimation*	min**	max**			
ATMOSPHERE	750 (1) (1990)	Comb. energ. fossif (1)	5,4	6,6	Photosynthèse (3)	90	120			
		Déforestationg (2)	1,8	2,7	Absorption océaniqueh(1)	105	92,8			
		Respir. végétationd (3)	50	40		92	91,2			
		Respir. solse (4)	54,45	49,48						
		Dégazage océansf (1)	90	89,2						
Volcanisme aérient (5)	0,07	0,12								
TOTAL		202,32	185,10	219,50	197	181,2	+5,32†	4		
OCEAN	39000 (1)	Absorption océansh (1)	92	91,7	92,8	Dégazage océaniquei (1)	90			
		Apports fluviaux:				Sédiment. C _{inorg} q	0,37	0,22(12)	0,52(11)	
		CO2d	0,20(6)	0,20(6)	0,33(7)	Sédiment. C _{org} e	0,08	0,03(15)	0,13(16)	
		COP solsk	0,09(6)	0,17(6)	0,23(7)					
		COP lithok (6)	0,08	0,23(8)	0,30(9)					
		CID atmo./solsl	0,26(8)	0,10	0,15					
		CID carbonatesm (8)	0,13	0,17(6)	0,20(10)					
		CIP carbonatesn	0,17(6)	0,87	1,21					
		Total fleuves	0,93							
		TOTAL		92,93	92,57	94,01	90,45	90,25	+2,48	430
VEGETATION	550 (1)	photosynthèse* (3)	105	90	120	respir. végétationd (3)	50	40	60	
						production litièreb (3)	55	50	60	
						déforestationg (2)	1,8	1,0	2,7	
TOTAL		105	90	120	TOTAL	106,8	91,0	122,7	-1,8	5
SOLS carbone organique	1500 (1)	production litièreb (3)	55	50	60	respiration des solse (4)	54,45	49,48	59,28	
						érosion				
						CO2d	0,20(6)	0,20(6)	0,33(7)	
						COP solsk(6)	0,09	-	-	
						CID atmo./solsl	0,26(8)	0,23(8)	0,30(9)	
						total érosion	0,55	0,52	0,72	
						accum. combustibles fossilese	~0			
TOTAL		55	50	60	TOTAL	55	50	60	0(4)	27
SOLS carbone minéral	1100 (13)									

Tableau 1 - *fin.*

CROUTE TERRESTRE carboné minéral	120x10 ⁶ (14)	Sédiment. C _{inorg} ^q	0,37 ⁽⁴⁾	0,22 ⁽¹²⁾	0,52 ⁽¹¹⁾	érosion CID carbonates ^m (8) CIP carbonates ⁿ (5) total érosion volcanisme aérien ^t (5)	0,13 0,17 ⁽⁶⁾ 0,30 0,07	0,10 0,17 ⁽⁶⁾ 0,27 0,02	0,15 0,20 ⁽¹⁰⁾ 0,35 0,12	0	325 10 ⁶
TOTAL		TOTAL	0,37	0,22	0,52	TOTAL	0,37	0,29	0,47	0	
CROUTE TERRESTRE carbone organique	23x10 ⁶ (14)	sédiment. C _{org} ^q (10)	0,08	0,03 ⁽¹⁵⁾	0,13 ⁽¹⁶⁾	érosion COP lithok ⁽⁶⁾ C _{org} ^o	0,08	-	-	0	290 10 ⁶
COMBUSTIBLES FOSSILES	3700 à 4200 (17)	accum. combustibles fossiles ^e	~ 0			combustion énergie fossile ^f (1)	6	5,4	6,6	-6	620 à 700
TOTAL			455,7				455,7			0	

1 Gt.C = 10⁹ t de Carbone

Les valeurs présentées dans ce tableau sont discutées dans le texte et les lettres en exposant se rapportent aux flux référencés sur la figure 1.

* estimations moyennes jugées les plus précises.

** valeurs extrêmes des flux estimés par divers auteurs et qui sont discutées dans le texte.

*** différence entre flux estimé d'entrée et flux estimé de sortie.

† Le bilan des entrées/sorties du réservoir atmosphère montre que celui-ci devrait augmenter annuellement de 5,32 Gt.C alors que l'augmentation réelle est estimée à 3,4 Gt.C/an en moyenne pour la décennie 1980-1989 (WATSON *et al.*, 1990) d'après les mesures de concentration en CO₂ dans l'atmosphère.

(1) bilan de WATSON ET AL. (1990) et SARMIENTO ET SUNDQUIST (1992)

(2) estimation moyenne pour la période 1980-1989

(3) HOUGHTON ET AL. (1985)

(4) valeurs estimées en considérant le réservoir sol à l'équilibre

(5) WILLIAMS ET AL. (1992)

(6) MEYBECK (1993)

(7) DEGENS ET AL (1991)

(8) Ce travail, chapitre V

(9) PROBST (1992)

(10) KEMPE (1979)

(11) moyenne pour le pliocène d'après HAY (1985)

(12) BERNER ET AL. (1983)

(13) OLSON ET AL. (1985)

(14) d'après RONO ET YAROSHEVSKIY (1976)

voir tableau III

(15) GARRELS ET PERRY (1974)

(16) BERNER (1982)

(17) ROTT ET MASTER (1985)

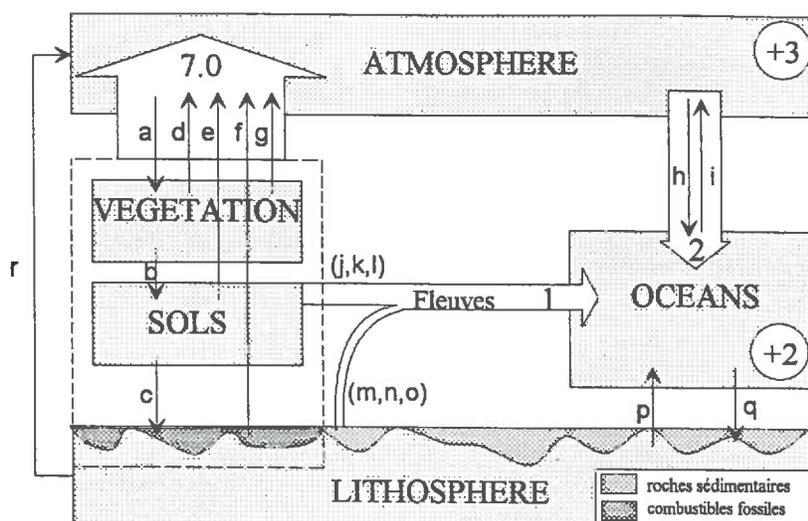


Fig.1 – Représentation schématique du cycle du carbone. Les flux sont exprimés en Gt C/an et correspondent aux valeurs données dans le rapport de l'IPCC (WATSON *et al.*, 1990). Les flèches représentent les flux (a à q) entre les différents réservoirs répertoriés dans le tableau 1.

des valeurs similaires (38 200 Gt de carbone inorganique dissous et 800 Gt de carbone organique dissous).

La masse de carbone particulaire dans les océans, organique et inorganique confondus, est relativement insignifiante comparée au carbone dissous. Elle est essentiellement constituée par la biomasse océanique vivante et morte. Une excellente compilation des travaux sur l'estimation de la biomasse océanique vivante est donnée par DE VOOYS (1979). Parmi ces travaux, nous retiendrons ceux de WHITTAKER et LIKENS (1973) qui nous semblent les plus complets et qui évaluent la biomasse océanique totale à 2,2 GtC. La biomasse océanique morte est estimée entre 20 GtC (CAUWET, 1978) et 30 GtC (MOPPER et DEGENS, 1979).

3. Le réservoir biosphère

On distingue deux réservoirs principaux dans le système biosphère : la biomasse continentale constituée à 99,9% par la végétation (WHITTAKER et LIKENS, 1975), et les sols constitués de carbone organique issu de la végétation.

a) La végétation

Le climat conditionne le type et la densité de la végétation, déterminant alors les différents écosystèmes, du désert à la forêt tropicale (WHITTAKER et LIKENS, 1975 ; AJTAY *et al.*, 1979 ; HOUGHTON *et al.* ; 1985 ; PRENTICE et FUNG, 1990). A l'échelle globale, la masse de carbone stockée dans la végétation est estimée en faisant la somme des produits de la masse spécifique de carbone (unité de masse/unité de surface) stockée dans chaque écosystème, par la surface respective occupée par chaque écosystème (WHITTAKER et LIKENS, 1975 ; AJTAY *et al.*, 1979 ; OLSON *et al.* 1983 ; PRENTICE et FUNG, 1990). Les résultats de ces principales estimations sont rassemblés dans le tableau 2. Une autre méthode, développée par BROWN et LUGO (1984) et reprise par HOUGHTON *et al.* (1985), utilise les volumes de végétation (unité de masse/unité de volume) plutôt que les surfaces, et donne des résultats similaires, quoique légèrement inférieurs (tabl. 2).

L'activité humaine vient perturber ce lien étroit entre climat et végétation. Les différents écosystèmes sont modifiés par une activité agro-pastorale s'intensifiant avec l'accroissement de la population et qui tend à diminuer la masse de carbone stockée par unité de surface (WHITTAKER et LIKENS, 1975 ; BRAMRYD,

1979 ; WOODWELL *et al.*, 1983 ; HOUGHTON *et al.*, 1985 ; CRUTZEN et ANDRAE, 1990). Même si les valeurs du tableau 2 ont des ordres de grandeur similaires, les différences observées dénotent certaines difficultés à faire un bilan précis de la masse de carbone contenue dans la biomasse terrestre. Ces difficultés sont pour l'essentiel concentrées sur les forêts tropicales pour lesquelles les données de terrain sont peu nombreuses (HOUGHTON *et al.*, 1985) et où la déforestation perturbe très fortement les écosystèmes (WHITTAKER et LIKENS, 1975 ; WOODWELL *et al.*, 1983 ; DETTWILLER et HALL, 1988 ; CRUTZEN et ANDRAE, 1990). La taille du réservoir végétation semble donc comprise entre 421 GtC (HOUGHTON *et al.*, 1985 d'après BROWN et LUGO, 1984) et 830 GtC (PRENTICE et FUNG, 1990). Cependant, à la vue des estimations du tableau 2, la valeur moyenne de 550 GtC donnée dans le rapport IPCC par WATSON *et al.* (1990) sera retenue dans le tableau 1.

Tableau 2 – Principales estimations de la masse de carbone contenue dans la biomasse continentale.

masse (GtC)	références
827	WHITTAKER et LIKENS (1973) in HOUGHTON <i>et al.</i> (1985)
560	AJTAY <i>et al.</i> (1979)
558	OLSON <i>et al.</i> (1983)
421-470	HOUGHTON <i>et al.</i> (1985) d'après BROWN et LUGO (1984)
748-834	PRENTICE et FUNG (1990)

b) Les sols

L'estimation de la masse de carbone stockée dans les litières et dans les sols reprend sensiblement les mêmes méthodes que celles utilisées pour la végétation (AJTAY *et al.*, 1979). Les limites du réservoir que nous appellerons "sol" incluent les litières ainsi que les tourbières. HOUGHTON *et al.* (1985) proposent une masse moyenne de carbone organique dans les sols équivalente à 1500 GtC, avec une imprécision de plus ou moins 20 % déterminée d'après une dizaine d'estimations de la littérature variant entre 1200 et 2200 GtC. En outre, les tourbières (correspondant aux végétations de type toundra, forêt boréale, marécages) constitueraient 34 % de la totalité du carbone dans les sols (HOUGHTON *et al.*, 1985). Les récents travaux de PRENTICE et FUNG (1990) évaluent la masse de carbone organique stockée dans les sols entre 1140 et 1313 GtC. Comme pour la végétation, la valeur moyenne de 1500 GtC proposée par HOUGHTON *et al.* (1985) et reprise dans le rapport de l'IPCC (WATSON *et al.*, 1990) sera retenue dans le tableau 1. La proportion de carbone minéral contenue dans les sols est assez mal connue ; les rares travaux effectués jusqu'à présent sur ce sujet l'estiment à environ 1100 ± 700 Gt.C (OLSON *et al.*, 1985).

4. Le réservoir lithosphère

La lithosphère constitue de loin le réservoir de carbone le plus grand. Le carbone y est présent à l'état solide, plus rarement gazeux ou liquide, et sous forme organique et/ou inorganique. Nous proposons, dans ce paragraphe, de faire un bilan détaillé de la répartition du carbone organique et inorganique dans les différents réservoirs de la lithosphère. Les limites des sous-réservoirs de la lithosphère sont essentiellement géologiques. On examinera les réservoirs croûte continentale et croûte océanique, dans lesquels seront distinguées les roches carbonatées, les roches non-carbonatées et les roches endogènes (magmatiques et métamorphiques), le manteau supérieur et enfin les combustibles fossiles.

a) La croûte terrestre

Parmi les travaux visant à faire le bilan des masses de roche et des éléments chimiques qui les composent, on peut citer CLARKE (1924), GOLDSCHMIDT (1933), POLDERVAART (1955), RONOV (1964, 1982), GREGOR (1968, 1985), GARRELS et MACKENZIE (1971), RONOV et YAROSHESKIY (1976), KEMPE (1979), VEIZER et JANSEN (1979), RONOV *et al.* (1980), HAY (1985), BUDYKO *et al.* (1987), HAY *et al.* (1988). Aucun de ces

travaux ne donne la masse de carbone contenue par chacun des réservoirs de la croûte terrestre cités plus haut. Cependant, RONOY et YAROSHEVSKIY (1976) définissent le volume, la masse ainsi que la composition chimique moyenne de chaque type de roche (roches sédimentaires et roches endogènes) de la croûte continentale et de la croûte océanique, en utilisant des données cartographiques, géophysiques et plusieurs milliers d'analyses chimiques. Les valeurs présentées dans le tableau 3 sont issues de ce gigantesque travail. Ces résultats montrent que, malgré leur faible abondance (2,1 % de la masse totale des roches de la croûte terrestre), les sédiments carbonatés constituent le plus grand réservoir de carbone inorganique (environ 45 % de la masse totale de carbone inorganique contenu dans la croûte terrestre). Par contre, le carbone organique, en faible proportion, est essentiellement présent dans les sédiments non-carbonatés. Enfin, le carbone est présent en quantités importantes dans les roches endogènes, mais il est en quelque sorte "dilué" dans la masse des roches (0,15 % de carbone inorganique et 0,03 % de carbone organique). Récemment, BUDYKO *et al.* (1987) ont repris les travaux de RONOY et YAROSHEVSKIY (1976) et proposent les masses de 860.10^{20} g de carbone inorganique et de 118.10^{20} g de carbone organique dans les roches sédimentaires. Ces valeurs sont tout à fait comparable à celles que nous avons calculées (804.10^{20} g et 147.10^{20} g respectivement, tabl. 3). JAVOY *et al.* (1982) ainsi que HAY (1985) donnent également des résultats similaires (respectivement 800 et 760.10^{20} g de carbone inorganique dans les roches sédimentaires). Notons enfin que certains auteurs proposent des valeurs nettement inférieures. GARRELS et MACKENZIE (1971) estiment à 570.10^{20} g la masse de carbone inorganique dans les sédiments, et KEMPE (1979), reprenant les chiffres de base de GARRELS et MACKENZIE (1971), estime à 480.10^{20} g la masse de carbone inorganique dans les sédiments. Nous retiendrons dans le tableau 1 que la croûte terrestre contient au total 120 millions de Gt de carbone inorganique et 23 millions de Gt de carbone organique, avec une variation de l'ordre de 20 %.

Tableau 3 – Masses et proportions de carbone minéral (Cm) et organique (Co) dans les différents types de roches de la croûte terrestre, calculées dans cette étude d'après RONOY et YAROSHEVSKIY (1976).

		masse totale du réservoir (10^{24} g)	masse de carbone dans le réservoir (10^{20} g)		proportion de carbone dans le réservoir (%)	
			Cm	Co	Cm	Co
croûte continentale	sédiments carbonatés	0,417	378	2,57	9,1	0,06
	sédiments non carbonatés	–	–	–	–	–
	roches endogènes	20,12	300	65	0,15	0,03
croûte océanique	sédiments carbonatés	0,178	160,4	1,7	9,0	0,10
	sédiments non carbonatés	–	–	–	–	–
	roches endogènes	5,9	100	21	0,17	0,03
total croûte terrestre	sédiments carbonatés	0,595	538	4,27	9,0	0,06
	sédiments non carbonatés	1,8	266	143	1,4	0,8
	sous-total sédiments	2,395	804	147,27	3,3	0,6
	roches endogènes	26,02	400	86	0,15	0,03
	total	28,595	1204	233,27	0,42	0,08

b) Le manteau supérieur

Le manteau supérieur constitue la partie inférieure de la lithosphère et le calcul de son volume reste très imprécis. JAVOY *et al.* (1982), dans une modélisation géochimique des échanges de carbone entre manteau supérieur et croûte terrestre, estiment la masse de carbone inorganique dans le manteau supérieur à environ 4000.10^{20} g (tabl. 1).

c) Les combustibles fossiles

Dans le cycle actuel du carbone, les combustibles fossiles constituent un réservoir à part car ils sont la source principale de l'augmentation de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère. La taille de ce réservoir,

comprenant les charbons au sens large, le pétrole et le gaz, est estimée entre 3700 et 4200 GtC (ROTTY et MASTER, 1985), ce qui est extrêmement faible comparé aux autres réservoirs de la lithosphère.

B - LES FLUX ENTRE RÉSERVOIRS

Dans ce second paragraphe, nous allons compléter la vision du cycle biogéochimique global actuel du carbone, ébauchée dans la description des différents réservoirs, en faisant l'inventaire des connexions (ou des flux) entre ces réservoirs.

1. Les échanges océans-atmosphère

Ces échanges sont contrôlés par la différence de pression partielle de CO_2 ($p\text{CO}_2$) entre l'atmosphère et les eaux de surface des océans. La $p\text{CO}_2$ dans les eaux océaniques est grossièrement à l'équilibre avec l'atmosphère dans les premiers mètres puis augmente progressivement jusque vers la profondeur de 1000 m où elle se stabilise (BAES *et al.*, 1985 ; OLSON *et al.*, 1985 ; TAKAHASHI *et al.*, 1983). Le cycle du carbone océanique, et donc la $p\text{CO}_2$, est fortement influencé par l'activité biologique concentrée dans les premières dizaines de mètres d'eau, ainsi que par les circulations océaniques (TAKAHASHI *et al.*, 1983 ; BAES *et al.*, 1985 ; OLSON *et al.*, 1985 ; WATSON *et al.*, 1990 ; FALKOWSKI et WILSON, 1992). Cette activité biologique abaisse la $p\text{CO}_2$ dans ces eaux de surface, provoquant le "pompage" de CO_2 atmosphérique jusqu'au rétablissement de l'équilibre. Inversement, une remontée d'eau profonde de $p\text{CO}_2$ plus forte que celle de l'atmosphère provoque un dégazage de CO_2 vers l'atmosphère. Très schématiquement, les zones océaniques équatoriales sont des sources de CO_2 pour l'atmosphère à cause des phénomènes d'upwelling, alors que les zones septentrionales, où des phénomènes de downwelling sont observés, sont des puits de CO_2 (BAES *et al.*, 1985). La figure 2 décrit les fluctuations spatiales des échanges atmosphère-océans. On remarque que l'Atlantique nord est un puits important de CO_2 tout au long de l'année (BROECKER *et al.*, 1979 ; ETCHETO et MERLIVAT, 1988 ; TANS *et al.*, 1990), alors que le Pacifique nord est un puits en hiver et une source en été, avec une moyenne annuelle proche de zéro (TANS *et al.*, 1990). Un autre puits important de CO_2 se situe sous les latitudes 15 à 50° S pour tous les océans (ETCHETO et MERLIVAT, 1988). La figure 2 montre que ce puits océanique de l'hémisphère Sud est deux fois plus important pendant l'hiver austral. En moyenne, on estime actuellement que l'océan mondial absorbe annuellement environ 2 GtC (WATSON *et al.*, 1990 ; tabl. 1). Ce chiffre varie de 1,7 à 2,8 GtC pour la période 1980-1989, selon les auteurs et les méthodes d'estimation utilisées (SARMIENTO et SUNDQUIST, 1992).

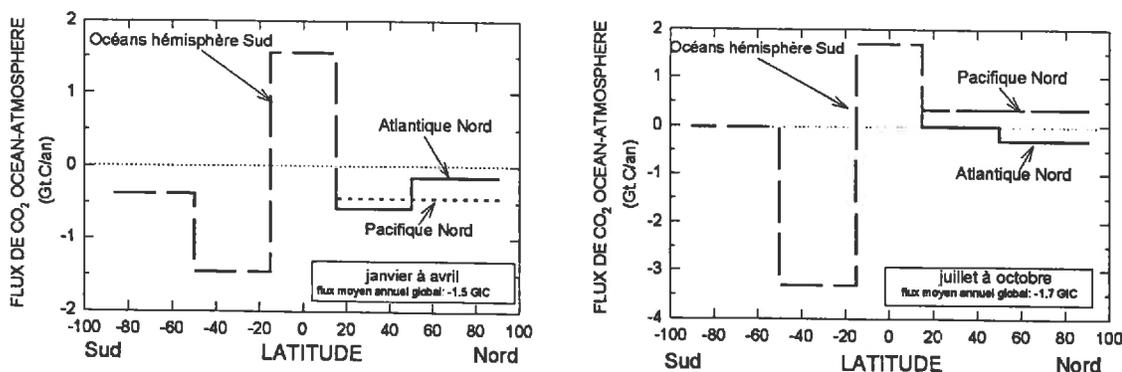


Fig.2 - Distribution latitudinale des flux de CO_2 échangés entre l'océan et l'atmosphère en hiver et en été (d'après TANS *et al.*, 1990).

2. Les échanges biosphère-atmosphère

Rappelons que le réservoir biosphère, au sens où nous l'entendons dans cette étude, comprend à la fois la biomasse terrestre (la végétation) et les sols. Les échanges entre l'atmosphère et la biosphère sont presque exclusivement contrôlés par l'activité biologique. Les végétaux utilisent l'énergie du rayonnement solaire pour réduire le CO₂ atmosphérique en carbone organique (glucose) par le processus de photosynthèse. La respiration des végétaux ou respiration autotrophique (R_a) est le phénomène inverse de la photosynthèse et consiste à oxyder le carbone organique. La dégradation de la matière organique a lieu également dans les sols, essentiellement par l'intermédiaire de la respiration des micro-organismes encore appelée respiration hétérotrophique (R_h).

a) Bilan des échanges atmosphère-végétation

Selon HOUGHTON *et al.* (1985), la production primaire brute (P_b), c'est-à-dire le flux de CO₂ atmosphérique consommé par photosynthèse, est comprise entre 90 et 120 GtC/an (tabl. 1). La production primaire nette (P_n) est la différence entre la production primaire brute (P_b) et le flux de CO₂ libéré par respiration des plantes, ou respiration autotrophique (R_a). La production primaire nette (P_n) est estimée entre 50 et 60 GtC/an par HOUGHTON *et al.* (1985) (tabl. 1) qui s'appuient sur les résultats de différents auteurs (48,3-52,9 GtC/an selon WHITTAKER et LIKENS, 1975 ; 59,9 GtC/an d'après AJTAY *et al.*, 1979 ; 56,7-62,1 GtC/an pour ESSER *et al.*, 1982). Dès lors, le bilan du réservoir végétation peut être mis en équation comme suit :

$$\Delta V = P_n - P_1 \quad (1)$$

où ΔV correspond à la variation du stock de carbone accumulé dans le réservoir végétation et P₁ est la production de litière, c'est-à-dire le flux de carbone entre la végétation et le sol (fig. 1). Ainsi, en région tempérée, P_n est supérieur à P₁ au printemps et ΔV , qui est positif, correspond à l'accroissement de la biomasse végétale. Inversement, à l'automne P_n devient inférieur à P₁ et ΔV , qui devient négatif, correspond à la perte de biomasse végétale par production de litière. En moyenne, sur une année, si le réservoir végétation est à l'équilibre, alors ΔV est nul et la production de litière (P₁) est équivalente à la production primaire nette (P_n). Pourtant, la plupart des estimations de production de litière sont généralement de l'ordre de 45 à 50 GtC/an (AJTAY *et al.*, 1979 ; HOUGHTON *et al.*, 1985), ce qui est inférieur aux valeurs de production primaire nette (P_n) couramment admises (50 à 60 GtC). Il semble cependant hasardeux d'en déduire un accroissement de la taille du réservoir végétation, car les estimations sont encore beaucoup trop imprécises et certains flux de sortie du réservoir végétation, comme les feux de forêt ou la consommation des herbivores, ne sont pas comptabilisés dans le bilan (AJTAY *et al.*, 1979 ; HOUGHTON *et al.*, 1985).

b) Respiration des sols

L'équation bilan des flux d'entrée et de sortie du réservoir sol peut s'écrire comme suit :

$$\Delta S = P_1 - R_h - E - F \quad (2)$$

où ΔS correspond à la variation de stock de carbone dans les sols, R_h est le flux de carbone dégazé vers l'atmosphère par la respiration hétérotrophique, E est le flux de carbone exporté par l'érosion mécanique et chimique, F est le flux de carbone fossilisé. Dans l'hypothèse d'un réservoir à l'équilibre ($\Delta S=0$) on peut écrire :

$$R_h = P_1 - E - F \quad (3)$$

F correspond à l'accumulation de combustibles fossiles, et on peut le considérer comme nul à l'heure actuelle. P₁ est compris entre 50 et 60 GtC/an (dans l'hypothèse d'un réservoir végétation à l'équilibre dans les conditions naturelles) ; E est évalué à 0,55 GtC/an (voir plus loin dans ce chapitre, tabl. 4). La respiration des sols (R_h) varie alors entre 49,45 et 59,45 GtC/an (tabl. 1).

c) Le flux net biosphère-atmosphère

Dans des conditions naturelles et pour un cycle de végétation, on considère que les différents écosystèmes sont à l'équilibre ; le bilan des échanges biosphère-atmosphère est alors réduit à zéro. A l'heure actuelle, la biosphère est fortement perturbée par les activités anthropiques, notamment par la déforestation en milieu tropical. Celle-ci est essentiellement limitée, depuis quelques dizaines d'années, aux régions tropicales-équatoriales (WHITTAKER et LIKENS, 1975 ; AJTAY *et al.*, 1979 ; WOODWELL *et al.*, 1983 ; DETTWILLER et HALL, 1988 ; CRUTZEN et ANDREAE, 1990 ; HOUGHTON, 1991). Il est admis que les écosystèmes des régions tempérées et boréales sont, aujourd'hui, grossièrement à l'équilibre et que la perte de carbone générée par l'exploitation actuelle des forêts y est compensée par l'avancée des surfaces forestières sur les terres agricoles abandonnées dans certaines régions (DETTWILLER et HALL, 1988 ; HOUGHTON, 1991). Par contre, l'intense déforestation observée dans les forêts tropicales aurait rejeté de 0,4 à 2,5 Gt de carbone en 1980 (DETTWILLER et HALL, 1988 ; HOUGHTON, 1991). En moyenne, sur la période 1980-1989, le flux de CO₂ rejeté dans l'atmosphère par déforestation est de 1 à 2,7 GtC/an (tabl. 1). Une récente estimation montre que la destruction des forêts tropicales est en constante augmentation (MYERS, 1991) et le flux de carbone ainsi rejeté en 1989 serait de l'ordre de 1,5 à 3,0 GtC (HOUGHTON, 1991).

3. Rejets anthropiques de CO₂ dans l'atmosphère

A l'échelle globale, les rejets de CO₂ dans l'atmosphère ne cessent d'augmenter depuis le milieu du XIXe siècle au rythme de 4% par an en moyenne, excepté pendant les deux guerres mondiales et durant la crise économique des années 30 (ROTTY, 1983 ; MARLAND et ROTTY, 1984 ; ROTTY et MASTER, 1985 ; WATSON *et al.*, 1990). Suite à la crise pétrolière de 1973, cet accroissement tombe à 2% puis se stabilise même au début des années 80 pour augmenter de nouveau à partir de 1984 (fig. 3). En 1990, les émissions de CO₂ dans l'atmosphère dépassent les 6 GtC (fig. 3, d'après les données du CDIAC "Carbon Dioxide Information Analysis Center", sous la direction scientifique de G. Marland et T. A. Boden). L'estimation de ces rejets anthropiques prend en compte le CO₂ émis par la combustion de l'énergie fossile, l'activité des cimenteries et les torchères des terminaux pétroliers. L'activité industrielle étant en majeure partie le fait des nations de l'hémisphère Nord, plus de 80% des émissions de CO₂ dans l'atmosphère sont observées entre 30° et 60° de latitude Nord (pour l'année 1979, d'après ROTTY, 1983).

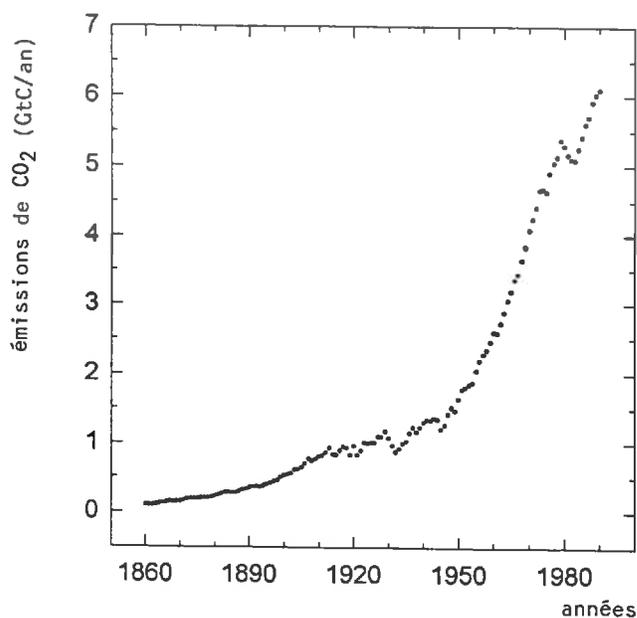


Fig.3 - Evolution à l'échelle globale des rejets anthropiques de CO₂ dans l'atmosphère depuis 1860 (combustion de l'énergie fossile + production de ciment + torchères), d'après les données distribuées par le CDIAC (sous la responsabilité scientifique de G. Marland et T.A. Boden).

4. Les apports fluviaux aux océans

Comme on peut le voir dans le tableau 1 et sur la figure 1, on peut distinguer quatre flux différents dans les apports de carbone par les fleuves aux océans : le carbone organique dissous (COD), le carbone organique particulaire (COP), le carbone inorganique dissous (CID) et le carbone inorganique particulaire provenant des roches carbonatées (CIP). Le CID peut être décomposé en deux flux secondaires : le carbone issu de la dissolution du CO₂ du système atmosphère/biosphère (CID_{atm}) et le carbone inorganique dissous issu de la dissolution des minéraux carbonatés (CID_{carb}). On distingue également deux sources dans le COP : le carbone organique provenant de l'érosion mécanique des sols (COP_{sols}) et le carbone organique provenant de l'érosion mécanique des roches (COP_{litho}). Tous ces flux ont pour origine l'érosion chimique ou mécanique des réservoirs continentaux (végétation, sols et lithosphère). Ces flux sont généralement estimés en extrapolant les flux moyens calculés à l'exutoire des principaux fleuves (produit de la concentration par le débit) à l'ensemble des surfaces continentales exoréiques. Le carbone inorganique dissous (CID_{atm} + CID_{carb}) est estimé d'après la concentration en ions bicarbonates dissous dans les eaux et le débit correspondant. Cependant, seul le flux total peut être directement estimé de cette façon ; la proportion de chacun des deux flux (CID_{atm} et CID_{carb}) peut alors être déterminée pour l'ensemble du globe à partir des pourcentages de roches carbonatées affleurant à la surface des continents (MEYBECK, 1987) ou bien en évaluant la provenance (roches carbonatées ou roches silicatées) des flux de cations qui équilibrent les ions bicarbonates dans les eaux de drainage (HOLLAND, 1978 ; BERNER *et al.*, 1983). Différentes estimations sont présentées dans le tableau 4 pour chacun des flux de carbone exporté par les fleuves. Le flux total de carbone apporté aux océans est d'environ 0,9 GtC/an dont 0,4 sous forme inorganique dissoute, 0,2 sous forme organique dissoute et 0,3 sous forme inorganique et organique particulaire. Enfin, le flux de carbone exporté par les fleuves correspond à un transfert d'environ 0,55 GtC/an de la biosphère vers les océans et de 0,37 GtC/an de la lithosphère vers les océans.

Tableau 4 – Principales estimations des flux de carbone exportés par les fleuves mondiaux vers les océans (GtC/an).

	COD	COP _{sols}	COP _{litho}	COT	CID _{atm}	CID _{carb}	CID	CIP	pertes biosphère- atmosphère	pertes lithosphère	apport total aux océans
Kempe (1979)	0,123	0,066	-	0,189	-	-	0,445	0,197	0,534	0,297	0,831
Holland (1978)	-	-	-	-	0,438	0,168	0,606	-	-	-	-
Berner <i>et al.</i> (1983)	-	-	-	-	0,279	0,141	0,420	-	-	-	-
Meybeck (1993)	0,198	0,094	0,078	0,370	0,255	0,126	0,381	0,170	0,547	0,374	0,921
Probst (1992)	-	-	-	-	0,304	0,092	0,392	-	-	-	-
Degens <i>et al.</i> (1991)	-	-	-	0,334	-	-	0,407	-	-	-	-
Ludwig (en prép.)	0,235	0,174	-	0,409	-	-	-	-	-	-	-

COD carbone organique dissous, COP carbone organique particulaire, COT carbone organique total (COD+COP), CID_{atm} carbone inorganique dissous provenant du réservoir sol-atmosphère, CID_{carb} carbone inorganique dissous provenant des minéraux carbonatés, CID carbone inorganique dissous total, CIP carbone inorganique particulaire.

Il est difficile de différencier dans les fleuves la part de COD et de COP provenant de la lithosphère, et peu d'estimations existent à ce jour. En effet, mis à part les combustibles fossiles dont les affleurements restent extrêmement limités, la matière organique ne constitue pas une roche à part entière. Ainsi, le carbone organique constitue en moyenne 0,6 % de la masse totale des roches sédimentaires et 0,08 % de la masse totale des roches de la croûte terrestre (tabl. 4). Récemment MEYBECK (1993) évalue le flux global de carbone organique particulaire (COP) provenant de l'érosion mécanique des roches à 0,078 GtC/an, soit 45 % du COP total. Cette première estimation est basée sur des données encore peu nombreuses et doit être considérée avec prudence. Elle montre cependant que l'apport de l'érosion des roches sédimentaires au flux de COP n'est peut-être pas négligeable et que les futurs bilans d'exportation de carbone organique par les fleuves devront tenter de l'estimer précisément.

La distribution spatiale des différents flux de carbone exporté par les fleuves est mal connue. MEYBECK (1979) tente de faire la cartographie mondiale des transports fluviaux de chaque élément majeur en solution,

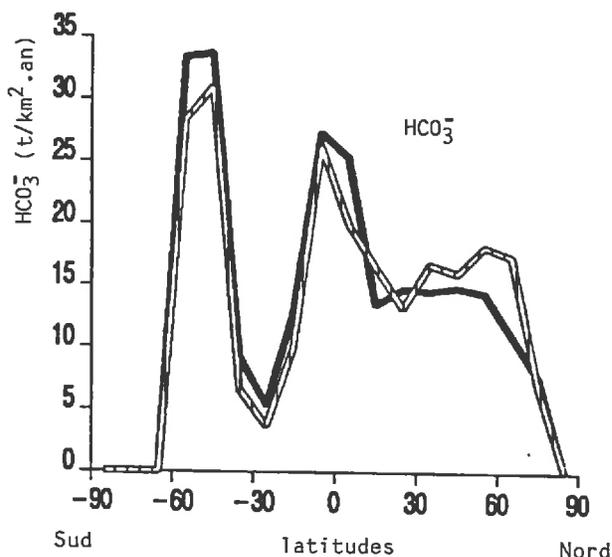


Fig.4 – Distribution latitudinale des transferts de bicarbonates des continents vers les océans (PROBST *et al.*, 1992a). Courbe hachurée : valeurs calculées par PROBST (1992) à partir des données de MEYBECK (1979) ; courbe pleine : valeurs simulées par PROBST (1992) à partir de l'équation (4).

par régions morphoclimatiques. PROBST (1992) et PROBST *et al.* (1992a) calculent le flux spécifique de bicarbonates exportés en solution par les fleuves par tranche de latitudes (fig. 4), en déterminant une relation entre les flux de bicarbonates transportés en solution par les grands fleuves mondiaux ($F_{HCO_3^-}$ en t/km².an) et des paramètres environnementaux tels que, par ordre d'importance, l'intensité du drainage (D en mm/an), l'intensité culturale (Ic en %) et la pente des terrains (Sl en %). Cette relation est définie par l'équation suivante :

$$\ln(F_{HCO_3^-}) = 0,714 \times \ln(D) + 0,022 \times Ic + 0,047 \times Sl - 1,933 \quad (4)$$

L'équation (4) montre la forte influence du drainage sur $F_{HCO_3^-}$. L'influence de l'intensité culturale et de la pente semble peu crédible et leur présence dans l'équation (4) est probablement causée par la corrélation de ces deux facteurs avec la proportion des roches carbonatées (PROBST *et al.*, 1992a). Les résultats obtenus à partir de ce modèle montrent que les flux de bicarbonates sont les plus forts au niveau des zones équatoriales et tempérées, là où le drainage est le plus intense (fig. 4).

En ce qui concerne les variations spatiales des flux de carbone organique exporté vers les océans, on peut se reporter aux travaux de ESSER et KOHLMAIER (1991). Ceux-ci calculent les relations entre les flux de carbone organique dissous (COD) et particulaire (COP) exportés par les fleuves et l'intensité du drainage. Ces relations sont ensuite utilisées pour construire les cartes mondiales des exportations de COD et de COP, qui montrent également que ces flux sont très importants dans les zones tropicales et équatoriales.

5. Les flux d'entrée et de sortie de la lithosphère

La lithosphère est un gigantesque réservoir de carbone dont le principal flux d'entrée est la sédimentation de matière organique et de minéraux carbonatés. En ce qui concerne les flux de sortie, deux flux majeurs sont recensés : l'érosion chimique et mécanique des roches, que nous avons décrite dans le paragraphe précédent, et le rejet de CO₂ dans l'atmosphère ou dans les océans par le volcanisme.

a) Les apports de carbone par sédimentation

La méthode la plus couramment utilisée pour estimer les taux de sédimentation dans les océans consiste à déterminer la quantité de carbone, sous forme organique et inorganique, déposée par unité de surface et pour une période donnée, sur le fond des océans, d'après des données de forages et de sondages sismiques dans

les sédiments de la croûte océanique. HOWELL et MURRAY (1986) estiment de cette façon le flux de carbone inorganique sédimenté à environ $0,29 \text{ km}^3/\text{an}$ de CaCO_3 en moyenne pour les 55 derniers millions d'années, soit $0,1 \text{ GtC}/\text{an}$ (avec une densité de $2,72 \text{ g}/\text{cm}^3$ pour CaCO_3 ; HAY, 1985). KEMPE (1979) obtient par la même méthode un résultat très similaire ($0,09 \text{ GtC}/\text{an}$) ; par contre HAY (1985) calcule un taux moyen global d'accumulation de CO_2 sous forme de sédiments océaniques équivalent à $0,52 \text{ GtC}/\text{an}$ pour le Pliocène (-2 à -7 millions d'années). Par ailleurs, KEMPE (1979) ainsi que BERNER *et al.* (1983) montrent que, si la lithosphère est à l'équilibre, la totalité des apports fluviaux de calcium aux océans est compensée par la précipitation et la sédimentation d'une quantité équivalente de CaCO_3 ; ils estiment alors le flux de carbone inorganique sédimenté correspondant de $0,17 \text{ GtC}/\text{an}$ (KEMPE, 1979) à $0,21 \text{ GtC}/\text{an}$ (BERNER *et al.*, 1983).

En ce qui concerne la sédimentation de la matière organique, les estimations sont moins nombreuses. Il semble cependant que ce flux soit relativement faible. GARRELS et PERRY (1974) évaluent la sédimentation de carbone organique à $0,03 \text{ GtC}/\text{an}$, en considérant un taux de sédimentation de $6,1 \text{ Gt}/\text{an}$ de matière contenant en moyenne $0,5 \%$ de carbone organique. BERNER (1982) établit une nouvelle estimation à partir de la composition en carbone organique des sédiments déposés dans les deltas des grands fleuves mondiaux, et propose un taux de sédimentation de $0,126 \text{ GtC}/\text{an}$. KEMPE (1979) souligne l'importance de l'activité biologique dans la sédimentation de carbone organique dans les océans et montre que celle-ci pourrait aller jusqu'à environ $0,4 \text{ GtC}/\text{an}$. Dans le bilan du tableau 1 nous retiendrons la valeur moyenne de $0,08 \text{ GtC}/\text{an}$.

b) *Le volcanisme*

Le volcanisme et les processus qui y sont associés (métamorphisme, subduction) constituent une perte de carbone pour la lithosphère et une source pour l'atmosphère (volcanisme aérien) et pour l'océan (volcanisme sous-marin). Ces flux sont très mal connus car difficiles à mesurer à grande échelle. Le problème majeur est d'évaluer l'importance du volcanisme sous-marin et des échanges de carbone entre l'océan et la croûte océanique par hydrothermalisme. En effet, si l'intense activité volcanique sous-marine rejette probablement une importante quantité de CO_2 (LEAVITT, 1982 ; SIGURDSON, 1990 ; WILLIAMS *et al.*, 1992), les circulations hydrothermales, directement induites par l'activité volcanique des rides médio-océaniques, pompent du CO_2 dans l'océan par précipitation de CaCO_3 dans les roches basaltiques de la croûte océanique (BERNER *et al.*, 1983 ; STAUDIGEL *et al.*, 1989). Récemment, STAUDIGEL *et al.* (1989) ont montré, d'après une étude géochimique des basaltes de deux forages de la croûte océanique, que la quantité de CO_2 pompée par altération hydrothermale des basaltes est supérieure à celle dégazée lors de la mise en place des basaltes. Le flux net de CO_2 de l'océan vers les basaltes serait alors compris entre $0,027 \text{ GtC}/\text{an}$ et $0,035 \text{ GtC}/\text{an}$ (STAUDIGEL *et al.*, 1989). BERNER (1991) remarque cependant que l'étude de STAUDIGEL *et al.* (1989) est encore trop localisée pour être étendue à l'échelle globale. Le CO_2 dégazé lors de la mise en place du plancher océanique provient du manteau supérieur. Ce dernier étant à l'équilibre (JAVOY *et al.*, 1982), une quantité équivalente de CO_2 y retourne par subduction de la croûte océanique où le CO_2 est présent sous forme de CaCO_3 dans les sédiments et les basaltes altérés. On considèrera qu'à long terme seul le volcanisme aérien rejette du CO_2 dans l'atmosphère. Ce flux est estimé par WILLIAMS *et al.* (1992) à $0,065 \text{ GtC}/\text{an}$, ce qui est tout à fait similaire à l'estimation ($0,07 \text{ GtC}/\text{an}$) de BERNER *et al.* (1983).

c) *Bilan des entrées/sorties de la croûte terrestre*

La sédimentation de carbone inorganique est comprise entre $0,2$ et $0,5 \text{ GtC}/\text{an}$, ce qui, dans l'hypothèse d'un réservoir à l'équilibre, est tout à fait cohérent avec les flux de sortie (érosion chimique et mécanique) qui s'élèvent à $0,32 \text{ GtC}/\text{an}$ (tabl. 1). En ce qui concerne le réservoir de carbone organique, on peut estimer également que celui-ci est à l'équilibre. Dès lors, le flux de sortie est équivalent au flux d'entrée (sédimentation de carbone organique) estimé par BERNER (1991) à $0,126 \text{ GtC}/\text{an}$ (tabl. 1).

6. Les temps de résidence

Pour chaque réservoir, nous avons estimé le temps de résidence du carbone en fonction des flux de sortie (tabl. 1), en considérant que les réservoirs sont à l'équilibre (flux de sortie = flux d'entrée). Ces temps de résidence témoignent de la duplicité du cycle biogéochimique global du carbone. Les réservoirs de surface, tels que l'atmosphère, la biosphère et les océans, sont de petite taille et le carbone est alors rapidement recyclé en quelques centaines d'années au maximum. Les réservoirs profonds, ou réservoirs géologiques, ont une taille gigantesque et comportent des flux de sortie très limités, ce qui a pour conséquence des temps de résidence de l'ordre de 350 à 400 millions d'années. C'est pourquoi les transferts de carbone entre les différents réservoirs doivent être considérés à différentes échelles de temps, de l'ordre du million d'années pour les flux concernant les réservoirs géologiques, à quelques milliers voire quelques centaines d'années pour les flux concernant les réservoirs de surface. On remarquera alors que l'érosion continentale est à l'interface de ces deux grands types de réservoirs, avec des flux d'importance moyenne. Ainsi, l'érosion continentale recycle la totalité du stock de carbone dans les sols en moins de 2500 ans, ce qui en fait un paramètre important pour le cycle du carbone à moyen terme.

7. Le problème du "carbone manquant"

Le tableau 1 présente le bilan des entrées/sorties de chaque réservoir. Si les flux sont estimés avec suffisamment de précision, on peut alors déterminer si la taille du réservoir augmente ou diminue.

Le bilan de l'atmosphère est très nettement positif (tabl. 1). Considérant la biosphère à l'équilibre, les flux de CO₂ respirés par la végétation et le sol sont compensés par le flux absorbé par photosynthèse (HOUGHTON *et al.*, 1985). Cependant, pour la période 1980–1989, la déforestation et la combustion de l'énergie fossile rejettent respectivement 1,0 à 2,7 GtC/an (d'après HOUGHTON, 1991) et 5,4 à 6,6 GtC/an (WATSON *et al.*, 1990) dans l'atmosphère. Cet important flux d'entrée n'est que partiellement absorbé par les océans (1,7 à 2,8 GtC/an d'après SARMIENTO et SUNDQUIST, 1992). Le bilan des entrées/sorties du réservoir atmosphère est donc de +4,7 à +5,3 GtC/an (tabl. 1) en faveur d'un accroissement de la concentration en CO₂ dans l'atmosphère. Or, d'après les mesures des teneurs en CO₂ de l'atmosphère, cet accroissement n'est que de 3,4 GtC/an pour la décennie 1980–1989 (WATSON *et al.*, 1990). Une quantité importante de carbone (1,3 à 1,9 GtC/an) dénommée "missing carbon" semble donc avoir été retirée de l'atmosphère par un ou plusieurs processus non compris dans le bilan précédent : il manque un puits de CO₂. Les échanges biosphère-atmosphère et océans-atmosphère sont tour à tour évoqués pour prendre en compte le carbone manquant (SOLOMON *et al.*, 1985 ; DETTWILLER et HALL, 1988 ; WATSON *et al.*, 1990 ; TANS *et al.*, 1990, FALKOWSKI et WILSON, 1992). Cependant, le bilan des entrées/sorties du réservoir biosphère (végétation + sols) reste imprécis, et ce dernier semble le mieux placé aujourd'hui pour fixer le carbone manquant. En outre, ce puits serait localisé dans l'hémisphère Nord de façon à pouvoir expliquer le faible gradient de la pCO₂ atmosphérique entre les deux hémisphères (la concentration en CO₂ dans l'atmosphère de l'hémisphère Nord est de 3 ppmv supérieure à celle de l'hémisphère Sud) alors que la majeure partie des rejets anthropiques sont localisés dans l'hémisphère Nord (WATSON *et al.*, 1990 ; TANS *et al.*, 1990).

C – LES VARIATIONS TEMPORELLES DE LA CONCENTRATION DE CO₂ DANS L'ATMOSPHÈRE ET LEURS CONSÉQUENCES

Le CO₂ étant un gaz à effet de serre, les variations de sa concentration dans l'atmosphère ont des conséquences climatiques. En retour, les variables climatiques sont parmi les plus influentes dans le cycle global du carbone, conduisant à modifier les flux d'entrée/sortie du réservoir atmosphère par effets rétroactifs. C'est la raison pour laquelle l'impact de l'accroissement de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère reste encore mal connu. Les paragraphes qui suivent sont consacrés à la description des variations saisonnières et interannuelles de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère, ainsi que des conséquences climatiques et des effets rétroactifs qui y sont liés.

1. Fluctuations saisonnières

La figure 5 montre les fluctuations de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère pour différentes stations de mesure à la surface du globe. On remarque des variations saisonnières liées au cycle rapide de la végétation qui, dans l'hémisphère Nord, pompe du CO₂ du printemps à l'automne puis le rejette en hiver (FRASER *et al.*, 1983 ; GAMMON *et al.*, 1985 ; LAMBERT, 1987 ; WATSON *et al.*, 1990). On observe la situation inverse dans l'hémisphère Sud puisque les saisons sont inversées. Cependant, l'amplitude entre le minimum de la fin de l'été et le maximum hivernal est nettement moins forte dans l'hémisphère Sud. Ceci s'explique généralement par le fait que, les surfaces continentales étant moins grandes dans l'hémisphère Sud, l'influence de la végétation est en partie cachée par les échanges atmosphère-océans et par les phénomènes de transports atmosphériques qui apportent du CO₂ depuis les latitudes plus septentrionales (PEARMAN *et al.*, 1983 ; FRASER *et al.*, 1983). Enfin, on a pu observer depuis 10 à 15 ans une augmentation de l'amplitude du cycle saisonnier dans l'hémisphère Nord (PEARMAN *et al.*, 1983 ; WATSON *et al.*, 1990), ce qui témoignerait d'une recrudescence de la productivité primaire nette de la végétation ou de la respiration des sols en hiver (GAMMON *et al.*, 1985 ; WATSON *et al.*, 1990).

2. Fluctuations interannuelles

La concentration de CO₂ dans l'atmosphère augmente exponentiellement depuis le milieu du siècle dernier où cette concentration était de 280 ppmv (fig. 6). Cet accroissement rapide et soudain ne semble pas induit par une variation naturelle du cycle du carbone, mais serait plutôt le résultat de l'activité humaine qui s'est rapidement développée au cours des derniers 150 ans. En effet, les paléoconcentrations de CO₂ atmosphérique enregistrées dans les archives glaciaires n'ont jamais dépassé les 300 ppmv au cours des 220 derniers milliers d'années (BARNOLA *et al.*, 1987 ; JOUZEL *et al.*, 1993) et leur taux d'accroissement n'a jamais dépassé plus de 10 ppmv pour 100 ans (WATSON *et al.*, 1990). De plus, l'évolution des concentrations de CO₂ suit assez bien l'augmentation des rejets anthropiques de CO₂ dans l'atmosphère.

Malgré l'influence de ces rejets sur la concentration en CO₂, des fluctuations naturelles interannuelles sont observées. On a pu ainsi remarquer que le phénomène ENSO (El Nino Southern Oscillation) avait affecté le cycle du carbone au cours de la période 1982-1983. En effet, dans les premiers mois de 1983, les concentrations de CO₂ dans l'atmosphère ont brusquement augmenté de 1 ppmv malgré une stabilisation

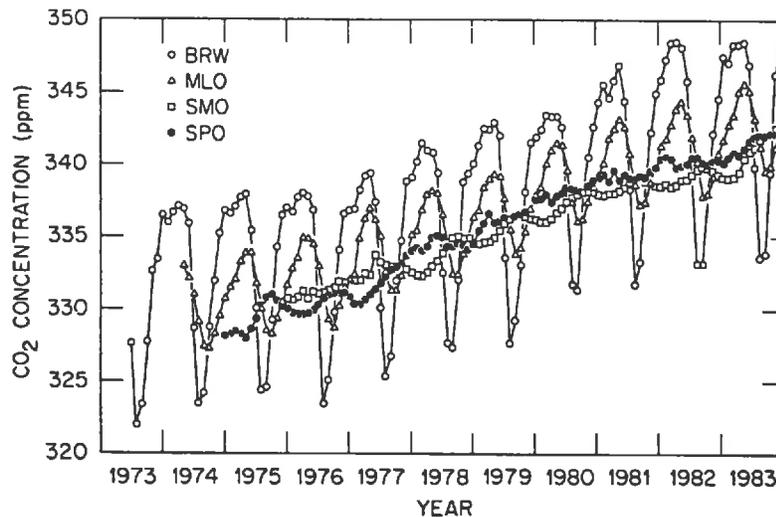


Fig.5 – Fluctuations de la concentration moyenne mensuelle de CO₂ dans l'atmosphère (période 1973-1983) pour quatre observatoires différents : Point Barrow (BRW, Alaska, 71° N 157° W), Mauna Loa (MLO, Hawaï, 20° N 156° W), îles Samoa (SMO, 14° S 171° W) et pôle Sud (SPO, 90° S 25° W) (GAMMON *et al.*, 1985).

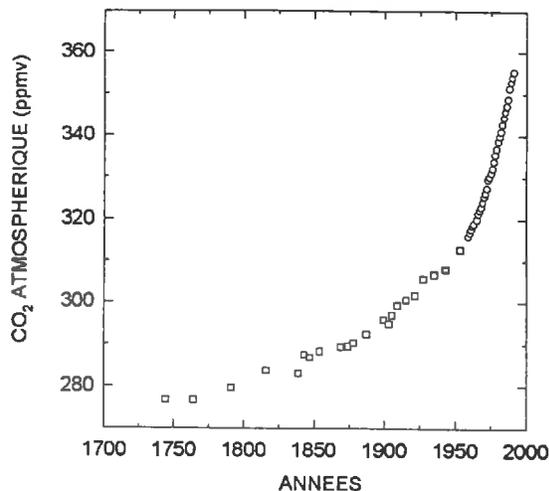


Fig.6 - Evolution de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère au cours des 250 dernières années. Les carrés représentent les valeurs issues du forage glaciaire de Stiple Station, Antarctique (FRIEDLI *et al.*, 1986). Les cercles représentent les mesures directes dans l'atmosphère à Mauna Loa (données du CDIAC).

des rejets anthropiques (fig. 3). Il semble que le cycle de la végétation, perturbé par les violents changements climatiques induits par le phénomène ENSO, en soit le principal responsable (GAMMON *et al.*, 1985 ; LAMBERT, 1987 ; WATSON *et al.*, 1990).

3. Conséquences

L'intérêt porté aujourd'hui au cycle biogéochimique global du carbone est en grande partie suscité par les conséquences climatiques liées à l'augmentation de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère. Le dioxyde de carbone fait partie des gaz à effet de serre et l'accroissement de sa concentration dans l'atmosphère doit théoriquement entraîner une augmentation de la température, avec de nombreuses conséquences sur le cycle de l'eau, la végétation ou le niveau des océans. En outre, les phénomènes climatiques ou autres, induits par l'augmentation de la pression de CO₂ atmosphérique, ont des effets rétroactifs sur le cycle du carbone.

a) Changements climatiques

Une hausse de la température moyenne du globe est observée depuis le début du siècle (FOLLAND *et al.*, 1990 ; KUO *et al.*, 1990) ; mais il est encore impossible de déterminer si cette hausse est effectivement induite par l'effet de serre ou bien si elle fait partie des fluctuations naturelles de la température que l'on a déjà pu enregistrer précisément au cours des derniers milliers d'années (FOLLAND *et al.*, 1990).

La température est étroitement liée au cycle de l'eau. Dans le récent rapport de l'IPCC, MITCHELL *et al.* (1990) montrent que tous les modèles climatiques globaux prédisent que le doublement de la concentration en CO₂ dans l'atmosphère serait accompagné d'un réchauffement global de la planète ainsi que d'une augmentation des précipitations. Cette humidité atmosphérique croissante serait essentiellement limitée aux zones tempérées et aux tropiques, et serait caractérisée par une augmentation de 10 à 20 % des précipitations moyennes entre 35 et 55°N (MITCHELL *et al.*, 1990 ; CUBASCH et CESS, 1990). En ce qui concerne le drainage, c'est-à-dire la différence entre précipitation et évapotranspiration, les résultats des modèles climatiques globaux sont encore controversés car l'évapotranspiration est difficile à calculer avec une précision suffisante (RIND *et al.*, 1992). Cependant, le drainage devrait augmenter pour les latitudes supérieures à 50°N (MANABE et WETHERALD, 1980 ; FOLLAND *et al.*, 1990). En outre, ces modèles ne prennent pas en compte l'effet direct du CO₂ sur la végétation souligné par IDSO et BRAZEL (1984) puis WIGLEY et JONES (1985). L'augmentation de CO₂ dans l'atmosphère agit en effet sur les stomates qui se ferment et diminuent ainsi l'évapotranspiration (WIGLEY et JONES, 1985). IDSO et BRAZEL (1984) montrent que, pour un doublement de la pression de CO₂ atmosphérique et sur cinq bassins versants du SW des Etats-Unis, le drainage augmente de 40 à 60 % si on prend en compte l'effet direct du CO₂, alors que sans effet direct il

aurait dû diminuer de 10 à 30 %, soit une différence totale de 50 à 90 %. WIGLEY et JONES (1985) proposent des résultats similaires, mais soulignent que d'autres conséquences des changements climatiques, comme l'accroissement de la température foliaire, les variations de la surface foliaire ou de la couverture végétale, ne sont pas prises en compte dans ces estimations. Le lien positif entre température et drainage, prédit par les modèles climatiques et par la prise en compte de l'effet direct du CO₂ sur l'évapotranspiration, est confirmé par les observations de PROBST et TARDY (1989) sur les fluctuations du débit des fleuves. En effet, ces auteurs observent une tendance à l'accroissement du débit annuel global au cours des 80 dernières années, en relation avec l'augmentation de la température annuelle globale.

b) *Les effets rétroactifs*

Nous proposons de faire un bref inventaire des principaux effets rétroactifs sur le cycle du carbone, générés directement ou indirectement par l'accroissement de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère.

Effets rétroactifs dans l'océan

Ces effets sont multiples et peuvent être positifs, entraînant une hausse de la pCO₂ atmosphérique, ou négatifs. D'après WATSON *et al.* (1990), on peut citer les deux plus importants :

- L'augmentation de la température de l'eau de mer perturbe les équilibres biogéochimiques et conduit à réduire l'absorption de CO₂ par l'océan.
- Les changements de la dynamique des océans (circulation océanique, upwelling), ainsi que les changements de la vitesse et de la direction des vents, ont un impact encore difficile à estimer sur le cycle océanique du carbone ainsi que sur les échanges océans-atmosphère (KELLOGG, 1983).

Effets rétroactifs dans la biosphère

En ce qui concerne la biosphère, on recense là aussi des effets rétroactifs négatifs aussi bien que positifs :

- Des concentrations élevées en CO₂ atmosphérique favorisent la croissance des plantes et donc la fixation de carbone par la végétation (ROGERS *et al.*, 1983).
- La respiration des végétaux et des micro-organismes, la dégradation de la matière organique des sols augmentent avec la température. Ce processus est censé libérer annuellement plus d'une Gt de carbone dans l'atmosphère (WATSON *et al.*, 1990 ; JENKINSON *et al.*, 1991).
- Les modifications dans la distribution géographique des types de végétation, s'ils sont rapides, peuvent induire un rejet de CO₂ (KELLOGG, 1983).
- L'érosion mécanique des sols est favorisée par l'augmentation du drainage et par la déforestation, entraînant alors un accroissement des transferts de carbone de la biosphère vers les océans.

Effets rétroactifs dans la lithosphère

Vu la modestie des flux de sortie de la lithosphère, les effets rétroactifs sont supposés avoir une action limitée à court et à moyen termes. On peut en retenir trois :

- L'érosion chimique des roches non carbonatées, consommatrice de CO₂ atmosphérique, est favorisée à la fois par la hausse des températures et par l'augmentation du drainage.
- L'érosion chimique des roches carbonatées est également favorisée par l'augmentation du drainage, mais est une fonction négative de la température.
- La hausse du niveau des océans entraînée par la fonte des calottes polaires diminue la surface des continents, limitant alors l'érosion chimique consommatrice de CO₂.

II – LE CYCLE DU CARBONE AU COURS DES TEMPS GÉOLOGIQUES

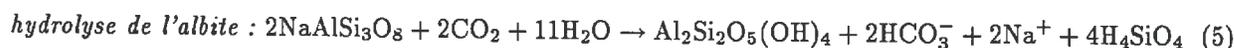
Nous venons de décrire le cycle biogéochimique du carbone tel qu'il est observé actuellement, avec des perturbations anthropogéniques dont l'influence sur la teneur en CO₂ de l'atmosphère dépasse celle des processus naturels. Dans l'optique de mieux comprendre les modifications actuelles du cycle du carbone, il

est important d'observer les fluctuations de ce cycle au cours des temps géologiques. Nous verrons alors que les processus géologiques y jouent un rôle primordial, contrastant avec la lenteur de leurs flux.

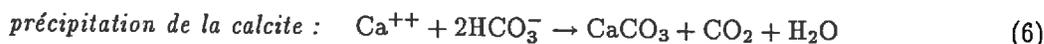
A – VARIATIONS DE LA CONCENTRATION DE CO₂ DANS L'ATMOSPHÈRE AU COURS DES 500 DERNIERS MILLIONS D'ANNÉES

1. Le cycle géochimique des carbonates-silicates : un effet rétroactif négatif

Des nombreux travaux sur le paléocycle du carbone il ressort que le cycle géochimique des carbonates-silicates est le phénomène majeur contrôlant la concentration de CO₂ dans l'atmosphère au cours des temps géologiques (CHAMBERLAIN, 1899 ; GARRELS et MACKENZIE, 1971 ; HOLLAND, 1978 ; WALKER *et al.*, 1981 ; BERNER *et al.*, 1983 ; BERNER et BARRON, 1984 ; TARDY, 1986 ; VOLK, 1987 ; KOSTER VAN GROOS, 1988 ; MARSHALL *et al.*, 1988 ; RAYMO *et al.*, 1988 ; BERNER, 1991, 1992 ; CALDEIRA et RAMPINO, 1991 ; RAYMO, 1991 ; CALDEIRA, 1992 ; FRANÇOIS et WALKER, 1992 ; FRANÇOIS *et al.*, 1993 ; RAYMO et RUDDIMAN, 1992). Le cycle géochimique des carbonates-silicates peut être résumé de la façon suivante : l'altération chimique des roches silicatées sur les continents, par l'action combinée de l'eau et du CO₂ en provenance de l'atmosphère, libère en solution des cations Ca⁺⁺ et Mg⁺⁺ ainsi que des anions bicarbonates. Ce processus peut être illustré par la réaction suivante :



Exportés vers les océans, les ions calcium ou magnésium réagissent avec les ions bicarbonates pour précipiter sous forme de minéraux carbonatés, selon par exemple la réaction suivante :



Ainsi, le carbone passe de l'atmosphère vers la lithosphère par l'action successive de l'altération chimique des silicates sur les continents et de la précipitation des carbonates dans les océans. C'est le moyen par lequel le CO₂ dégazé dans l'atmosphère par le volcanisme et le métamorphisme retourne dans la lithosphère. C'est aussi le processus rétroactif négatif par lequel l'effet de serre et la température sont contrôlés depuis le début de l'histoire de l'atmosphère terrestre (GARRELS et MACKENZIE, 1971 ; HOLLAND, 1978 ; WALKER *et al.*, 1981). Comme nous l'avons déjà vu, le drainage est positivement corrélé à la température de l'air, elle-même liée à la concentration de CO₂ dans l'atmosphère. Or l'augmentation de la température et du drainage favorisent l'altération chimique des silicates, qui pompe du CO₂ dans l'atmosphère et induit alors une diminution de l'effet de serre. Cet effet rétroactif négatif a été en tout premier lieu invoqué par CHAMBERLAIN (1899) pour expliquer les glaciations qui correspondraient aux périodes de forte érosion chimique des silicates, donc aux périodes de décroissance de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère. L'effet rétroactif du cycle géochimique des carbonates-silicates est influencé, directement ou indirectement, par de nombreux paramètres. Parmi ceux-ci, on recense de nombreux facteurs contrôlés par l'activité tectonique globale tels que le volcanisme, le métamorphisme, la dérive des continents, les orogènes, les variations du niveau des océans (HOLLAND, 1978 ; WALKER *et al.*, 1981 ; BERNER *et al.*, 1983 ; TARDY, 1986). Ainsi, TARDY *et al.* (1989) montrent que les fluctuations hydroclimatiques sont en grande partie fonction de la position des continents à la surface du globe. Il semble également que les orogènes, favorisant l'altération des silicates, pourraient être un facteur plus important que les fluctuations hydroclimatiques (CHAMBERLAIN, 1899 ; RAYMO *et al.*, 1988 ; RAYMO, 1991 ; FRANÇOIS *et al.*, 1993).

2. Le modèle BLAG (BERNER, LASAGA et GARRELS, 1983)

BERNER *et al.* (1983) proposent un modèle à cinq boîtes permettant de reconstituer les variations de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère au cours des 100 derniers millions d'années. Ce modèle, schématisé par la figure 7, est basé sur le cycle géochimique des carbonates-silicates. Ce modèle prend en compte

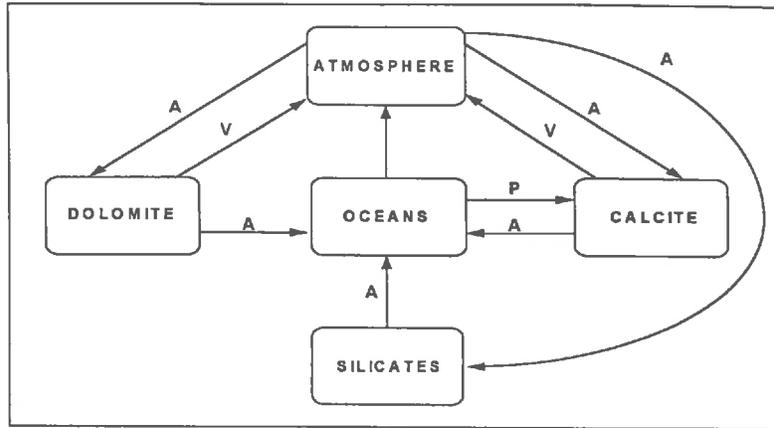


Fig.7 – Représentation schématique du modèle BLAG (d'après BERNER *et al.*, 1983). A- altération chimique, V- volcanisme et métamorphisme, P- précipitation.

l'altération chimique des continents (silicates, calcite et dolomite), la précipitation des carbonates dans les océans, le volcanisme et le métamorphisme et les échanges eau de mer/basaltes par activité hydrothermale. En outre, comme le montre la figure 7, BERNER *et al.* (1983) considèrent que la dolomite n'est plus formée depuis 100 millions d'années, et que les cations Mg^{++} en solution dans l'océan sont échangés contre des cations Ca^{++} dans les basaltes par l'hydrothermalisme.

Dans le modèle BLAG, au cours des 100 derniers millions d'années, les flux d'altération chimique sont une fonction linéaire de la masse de chaque réservoir lithosphérique (en considérant que la proportion de roche soumise à l'altération est proportionnelle à la masse du réservoir correspondant), de la surface des continents et du facteur $f(CO_2)$ qui intègre l'influence de la température et du drainage. $f(CO_2)$ est une fonction logarithmique du rapport entre la concentration de CO_2 dans l'atmosphère (à laquelle sont liés la température et le drainage) au temps t , et la concentration actuelle (préindustrielle). La figure 8, qui représente l'évolution de $f(CO_2)$ en fonction de la teneur en CO_2 atmosphérique, montre que l'évolution de l'effet rétroactif négatif n'est pas linéaire.

En ce qui concerne les interactions eau de mer/basalte et le volcanisme-métamorphisme, les flux correspondants (dégazage de CO_2 vers le système océans-atmosphère, libération de Ca^{++} et stockage de Mg^{++}) sont une fonction linéaire de l'expansion océanique. Le modèle de BERNER *et al.* (1983) calcule finalement l'évolution de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère et de la température correspondante. On observe une relativement bonne correspondance entre la température calculée par le modèle BLAG et la température déterminée à partir des données paléobotaniques, isotopiques ou même celle que nous avons calculée à partir des variations du niveau des océans (AMIOTTE SUCHET, 1989 ; PROBST, 1992) (fig. 9).

La complexité du cycle du carbone ainsi que le manque d'informations sur l'évolution des facteurs contrôlant les flux au cours des temps géologiques ont conduit les auteurs à certaines imprécisions et simplifications. Des modèles plus récents apportent des précisions supplémentaires sur les relations température - drainage - altération chimique et sur le taux d'expansion océanique et le dégazage de CO_2 (BERNER et LASAGA, 1984 ; VOLK, 1987 ; BERNER, 1991 ; CALDEIRA et RAMPINO, 1991 ; FRANÇOIS et WALKER ; 1992), sur les conditions de précipitation des carbonates dans les océans (VOLK, 1989 ; CALDEIRA, 1991 ; CALDEIRA et RAMPINO, 1991), ou encore sur la distribution latitudinale des continents (BERNER, 1991 ; WORSLEY et KIDDER, 1991). Cependant, comme le remarquent STAUDIGEL *et al.* (1989, 1990) pour le modèle BLAG, aucun des modèles ne tient compte de la précipitation de $CaCO_3$, directement induite par les circulations hydrothermales (donc par l'expansion océanique) et qui serait en mesure de compenser à elle seule le CO_2 dégazé au niveau des rides médio-océaniques.

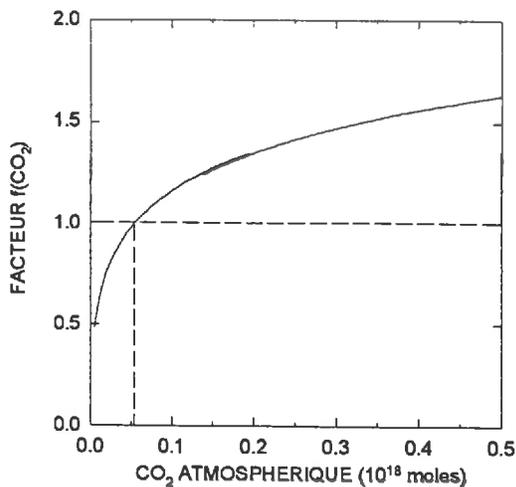


Fig.8 - Evolution du facteur $f(\text{CO}_2)$ contrôlant l'altération chimique des continents, en fonction de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère. Les pointillés représentent les valeurs actuelles.

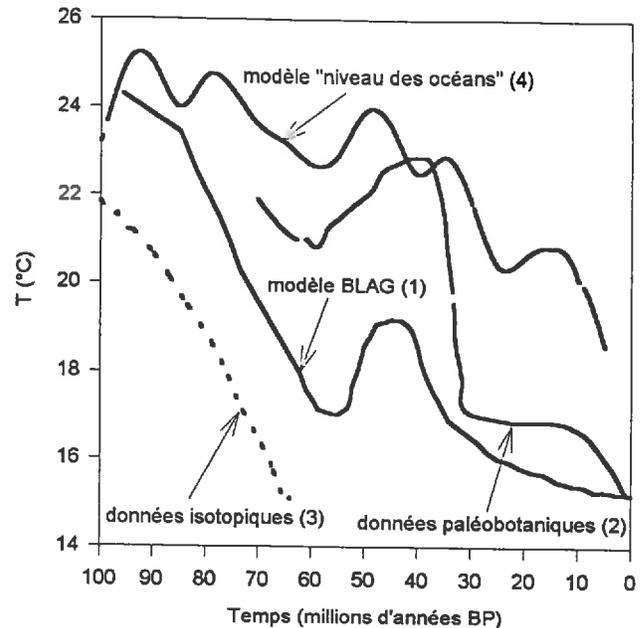
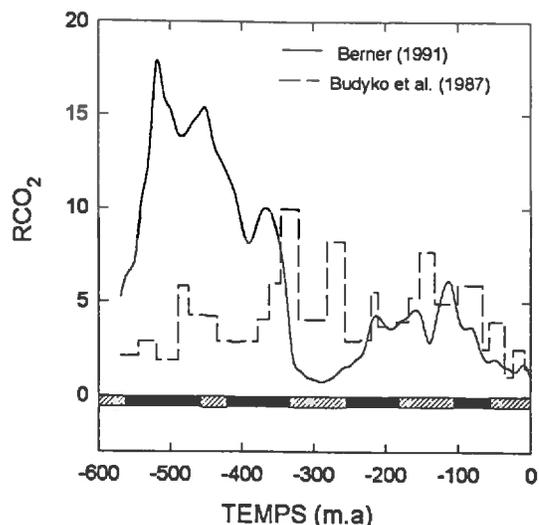


Fig.9 - Evolution de la température moyenne globale de l'air au cours des 100 derniers millions d'années (1) simulée par le modèle BLAG (BERNER et al. 1983) et comparaison avec des données de paléotempératures ; (2) estimation moyenne basée sur des données paléobotaniques de plantes terrestres au Japon, en Europe de l'Ouest et en Amérique du Nord, compilée par SAVIN (1977) ; (3) estimation moyenne basée sur des mesures de $\delta^{18}\text{O}$ de tests de foraminifères dans des sédiments créacés du Pacifique nord (35°N) compilées par SAVIN (1977) ; (4) température moyenne globale de l'air basée sur les variations du niveau moyen des océans (AMIOTTE SUCHET, 1989 ; PROBST, 1992).

3. Le modèle de BERNER (1991)

L'une des simplifications majeures des différents modèles que nous venons de décrire est de négliger l'influence de la biosphère dans le paléocycle du carbone alors qu'elle joue un rôle de premier plan dans le cycle actuel. Récemment, BERNER (1991) a proposé un modèle similaire au modèle BLAG mais en y ajoutant, outre des facteurs géologiques supplémentaires (importance de la distribution spatiale des continents, de l'élévation moyenne des continents, de l'expansion océanique et des conditions de précipitation des carbonates), l'influence de la végétation sur les taux d'érosion chimique. On peut ainsi recenser deux apports majeurs dans ce modèle : (1) l'altération chimique est contrôlée par un facteur supplémentaire ($f_e(t)$) qui est fonction du taux d'altération chimique estimé pour une couverture végétale dite "fortement altérante" composée d'angiospermes, du taux d'altération chimique pour une couverture végétale dite "faiblement altérante" composée de gymnospermes, et de la surface relative occupée par chacun des deux types de couverture végétale au cours des temps géologiques ; (2) le facteur $f(\text{CO}_2)$, exprimant l'effet de rétrocontrôle négatif de l'altération chimique sur le CO_2 atmosphérique (modèle BLAG, voir au paragraphe précédent), est enrichi d'un nouveau paramètre traduisant l'augmentation de la productivité primaire nette (donc de la $p\text{CO}_2$ dans les sols) qui favorise l'altération chimique lorsque la concentration de CO_2 dans l'atmosphère augmente. Le modèle de BERNER (1991) permet alors de calculer l'évolution de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère par rapport à la concentration actuelle au cours des temps phanérozoïques (fig. 10). On peut remarquer sur la figure 10 que les valeurs minimales de la concentration relative de CO_2 dans l'atmosphère correspondent aux principaux modes climatiques du Phanérozoïque définis par FRANKES et al. (1992) sur la base des indices de présence de calottes de glace, de données sédimentologiques, géochimiques et paléontologiques. En

Fig.10 – Variations relatives de la concentration en CO_2 dans l'atmosphère au cours des temps phanérozoïques d'après les modèles de BUDYKO *et al.* (1987) et BERNER (1991). RCO_2 est le rapport entre la concentration au temps t et la concentration actuelle de CO_2 dans l'atmosphère. Ces variations peuvent être comparées avec les grandes périodes de climats froids (barres horizontales hachurées) et de climats chauds (barres horizontales noires) définies par FRAKES *et al.* (1992) sur la base des indices de présence de calottes de glace, de données sédimentologiques, géochimiques et paléontologiques.



outre, la période chaude du Crétacé moyen (-100 millions d'années) est bien marquée sur la figure 11 par une forte concentration de CO_2 dans l'atmosphère. BERNER (1991) remarque cependant que la glaciation siluro-ordovicienne (-450 à -420 millions d'années) n'est pas mise en évidence par le modèle.

4. Le modèle de BUDYKO *et al.* (1987)

BUDYKO *et al.* (1987) présentent un modèle très simple, différent des modèles de type BLAG et qui permet de reconstituer les fluctuations du CO_2 atmosphérique au cours des temps phanérozoïques. Les auteurs considèrent que le réservoir atmosphère comporte un flux entrant constitué par le volcanisme et un flux sortant constitué par la sédimentation des carbonates. La quantité de CO_2 atmosphérique est considérée comme suffisamment petite pour que toute variation du flux entrant soit simultanément contrebalancée par le flux sortant à l'échelle des temps géologiques. Ainsi, une recrudescence de l'activité volcanique doit correspondre à un accroissement de la sédimentation carbonatée. Cette hypothèse est confortée par la relation positive observée entre la masse des sédiments carbonatés et celle des roches volcaniques au cours des temps géologiques (RONOV, 1980 ; BUDYKO *et al.*, 1987). Pour reconstituer les fluctuations de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère au cours du temps, BUDYKO *et al.* (1987) considèrent que la consommation de CO_2 atmosphérique est proportionnelle à la concentration de CO_2 dans l'atmosphère :

$$B = \beta \times M \quad (7)$$

Dans l'équation (7), B est le taux de sédimentation des roches carbonatées, M la quantité de carbone dans l'atmosphère, et β le rapport entre le taux de sédimentation actuel des roches carbonatées et la quantité actuelle de CO_2 atmosphérique. Cette relation correspond à l'effet rétroactif négatif déjà décrit dans les autres modèles mais exprimé ici de manière très simple. Les variations du taux de sédimentation des roches carbonatées au cours des temps phanérozoïques sont déterminées d'après les travaux de RONOV et son équipe (RONOV et YAROSHEVSKIY, 1976 ; RONOV *et al.*, 1980) sur les masses de sédiments déposées au cours de chaque période géologique. Utilisant ce taux de sédimentation et l'équation (7), BUDYKO *et al.* (1987) reconstituent les fluctuations de la concentration de CO_2 dans l'atmosphère depuis 570 millions d'années (fig. 10). Ce modèle comprend une lacune importante : dans le calcul du taux de sédimentation des roches carbonatées, BUDYKO *et al.* (1987) ne tiennent compte ni des sédiments actuellement sous le niveau des océans, ni des sédiments anciens enlevés par érosion (HAYS, 1985). En outre, les résultats de BUDYKO *et al.* (1987) sont sensiblement différents de ceux de BERNER (1991) (fig. 10), et ne sont pas en accord avec la succession des périodes froides et chaudes définie par FRAKES *et al.* (1992).

B - VARIATIONS DE LA CONCENTRATION DE CO₂ DANS L'ATMOSPHÈRE AU COURS DES 150 DERNIERS MILLIERS D'ANNÉES

1. Les archives glaciaires

L'analyse des bulles d'air contenues dans les carottes de glace issues de forages des calottes glaciaires permet de reconstituer l'histoire de notre atmosphère depuis 50 000 ans (NEFTEL *et al.*, 1988) et 220 000 ans (RAYNAUD et BARNOLA, 1985 ; BARNOLA *et al.*, 1987 ; JOUZEL *et al.*, 1993). La figure 11 représente les variations de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère et de la température de l'air depuis 160 000 ans, couvrant ainsi un cycle glaciaire-interglaciaire complet. Ces variations sont déterminées à partir des carottes de glace du forage de Vostok en Antarctique (BARNOLA *et al.*, 1987).

On observe une très bonne corrélation entre la concentration en CO₂ et la température de l'air au-dessus de l'Antarctique, confirmant l'impact climatique de l'effet de serre. Le problème est alors de savoir lequel de ces deux paramètres contrôle l'autre : est-ce la température qui provoque les variations de CO₂ atmosphérique ou bien est-ce l'inverse ? Il semble en fait que les changements de géométrie dans le système orbital terrestre amorcent les changements climatiques, qui modifieraient alors le cycle du carbone, lequel en retour amplifierait de façon importante les fluctuations climatiques (PISIAS et SCHACKELTON, 1984 ; GENTHON *et al.*, 1987 ; JOUZEL *et al.*, 1987 ; LORIUS *et al.*, 1990). La concentration de CO₂ varie entre 280 et 300 ppmv lors des périodes interglaciaires, puis retombe progressivement d'environ 100 ppmv au cours de la période glaciaire, accompagnant une chute de température de l'air de 12°C environ sur le continent Antarctique, pour remonter brusquement à la concentration de 280 ppmv correspondant à la période interglaciaire suivante. Ces variations de taille du réservoir atmosphère sont causées par des échanges rapides de carbone avec les autres réservoirs de surface que sont l'océan et la biosphère.

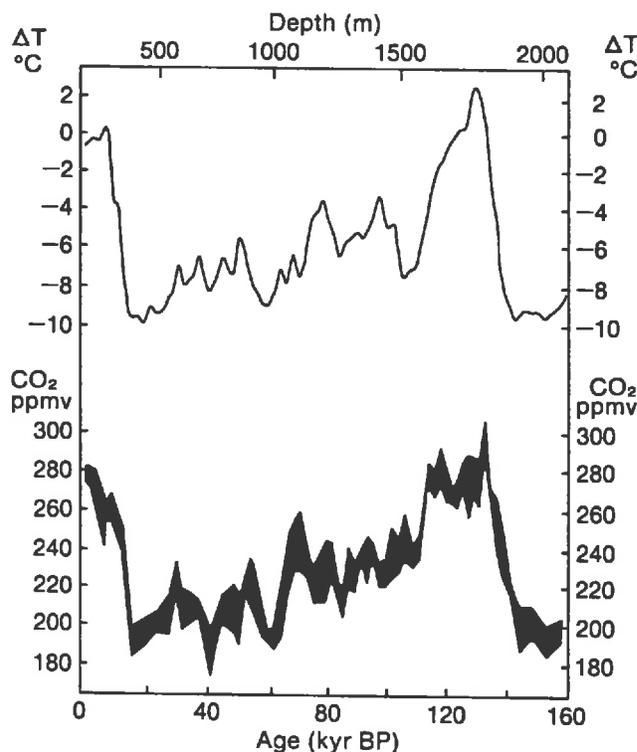


Fig.11 - Variations des concentrations de CO₂ dans l'atmosphère (CO₂) et de la température de l'air (ΔT) au cours des 160 derniers milliers d'années, enregistrées dans les carottes de glace du forage de Vostok (Antarctique) ; les variations de température sont estimées à partir des isotopes de deutérium (d'après BARNOLA *et al.*, 1987 repris par WATSON *et al.*, 1990).

2. Rôle des océans et de la biosphère

La biosphère semble jouer un rôle mineur dans le stockage et le déstockage de CO₂ atmosphérique pendant les périodes glaciaires et interglaciaires. Ainsi, PRENTICE et FUNG (1990), couplant la distribution des différents types de végétation au climat, estiment que la masse de carbone stockée dans la végétation lors du dernier maximum glaciaire (18 000 ans B.P.) est sensiblement identique à celle de la période interglaciaire actuelle. En revanche, ADAMS *et al.* (1990), en reconstituant la distribution globale des types de végétation pour le dernier maximum glaciaire (18 000 ans B.P.) d'après des données palynologiques, pédologiques et sédimentologiques, démontrent que la quantité de carbone contenue dans la biosphère il y a 18 000 ans était d'environ 970 GtC, soit plus de deux fois moins que la taille actuelle du réservoir à l'état naturel (2320 GtC). En effet, il y a 18 000 ans, la surface occupée par les déserts était plus grande de 83 % par rapport à celle des déserts actuels (ADAMS *et al.*, 1990). Il semble d'ailleurs que l'estimation de ADAMS *et al.* (1990) soit plus précise que celle de PRENTICE et FUNG (1990) basée sur les résultats d'un modèle climatique et qui sous-estime nettement les surfaces désertiques du dernier maximum glaciaire (SCHLESINGER, 1990).

Ainsi, au cours des périodes glaciaires, on assiste au déstockage simultané du carbone dans l'atmosphère (environ 170 GtC correspondant à 80 ppmv de CO₂) et dans la biosphère (770 GtC dans les sols et 580 GtC dans la végétation, soit 1350 GtC au total selon ADAMS *et al.*, 1990). C'est alors à l'océan que revient le rôle primordial d'absorber et de stocker ce carbone, *via* les échanges gazeux atmosphère-océans (ADAMS *et al.*, 1990 ; FAURE, 1990 ; SCHLESINGER, 1990). Lors du retour à une période interglaciaire, les océans rejettent ce CO₂ dans l'atmosphère, dont une grande partie est absorbée par la végétation en expansion sur les anciennes surfaces glaciaires.

3. Rôle potentiel de l'érosion continentale

Le seul mécanisme invoqué pour transférer le carbone du système atmosphère-biosphère vers les océans est l'échange de CO₂ atmosphère-océans (ADAMS *et al.*, 1990 ; FAURE, 1990 ; SCHLESINGER, 1990). L'érosion des continents constitue, elle aussi, un processus de transfert entre la biosphère et l'océan. La figure 11 montre que la décroissance du CO₂ atmosphérique, du stade interglaciaire à 120 000 ans B.P. au stade du maximum glaciaire à 18 000 ans B.P., se fait progressivement sur une durée d'environ 100 000 ans. La décroissance de la température (fig. 11) et la croissance du volume des glaces (BARNOLA *et al.*, 1987 ; LORIUS *et al.*, 1990) suivent la même évolution, induisant des changements de végétation progressifs. Le transfert de carbone hors du réservoir biosphère se fait donc lentement au rythme moyen de 0,0013 GtC/an (soit 1350 GtC transférés en 100 000 ans). Ce flux correspond à 5 % du flux de carbone organique dissous et particulaire (COD + COP, tabl. 1) et à 2 % du flux total de carbone (COD + COP + CID, tabl. 1) provenant du système biosphère-atmosphère et transporté aujourd'hui par les fleuves. Il n'est pas question de remettre en cause l'action des échanges atmosphère-océans dans la décroissance du CO₂ atmosphérique au cours des périodes glaciaires, mais il est intéressant de voir que l'érosion continentale, perturbée par les changements du climat et de la végétation, peut prendre en compte une partie de ce flux. Ainsi, la conversion des zones de forêts tempérées et de taïga en steppes semi-désertiques et en déserts polaires au cours de la dernière période glaciaire (ADAMS *et al.*, 1990) a probablement été accompagnée par l'intensification de l'érosion mécanique des sols mis à nu et par le transport d'une grande quantité de matière organique vers les océans, dont le niveau était plus bas. En outre, MUNHOVEN et FRANÇOIS (1994) ont étudié le rôle potentiel de l'altération chimique des silicates et de la sédimentation océanique sur les variations de la teneur en CO₂ de l'atmosphère durant les périodes glaciaires et interglaciaires, à l'aide d'une modélisation du système océan-atmosphère. Leurs résultats suggèrent que le flux de CO₂ issu de l'altération chimique des roches silicatées est plus important pendant les périodes glaciaires que pendant les périodes interglaciaires.

Ainsi, l'érosion des continents, qui joue un rôle primordial dans le cycle du carbone au cours des temps phanérozoïques, semble être un facteur potentiel non négligeable dans les processus de transfert du carbone entre le système atmosphère-biosphère et les océans durant les transitions interglaciaires/glaciaires. Un modèle d'érosion chimique global appliqué aux conditions environnementales des périodes glaciaires et interglaciaires permettrait de préciser la place de l'altération continentale dans le cycle du carbone de ces périodes.

III – L'ALTÉRATION CHIMIQUE DES CONTINENTS : UN Puits DE CO₂ ATMOSPHÉRIQUE

Nous avons vu dans les deux premières parties de ce chapitre les principales composantes du cycle du carbone et les fluctuations de ce dernier au cours des temps géologiques. Le but de cette troisième partie est de définir précisément le parcours du carbone entre le système atmosphère-biosphère et les océans, par l'intermédiaire de l'altération chimique des roches et du transport par les fleuves. Nous verrons alors que des facteurs variés interviennent au cours des différentes étapes de ce parcours.

A – DU CO₂ ATMOSPHÉRIQUE AUX BICARBONATES DANS LES EAUX FLUVIALES

Le carbone n'est pas transféré directement de l'atmosphère vers les eaux continentales de surface à la façon des échanges entre l'atmosphère et les océans, mais suit un parcours complexe, illustré par la figure 12. Le CO₂ atmosphérique fixé sous forme de carbone organique par la photosynthèse est ensuite oxydé au niveau des sols et se dissout dans les eaux de percolation. L'acide carbonique ainsi formé joue un rôle primordial dans l'altération des roches, avant d'être évacué sous forme d'ions bicarbonates par les eaux de drainage vers les océans.

1. Le carbone inorganique dans les eaux de surface

Le carbone inorganique dissous dans les eaux de surface se présente sous la forme d'ions carbonates (CO₃²⁻), d'ions bicarbonates (HCO₃⁻) et d'acide carbonique (H₂CO₃). Pour une eau pure en équilibre avec la pression partielle de CO₂ dans l'atmosphère (10^{-3,5} atm.), l'acide carbonique (H₂CO₃) est l'espèce

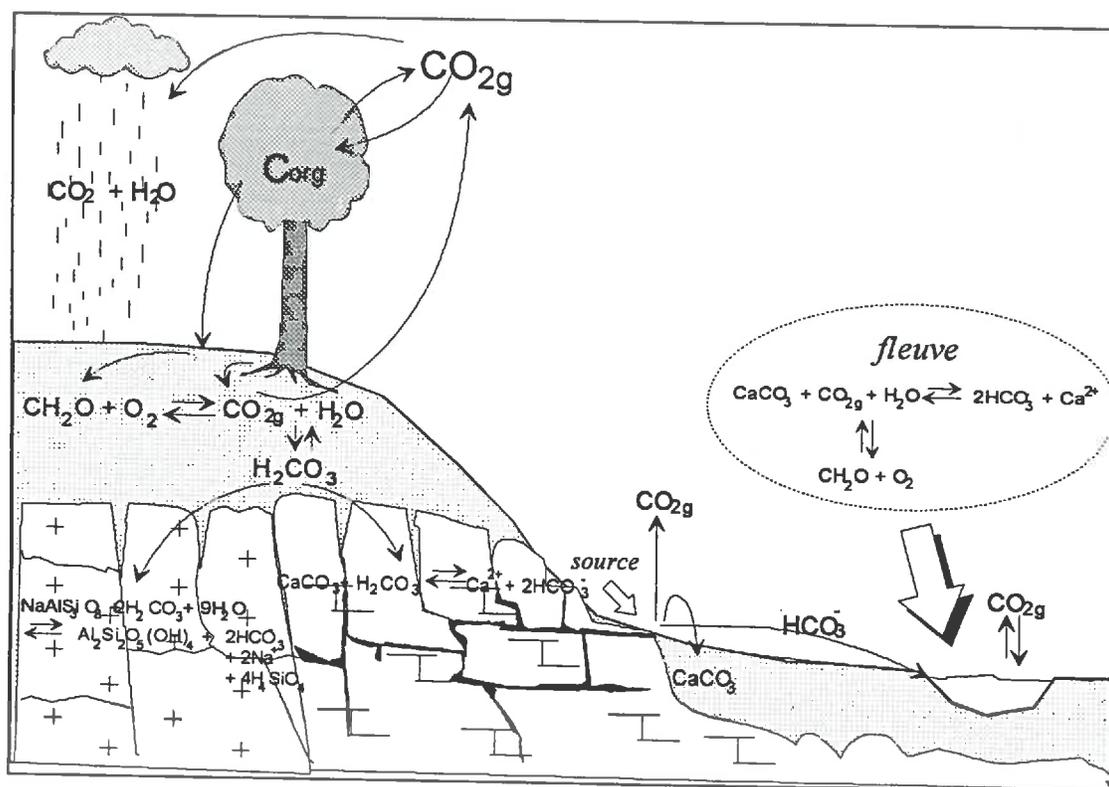
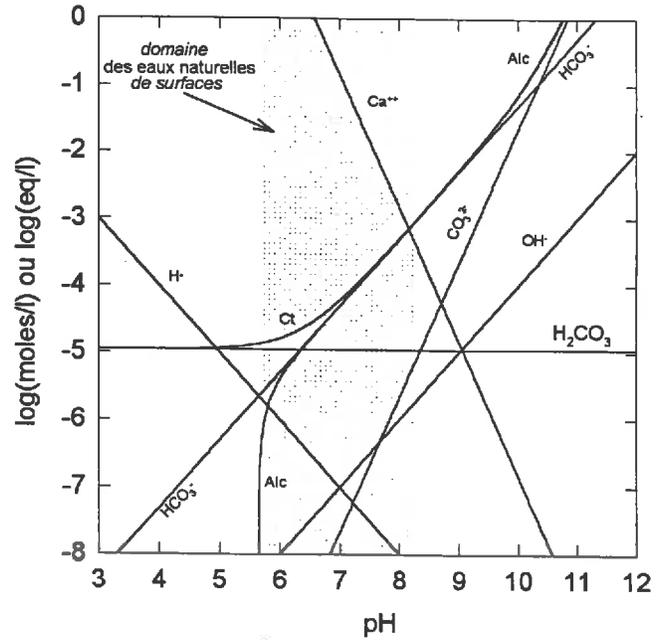
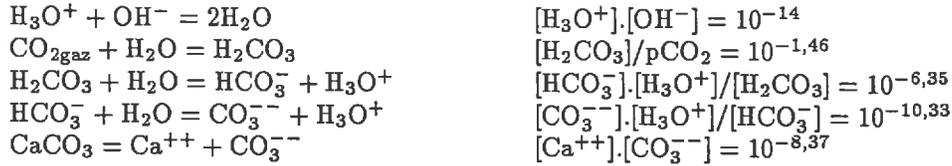


Fig.12 – Transfert du carbone entre l'atmosphère et les océans par l'érosion chimique des continents.

Fig.13 – Evolution de la concentration des différentes espèces carbonatées (H_2CO_3 , HCO_3^- , CO_3^{--}), de la totalité du carbone inorganique dissous (Ct), du calcium (Ca^{++}) et de l'alcalinité (Alc), en fonction du pH, dans une eau pure à l'équilibre avec la pression partielle de CO_2 atmosphérique ($10^{-3,5}$ atm.) et avec la calcite ($CaCO_3$) à $25^\circ C$.



Les équilibres considérés et les constantes correspondantes sont les suivants (d'après AL DROUBI *et al.*, 1978) :



dominante, avec une concentration de 10^{-5} moles/l (AL DROUBI *et al.*, 1978). L'alcalinité (Alc) correspond à la capacité de neutralisation des acides. Elle peut être définie d'après le bilan des charges du système carbonaté (SIGG *et al.*, 1992) :

$$[Alc] = [HCO_3^-] + 2[CO_3^{--}] + [OH^-] - [H_3O^+] \quad (8)$$

On représente sur la figure 13 les variations de la concentration des différentes espèces carbonatées et de l'alcalinité, en fonction du pH pour une eau pure à l'équilibre avec la calcite et la pression partielle de CO_2 dans l'atmosphère à $25^\circ C$. Dans les eaux naturelles, le pH varie entre celui de l'eau de pluie (5,65) et celui d'une eau en équilibre avec la calcite (8,3). Dans les eaux de pluie, $[CO_3^{--}]$ et $[OH^-]$ étant très faibles devant $[HCO_3^-]$, l'équation (8) s'annule et l'alcalinité tend vers zéro. Dès qu'une base est ajoutée à l'eau de pluie, le pH augmente de même que l'alcalinité (Alc) et la concentration en espèces carbonatées dissoutes (Ct). (Alc) et (Ct) deviennent rapidement très proches de la concentration en bicarbonates jusqu'à ce que le pH dépasse 9 (fig. 13). En tolérant un niveau de précision de 5 %, on calcule que bicarbonates et alcalinité sont équivalents à Ct pour un pH variant de 7,6 à 9 environ, ce qui correspond au domaine de pH des eaux fluviales. Dès lors, la mesure de l'alcalinité dans les eaux fluviales permet d'avoir une estimation précise de la concentration en ions HCO_3^- , espèce carbonatée dominante.

2. Le CO_2 dans les solutions de sol

L'eau de pluie, à l'équilibre avec la pression de CO_2 atmosphérique, ne contient qu'une faible quantité de CO_2 . Par contre, la pCO_2 régnant dans les sols est beaucoup plus importante, du fait de la production

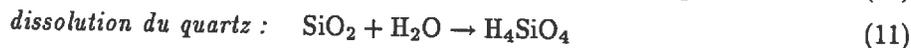
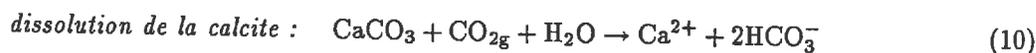
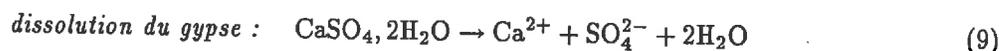
de dioxyde de carbone par la dégradation des matières organiques due à l'activité des micro-organismes et par la respiration des racines. Dès lors, la plus grande part du CO₂ en solution, qui participe à l'altération chimique des roches, est dissoute dans les eaux de percolation au niveau des sols. La pression partielle de CO₂ de l'atmosphère des sols varie de 10^{-3,5} à 10⁻¹ atm. selon le type de sol, le type de couverture végétale, la température et les précipitations (MIOTKE, 1974 ; BOURRIÉ, 1976 ; SOLOMON et CERLING, 1987). GRAS (1974) observe des pCO₂ variant entre 1,3.10⁻³ atm. en mai-juin et 5,7.10⁻³ atm. en septembre-octobre dans des sols bruns calcaires du Liban. SOLOMON et CERLING (1987) montrent que, dans un sol de montagne (Montagnes Rocheuses, dans l'Utah), les variations saisonnières de la concentration en CO₂ sont contrôlées par la température de l'air, dont l'augmentation favorise l'activité biologique des sols, et par la présence du manteau neigeux, qui freine le dégazage du CO₂ vers l'atmosphère. Ainsi, la pCO₂ est forte de juillet à octobre (de 1 à 1,3.10⁻² atm.), accompagnant la hausse des températures, puis chute rapidement de moitié en novembre à cause de la diminution de l'activité biologique, pour s'accroître progressivement pendant l'hiver et surtout le printemps, sous le manteau neigeux qui empêche la diffusion du CO₂ vers l'atmosphère. Vers mai-juin, le CO₂, qui atteint une pression partielle de 0,8 à 1.10⁻² atm., chute rapidement avec la fonte des neiges, pour remonter aussi rapidement à son niveau le plus haut dès le mois d'août. Une simulation sur le même sol sans manteau neigeux montre que la pCO₂ chute de novembre à mars jusqu'à environ 0,2.10⁻² atm. (SOLOMON et CERLING, 1987).

Le CO₂ dissous dans les solutions de sols provient donc, de façon indirecte, de l'atmosphère, et nous le dénommerons dans la suite de ce travail CO₂ atmosphérique. Cependant, ce carbone, au moment où il se trouve en solution dans les sols, n'est pas contemporain du CO₂ atmosphérique. Un certain laps de temps s'écoule entre la photosynthèse et la minéralisation du carbone organique en CO₂. La respiration des sols à l'échelle globale met 25 à 30 ans pour recycler le carbone contenu dans les sols (tabl. 1). Ce temps de résidence peut varier de quelques années seulement pour les sols tropicaux peu épais à plusieurs milliers d'années pour les tourbières. En outre, le recyclage de la matière organique d'un même sol évolue avec la profondeur. Plus la profondeur augmente et plus la matière organique devient évoluée et difficile à oxyder. Ainsi, O'BRIEN (1981) estime l'âge du carbone organique dans un sol limoneux sous pelouse à moins d'une année en surface, et à 6000 ans à 90 cm de profondeur, selon une méthode basée sur les isotopes stables du carbone. Le temps de résidence moyen du carbone dans ce sol est ainsi évalué à 63 ans.

3. L'altération chimique des minéraux

a) Les réactions de dissolution

La solution altérante, en partie constituée de CO₂ en solution après son passage dans les sols, participe à la dissolution des minéraux des roches ou minéraux primaires. L'altération chimique des minéraux peut être illustrée par les réactions suivantes (GARRELS et MACKENZIE, 1971 ; AL DROUBI *et al.*, 1976) :



hydrolyse de l'albite et précipitation de kaolinite :



Lors de la dissolution des minéraux carbonatés comme la calcite (éq. 10), la moitié des ions bicarbonates libérés en solution viennent de l'atmosphère, l'autre moitié des ions carbonates du minéral. Lors de la dissolution des minéraux silicatés, la totalité des ions bicarbonates proviennent du CO₂ atmosphérique.

On notera que la dissolution du gypse (éq. 9) ne nécessite pas de CO₂, tout comme la dissolution du quartz (éq. 11). Cependant, cette dernière est considérée comme très lente et inopérante à la surface du globe (GARRELS et MACKENZIE, 1971), de sorte que la concentration de silice en solution mesurée dans les

eaux de surface provient surtout de la dissolution d'autres silicates comme l'albite (éq. 12), qui consomme du CO₂.

Dans les réactions de dissolution (10) et (12), l'acide carbonique (CO_{2g} + H₂O) peut être remplacé par d'autres acides, comme l'acide sulfurique provenant de l'oxydation de la pyrite, ou les acides organiques dissous dans les solutions de sols. Ainsi, MEYBECK (1987) estime qu'environ 10 % du produit de l'altération chimique des roches continentales résulte de l'attaque des minéraux par l'acide sulfurique issu de l'oxydation de la pyrite.

De la même façon, les acides nitrique et sulfurique d'origine anthropique dissous dans les eaux de pluie viennent remplacer l'acide carbonique lors de l'altération chimique des roches. Autrement dit, l'acidification des pluies devrait entraîner *a priori* une diminution de la consommation de CO₂ atmosphérique par érosion chimique.

b) Influence des variations de la température sur la dissolution des minéraux

D'un point de vue strictement thermodynamique, la solubilité de la plupart des minéraux (à l'exception de certains minéraux tels que le quartz) constitutifs des roches silicatées et carbonatées diminue lorsque la température augmente (AL DROUBI *et al.*, 1976, 1978 ; FRITZ, 1981 ; FRITZ et TARDY, 1973 ; TARDY, 1990), comme le montrent les valeurs de solubilité de l'albite et de la calcite à saturation pour différentes températures présentées dans le tableau 5. Ainsi, à pression partielle de CO₂ constante, une augmentation de température doit diminuer la solubilité de la calcite et de l'albite, et donc la quantité de CO₂ consommée.

Tableau 5 – Solubilité (mmoles/l) de l'albite et de la calcite à saturation, calculée par modélisation pour différentes températures et pour une pCO₂ de 10^{-2,5} atm.

T (°C)	0	25	60	100		
solubilité de l'albite mmoles/l (1)	14,2	7,7	6,3	5,6		
T (°C)	5	10	15	20	25	40
solubilité de la calcite mmoles/l (2)	1,6	1,4	1,3	1,2	1,1	0,9

(1) AL DROUBI *et al.* (1976), (2) d'après STGG *et al.* (1992)

Par contre, d'un point de vue cinétique, les variations de température ont un effet inverse : la vitesse de dissolution des minéraux augmente lorsque la température s'accroît (TARDY, 1990 ; MADÉ, 1991 ; BEN BACCAR, 1992).

c) Influence des variations de la pCO₂ sur la dissolution des minéraux

Thermodynamiquement, et à l'inverse de la température, l'augmentation de la pCO₂ dans les solutions d'altération provoque une augmentation de la solubilité des minéraux (tabl. 6). Par conséquent, la consommation de CO₂ est plus intense lorsque la pCO₂ des sols augmente.

Comme nous l'avons vu auparavant dans ce chapitre, la pCO₂ des sols est liée à l'activité biologique, elle-même tributaire, entre autres, de la température : lorsque la température augmente et que l'humidité du sol est suffisante, l'activité biologique s'intensifie et la pCO₂ des sols augmente. Les valeurs du tableau 5 montrent que la solubilité de l'albite diminue de moitié lorsqu'on passe d'une température de 0°C à 25°C ; dans le même temps, on peut estimer que la pCO₂ des sols est passée de 10^{-3,5} à 10⁻² atm. environ (SOLOMON et CERLING, 1987), ce qui a pour effet d'augmenter la solubilité de l'albite d'un facteur 3 à 4 (tabl. 6), compensant largement la perte de solubilité induite par l'augmentation de température. Il en va de même avec la solubilité de la calcite. Ainsi, HARMON *et al.* (1975) mettent en évidence une relation positive

Tableau 6 – Solubilité de l'albite et de la calcite à saturation, calculée par modélisation thermodynamique pour différentes $p\text{CO}_2$ et à une température de 25° C.

$p\text{CO}_2$	$10^{-3,5}$	$10^{-2,5}$	$10^{-1,5}$	$10^{-0,5}$
solubilité de l'albite				
mmoles/l (1)	3,8	7,7	23,6	135,8
solubilité de la calcite				
mmoles/l (2)	0,5	1,1	2,4	4,7

(1) AL DROUBI *et al.* (1976), (2) AL DROUBI *et al.* (1978)

entre la concentration en HCO_3^- et la température à partir de données hydrogéochimiques sur des aquifères localisés dans des formations calcaires et sous différentes latitudes. HARMON *et al.* (1975) montrent en outre que $p\text{CO}_2$ et température sont les principaux facteurs de la variabilité de la concentration en HCO_3^- entre les différents aquifères. Par contre, PROBST et BAZERBACHI (1986) observent que la concentration en HCO_3^- des eaux du cours supérieur de la Garonne est plus forte en hiver, lorsque les températures sont basses, qu'en été, lorsque les températures sont maximales.

Au total, TARDY (1990) souligne que "l'intensité de l'altération chimique est, à drainage égal, plus forte en climat chaud intertropical qu'en climat tempéré froid".

4. Transport par les fleuves vers les océans

Après l'altération chimique, l'eau percolante sort à l'air libre, chargée de matière en solution, et prend la direction des océans. Le pH de ces eaux dépasse alors 6, de sorte que l'essentiel du carbone inorganique dissous est sous forme d'ions bicarbonates, dont la concentration est assimilable à l'alcalinité. Entre la source et l'océan, les équilibres du système carbonaté sont susceptibles d'être modifiés par les processus suivants : les échanges de CO_2 avec l'atmosphère, les équilibres minéraux-solution (précipitation ou dissolution de calcite par exemple) et l'oxydation de la matière organique des fleuves.

a) La précipitation de calcite et le dégazage de CO_2

La précipitation de la calcite dans le lit des rivières est fréquemment observée en terrain calcaire (PROBST, 1983 ; KEMPE, 1984), mais semblerait se limiter à la partie amont des cours d'eau. Les eaux des sources de terrains calcaires sont nettement sursaturées vis-à-vis de la calcite et le CO_2 , dont la pression partielle est supérieure à celle de l'atmosphère, dégaze rapidement, ce qui entraîne la précipitation de calcite. Au niveau des fleuves, la $p\text{CO}_2$ atteint très rarement l'équilibre avec l'atmosphère (GARRELS et MACKENZIE, 1971 ; KEMPE, 1979, 1982, 1984), tout comme celle de certains lacs (NORTON et HENRIKSEN, 1983). Elle est en moyenne de $10^{-2,5}$ atm. et est indépendante de la charge dissoute, du type de roche drainée ou de la latitude (GARRELS et MACKENZIE, 1971). Il semble que cette pression partielle de gaz carbonique soit contrôlée par l'activité planctonique et par les apports des eaux souterraines (KEMPE, 1979, 1982, 1984 ; NORTON et HENRIKSEN, 1983 ; SIGG *et al.*, 1992).

La $p\text{CO}_2$ étant maintenue à des valeurs relativement élevées, la précipitation de calcite, donc le retour vers l'atmosphère du CO_2 initialement consommé par l'altération chimique, devrait être relativement limitée au niveau des fleuves. Ainsi, la figure 14 montre que la sursaturation n'est atteinte que pour les eaux de quelques fleuves comme la Weser, la Seine, le Rhône ou le Huanghe, qui drainent principalement des roches carbonatées (KEMPE, 1982, 1984). On notera également sur la figure 14 que l'index de saturation de la calcite semble indépendant de la $p\text{CO}_2$.

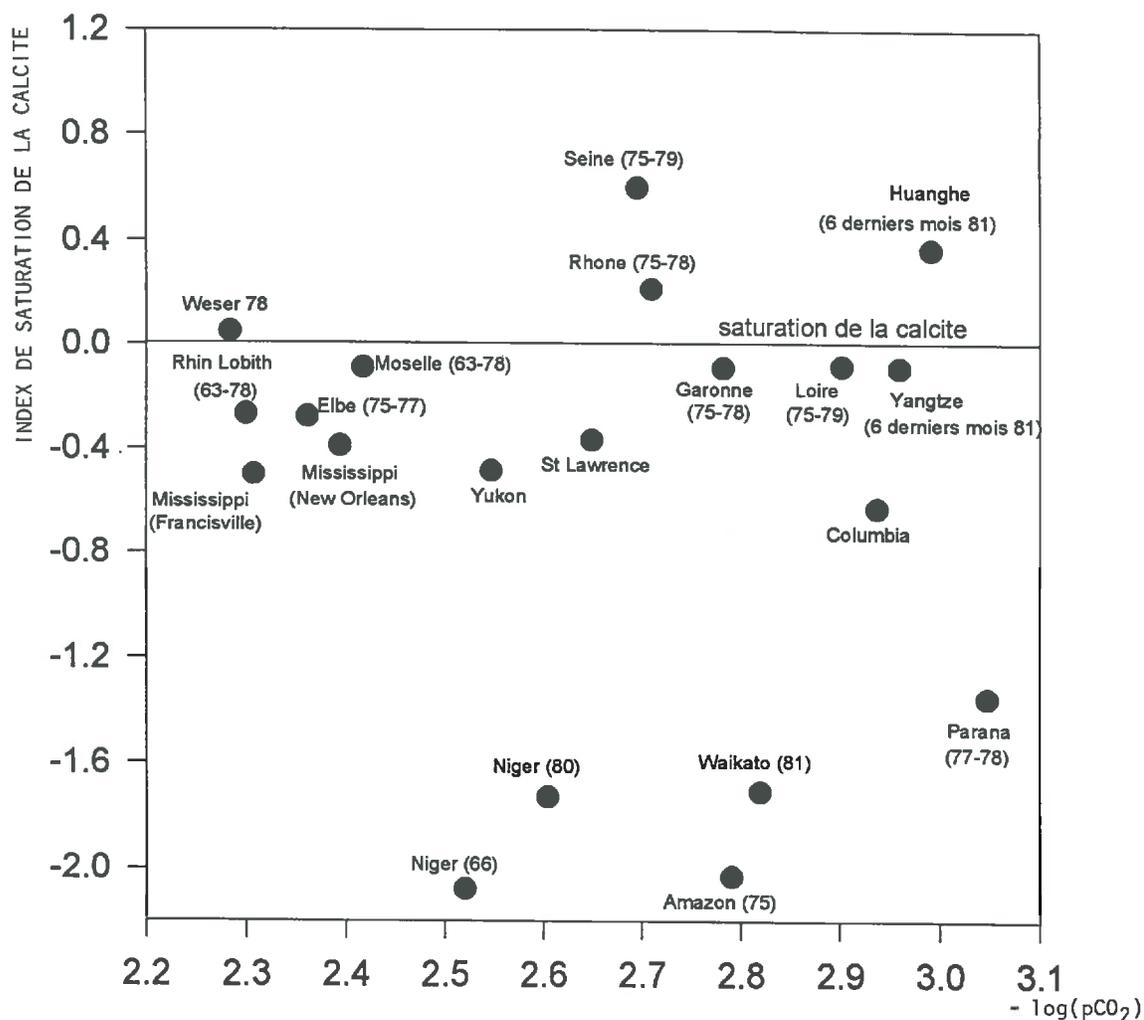


Fig.14 - Moyennes annuelles de l'indice de saturation de la calcite et de la pression partielle de CO₂ dans les eaux des grands fleuves (KEMPE, 1984).

b) L'oxydation de la matière organique

L'oxydation du carbone organique transporté par les rivières, ainsi que la respiration du plancton, semble contrôler, en partie, les variations de la pCO₂ dans les rivières selon l'équation suivante (KEMPE, 1984) :



Ainsi, KEMPE (1984) met en évidence des relations linéaires entre les variations de la concentration en carbone organique et la pCO₂ dans les eaux de plusieurs grands fleuves : l'Elbe, le Rhin, la Moselle, l'Amazone, le Mississippi, le Saint-Laurent et le Niger. KEMPE (1984) signale l'hétérogénéité de ces relations : certaines sont positives (Elbe, Rhin, Niger) ou négatives (Moselle, Amazone), d'autres sont inexistantes (Mississippi, Saint-Laurent), d'autres enfin ne sont pas significatives statistiquement (Moselle, Amazone, Saint-Laurent). Ceci tend à montrer que d'autres facteurs interviennent dans le contrôle de la pCO₂ dans les fleuves. Quoi qu'il en soit, l'étude de ALLAN *et al.* (1987) sur les échanges de CO₂ gazeux entre le fleuve et l'atmosphère sur le bassin de l'Amazone tend à montrer que le bilan net de ces échanges est nul (la respiration du plancton compense le dégazage de CO₂ et maintient une pCO₂ supérieure à celle de l'atmosphère) et qu'ils n'affectent en rien le flux de HCO₃⁻ de l'amont vers l'embouchure. En d'autres termes, la concentration en bicarbonates dans les eaux fluviales semble être un paramètre conservatif.

5. Conclusion sur les facteurs potentiels de la consommation de CO₂ par érosion chimique

Nous venons de décrire le parcours du carbone entre l'atmosphère et l'océan *via* l'érosion chimique des roches. Tout au long de ce parcours, le carbone traverse des réservoirs aussi différents que ceux de la biosphère et de la lithosphère et prend des formes aussi variées que celle de CO₂, à l'état de gaz ou en solution, et celle de carbone organique, à l'état solide ou en solution (fig. 12). Dès lors, les facteurs intervenant potentiellement dans le flux de CO₂ consommé par érosion chimique sont nombreux. On distingue essentiellement les facteurs hydroclimatiques tels que la température et le drainage, les facteurs biologiques qui, sous l'influence des facteurs hydroclimatiques, contrôlent la pCO₂ dans les sols et dans les fleuves, et enfin la lithologie, c'est-à-dire le type de minéraux susceptibles d'être altérés.

IV – CONCLUSION : IMPORTANCE DE L'ÉROSION DANS LE CYCLE DU CARBONE

A – IMPORTANCE DES FLUX D'ÉROSION DANS LE CYCLE ACTUEL

L'accroissement très rapide de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère est provoqué par le rejet de gaz carbonique issu de l'utilisation des combustibles fossiles et de la déforestation. Ce flux de CO₂ anthropogénique est estimé actuellement à environ 7 GtC (WATSON *et al.* 1990). De ces rejets, environ 30 %, soit 2 GtC, sont annuellement pompés par les océans et 40 %, soit 3 GtC, contribuent à l'accroissement de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère (fig. 1). Les 30 % restant sont dénommés "missing carbon" et seraient absorbés par un ou plusieurs processus encore mal connus. L'érosion continentale constitue un transfert de carbone entre les continents et les océans ; les fleuves transportent ainsi chaque année 1 GtC, ce qui est tout à fait comparable aux autres flux majeurs que nous venons de décrire. Ainsi, l'apport de carbone par les fleuves aux océans correspond à 50 % du CO₂ atmosphérique absorbé par les océans, à 30 % de l'accroissement annuel de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère et à 15 % des rejets anthropiques. Par ailleurs, le flux total de carbone transporté par les fleuves est constitué de 30 % de CO₂ atmosphérique consommé par érosion chimique des continents, de 40 % de carbone organique provenant de la biosphère et de 30 % de carbone inorganique provenant de la lithosphère.

Récemment, SARMIENTO et SUNDQUIST (1992) ont reconnu l'érosion continentale comme un puits de CO₂ atmosphérique qui doit être pris en compte dans le bilan actuel. En effet, les modèles d'absorption océanique, basés sur le cycle du carbone dans les océans, englobent les apports de carbone par les fleuves, donc le CO₂ retiré à l'atmosphère par l'action successive de l'érosion et de la sédimentation du carbone inorganique et organique. Dès lors, selon SARMIENTO et SUNDQUIST (1992), les échanges atmosphère-océans n'absorbent réellement qu'environ 75 % des 2 GtC estimées par les modèles ; les 25 % restant seraient absorbés par l'intermédiaire du processus érosion-sédimentation.

Enfin, l'érosion continentale occupe une position particulière au sein du cycle du carbone. Elle constitue en effet le seul lien majeur et direct entre la biosphère et les océans. En outre, elle est située à l'interface des réservoirs externes (atmosphère, biosphère, océans) et des réservoirs plus internes de la lithosphère.

B – IMPORTANCE DE L'ÉROSION AU COURS DES TEMPS GÉOLOGIQUES

Au cours des temps géologiques, le cycle du carbone est contrôlé par le cycle géochimique des carbonates-silicates. La concentration de CO₂ dans l'atmosphère fluctue alors en fonction des rejets de l'activité volcanique (flux d'entrée) contrebalancée par le transfert de carbone vers la lithosphère par l'érosion chimique des roches silicatées et la sédimentation des roches carbonatées (flux de sortie).

Si l'érosion continentale semble réguler la concentration de CO₂ dans l'atmosphère à l'échelle du million d'années, elle semble également pouvoir jouer un rôle non négligeable à l'échelle de la centaine de milliers d'années. Ainsi, les transferts de carbone entre la biosphère et les océans au cours de la transition interglaciaire/glaciaire de 120 à 20 000 ans B.P. sont réalisés à des vitesses moyennes tout à fait compatibles avec les flux d'érosion observés actuellement.

C – IMPORTANCE DES FACTEURS DE L'ÉROSION

La position centrale qu'occupe l'érosion continentale dans le cycle du carbone soumet celle-ci à l'influence de multiples facteurs tels que des facteurs géologiques, hydroclimatiques, biologiques et anthropiques.

Les facteurs géologiques fluctuent lentement, mais induisent des transferts de carbone considérables à long terme. Ces facteurs sont essentiellement liés à la tectonique des plaques qui influence l'érosion en modifiant les paramètres d'état de surface du globe tels que les surfaces des continents, leur position en latitude, leur pente, leur altitude, etc.

L'influence des facteurs biologiques sur l'érosion est encore mal connue. Les racines des plantes et l'activité des micro-organismes contrôlent la production de CO₂ dans les sols, lequel participe ensuite à l'altération chimique. Cette production de CO₂ augmente lorsque la concentration de CO₂ dans l'atmosphère et la température augmentent.

Les facteurs hydroclimatiques sont sans doute les plus importants dans les processus d'érosion continentale. Tout d'abord, drainage et température sont les deux facteurs principaux qui semblent contrôler les flux d'érosion. Leurs fluctuations s'observent à très court terme aussi bien qu'à long terme. D'autre part, la température est étroitement liée, par l'effet de serre, à la concentration de CO₂ dans l'atmosphère, ce qui conduit l'érosion à avoir un effet rétroactif négatif sur le CO₂ atmosphérique. En effet, l'augmentation de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère s'accompagne d'une hausse de température, laquelle induit une augmentation du drainage et donc une augmentation de l'érosion chimique qui consomme du CO₂ atmosphérique.

Enfin, les activités humaines modifient directement et indirectement les paramètres environnementaux qui influencent l'érosion.

Chapitre II

FLUX DE CO₂ CONSOMMÉ PAR ÉROSION CHIMIQUE DES PRINCIPAUX TYPES DE ROCHES

Nous avons vu dans le chapitre I que les facteurs qui contrôlent la consommation de CO₂ par érosion chimique sont multiples. Parmi ceux-ci, le drainage et la lithologie constituent des facteurs de premier ordre. L'eau est, en effet, un agent de lessivage au niveau des sols et des roches puis un agent de transport vers les océans. Quant à la lithologie, elle est principalement définie par la composition minéralogique des roches, par leur faciès et par les différents paramètres (fracturation, perméabilité, porosité...) qui règlent le temps de contact eau-roche, ce qui conditionne leur vitesse d'altération. Par exemple, la consommation de CO₂ devrait être plus intense sur des roches composées de minéraux carbonatés telles que les calcaires, sensibles à l'érosion chimique, que sur des roches composées de minéraux silicatés telles que les granites. En outre, la contribution du CO₂ atmosphérique au flux de HCO₃⁻ libéré par la dissolution des minéraux silicatés comme l'albite est de 100 %, alors qu'elle n'est que de 50 % lors de la dissolution des minéraux carbonatés comme la calcite.

Parmi les travaux consacrés à l'étude des facteurs de l'érosion chimique, on peut citer ceux de GARRELS et MACKENZIE (1971), HOLLAND (1978), MEYBECK (1979, 1987), KEMPE (1982, 1984), BERNER *et al.* (1983), WOLLAST et MACKENZIE (1983), TARDY (1986), BERNER et BERNER (1987), PROBST (1992). Les facteurs qui contrôlent la consommation de CO₂ par érosion chimique sont les mêmes que ceux qui contrôlent l'érosion chimique proprement dite. Ainsi, pour GARRELS et MACKENZIE (1971), AMIOTTE SUCHET et PROBST (1992 a), PROBST (1992), PROBST *et al.* (1992 a), la consommation de CO₂ est fonction du drainage et de la température de l'air. D'autre part, PROBST (1992) et PROBST *et al.* (1992 a) montrent que, à l'échelle globale, le CO₂ consommé est également contrôlé par l'abondance des roches carbonatées affleurant à la surface des continents.

Après avoir décrit les différentes méthodes qui permettent d'estimer la quantité de CO₂ consommée par l'érosion chimique, nous tenterons de déterminer les relations entre le flux spécifique de CO₂ consommé et le drainage continental, pour chaque type de roche affleurant à la surface des continents. Pour cela, nous utiliserons des données de concentration en HCO₃⁻ et de débit publiées par MEYBECK (1986) sur des petits bassins versants monolithologiques français.

I – MÉTHODES D'ESTIMATION DU FLUX DE CO₂ CONSOMMÉ

Sur un bassin versant, les ions bicarbonates mesurés dans les eaux de drainage proviennent principalement de la dissolution des minéraux carbonatés des roches et du CO₂ d'origine atmosphérique. Sur un bassin versant à substratum exclusivement carbonaté (éq. 10, chap. I), le flux de CO₂ consommé par altération est égal à la moitié du flux de bicarbonates. Par contre, sur un bassin versant à substratum exclusivement silicaté (éq. 12, chap. I), il est égal à la totalité du flux de bicarbonates. Sur un bassin versant dont le substratum

est composé à la fois de roches silicatées et de roches carbonatées, la proportion de CO₂ atmosphérique par rapport au flux de bicarbonates est comprise entre 50 et 100 %. Le problème est alors de distinguer, dans le flux total de HCO₃⁻, la part venant du CO₂ des sols et de l'atmosphère de celle venant de la dissolution des minéraux carbonatés des roches. Dans les paragraphes qui suivent, différentes méthodes permettant d'évaluer la proportion de bicarbonates d'origine atmosphérique sont décrites.

A - MÉTHODE DU BILAN DE L'ALTÉRATION CHIMIQUE PAR TYPE DE ROCHE

Cette méthode consiste simplement à définir, pour un bassin versant donné de surface (S), les surfaces (S_i) occupées par chaque type de roche, puis à définir la concentration totale moyenne en HCO₃⁻ (C_i) représentative des eaux drainant chaque type de roche, à partir de données sur des bassins monolithologiques. La concentration en HCO₃⁻ d'origine atmosphérique (C_iatm) est équivalente à C_i pour les roches silicatées, et à la moitié de C_i pour les roches carbonatées. On calcule alors la concentration moyenne en carbone inorganique d'origine atmosphérique (C_{atm}), pour le bassin versant donné, en faisant la moyenne des concentrations (C_iatm), pondérée par la surface (S_i) :

$$C_{atm} = \frac{\sum_{i=1}^n (C_{i\text{atm}} \times S_i)}{\sum_{i=1}^n S_i} \quad (14)$$

Cette méthode, qui ne tient pas compte de l'intensité du drainage de chaque type de roche, a été utilisée par MEYBECK (1987) dans son "Temperate Stream Model", pour définir la contribution de chaque type de roche au bilan global du transport en solution par les fleuves. MEYBECK (1987) calcule ainsi que 67 % des ions bicarbonates sont d'origine atmosphérique, résultats en accord avec les estimations précédentes de HOLLAND (1978) et BERNER *et al.* (1983).

NKOUNKOU et PROBST (1987), afin d'établir le bilan de l'altération chimique du bassin du Congo, améliorent la méthode en y introduisant l'intensité du drainage (D_i) de chaque type de roche. On peut ainsi calculer le flux de CO₂ d'origine atmosphérique (F_{atm}) dans les eaux d'un bassin donné, selon l'équation suivante :

$$F_{atm} = \sum_{i=1}^n C_{i\text{atm}} \times D_i \times S_i \quad (15)$$

Cette méthode a également été utilisée par ETCHANCHU (1988) et ORANGE (1992) pour déterminer le bilan de l'érosion chimique sur les bassins de la Garonne et du Sénégal respectivement.

B - MÉTHODE DE DÉCOMPOSITION DES FLUX D'ÉLÉMENTS MAJEURS DISSOUS

Dans cette méthode, on utilise directement les flux d'éléments majeurs exportés en solution à l'exutoire d'un bassin donné. Après correction des apports atmosphériques, le flux de chaque élément est attribué à la dissolution des différentes catégories de minéraux présents dans le substratum du bassin, en faisant certaines hypothèses (GARRELS et MACKENZIE, 1971 ; HOLLAND, 1978 ; MEYBECK, 1979 ; BERNER *et al.*, 1983). La procédure décrite ci-dessous est adaptée de celle utilisée par STALLARD (1980) pour effectuer le bilan de l'altération chimique sur le bassin de l'Amazone, et récemment reprise par PROBST *et al.* (1994) pour déterminer le flux de CO₂ consommé sur les bassins du Congo et de l'Amazone. Après correction des apports atmosphériques, on considère que :

- la totalité du chlore provient de la dissolution de la halite (NaCl) ;
- le sodium provient de la dissolution de la halite et de l'altération des minéraux silicatés ;
- le potassium dérive uniquement de l'altération des minéraux silicatés ;
- le flux de calcium comporte trois sources : (i) la dissolution du gypse (CaSO₄), (ii) l'altération chimique des minéraux carbonatés et (iii) l'altération des minéraux silicatés ;

- le magnésium est produit par l'altération chimique des minéraux carbonatés et des minéraux silicatés ;
- le flux de Ca et de Mg produit par l'altération des minéraux silicatés est estimé à partir du flux de Na et de K produit par l'altération des minéraux silicatés, et du rapport molaire moyen $R_{sil} = (Na + K)/(Ca + Mg)$ dans les eaux de drainage des roches silicatées considéré comme constant pour un bassin donné. R_{sil} peut être déterminé à partir de données de concentrations en éléments majeurs dissous de petits ruisseaux drainant des types de roches similaires à celles du bassin étudié ;
- les ions sulfates proviennent de la dissolution du gypse et de l'oxydation de la pyrite contenue dans les roches silicatées ;
- la quantité d'ions sulfates libérée par oxydation de la pyrite est estimée en utilisant le rapport molaire moyen $R_{pyr} = SO_4/(Ca + Mg + Na + K)$ des eaux de drainage des roches silicatées, qui est constant pour un bassin donné. On détermine la valeur de R_{pyr} de la même façon que celle de R_{sil} ;
- enfin, comme nous l'avons déjà vu, les ions bicarbonates proviennent de l'altération des minéraux carbonatés et du CO_2 atmosphérique. En outre, on fait ici l'hypothèse que l'altération des minéraux carbonatés n'est effectuée que par l'attaque de l'acide carbonique.

D'après la procédure décrite ci-dessus, le flux de CO_2 consommé peut être calculé comme suit (où F est le flux molaire correspondant à un élément chimique, l'exposant de F correspond à la source de l'élément chimique : tot = flux d'élément dissous mesuré à l'exutoire du bassin et corrigé des apports atmosphériques, atm = atmosphère, sil = altération des minéraux silicatés, carb = altération des minéraux carbonatés, gyp = dissolution du gypse, pyr = oxydation de la pyrite) :

$$F_{HCO_3^-}^{atm} = F_{HCO_3^-}^{tot} + F_{HCO_3^-}^{carb} \quad (16)$$

$$F_{HCO_3^-}^{carb} = F_{Ca+Mg}^{carb} \quad (17)$$

$$F_{Ca+Mg}^{carb} = F_{Ca+Mg}^{tot} - F_{Ca+Mg}^{sil} - F_{Ca}^{GYP} \quad (18)$$

$$R_{sil} = \frac{F_{Na+K}^{sil}}{F_{Ca+Mg}^{sil}} \quad (19)$$

$$F_{Na+K}^{sil} = F_{Na+K}^{tot} - F_{Cl}^{tot} \quad (20)$$

$$F_{Ca}^{GYP} = F_{SO_4^{2-}}^{GYP} = F_{SO_4^{2-}}^{tot} - F_{SO_4^{2-}}^{pyr} \quad (21)$$

$$F_{SO_4^{2-}}^{pyr} = F_{SO_4^{2-}}^{sil} \quad (22)$$

$$R_{pyr} = \frac{F_{SO_4^{2-}}^{sil}}{F_{Na+K}^{sil} + F_{Ca+Mg}^{sil}} \quad (23)$$

D'après les équations (16) à (23) on peut écrire :

$$F_{HCO_3^-}^{atm} = F_{HCO_3^-}^{tot} - F_{Ca+Mg}^{tot} + F_{SO_4}^{tot} + (F_{Na+K}^{tot} - F_{Cl}^{tot}) \cdot \left[\frac{1}{R_{sil}} - \left(1 + \frac{1}{R_{sil}}\right) \cdot R_{pyr} \right] \quad (24)$$

L'équation (24) permet alors de déterminer le flux de CO_2 atmosphérique consommé par érosion chimique, à partir des flux d'érosion chimique des éléments majeurs et des rapports R_{sil} et R_{pyr} décrits plus haut. La précision de ces calculs est liée à celle des rapports R_{sil} et R_{pyr} , ainsi qu'à celle de la correction des apports atmosphériques. En outre, une telle démarche ne tient pas compte de l'attaque des minéraux par d'autres acides que l'acide carbonique ou l'acide sulfurique, tels que les acides organiques. Quoi qu'il en soit, PROBST *et al.* (1994) utilisent une méthode similaire (en considérant qu'il n'y a pas d'évaporites sur le bassin du Congo et en négligeant l'altération des silicates par l'acide sulfurique issu de l'oxydation de la pyrite) pour calculer le flux de CO_2 consommé sur le bassin du Congo. Les résultats obtenus par ces auteurs ($0,562 \cdot 10^5$ moles/km².an de CO_2 atmosphérique consommé, soit 75 % du flux total de bicarbonates exportés par le Congo) sont proches de ceux obtenus par NKOUNKOU et PROBST (1987) (76 % du flux total de bicarbonates exportés par le Congo) en utilisant la méthode du bilan d'altération par type de roche.

C – UTILISATION DU RAPPORT ISOTOPIQUE $^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$ DES BICARBONATES

Cette troisième méthode est plus directe que les deux précédentes. Elle doit permettre de distinguer la part du CO_2 d'origine atmosphérique dans le flux de bicarbonates transportés par les eaux de drainage. En effet, les deux sources d'ions bicarbonates, qui sont le CO_2 des sols et les ions carbonates des minéraux carbonatés, ont des signatures isotopiques ($\delta^{13}\text{C}$) très différentes.

Le carbone minéral dissous dans les solutions de sol vient directement du CO_2 gaz issu de l'oxydation de la matière organique. Lorsque le CO_2 se dissout, on observe un fractionnement isotopique entre la phase gazeuse et les différentes espèces carbonatées en solution. L'importance de ce fractionnement est fonction de la température. DEINES *et al.* (1974) montrent que le coefficient de fractionnement isotopique (α) entre les ions bicarbonates et le CO_2 gaz est fonction de la température (T, en °K), et peut être calculé par l'équation suivante :

$$\ln \alpha = 1,099 (10^6 \cdot T^{-2}) - 4,54 \quad (25)$$

$$\text{avec : } \alpha = \delta^{13}\text{C}_{\text{HCO}_3^-} / \delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2\text{gaz}} \quad (26)$$

Il y a donc un enrichissement en ^{12}C lors de la dissolution de CO_2 gaz et cet enrichissement est accru lorsque la température augmente. STUMM et MORGAN (1981), utilisant les relations de DEINES *et al.* (1974), calculent que pour une solution en contact avec un réservoir de CO_2 dont la pression partielle est de 10^{-2} atm. et le $\delta^{13}\text{C}$ de -25‰ à la température de 10°C , le $\delta^{13}\text{C}$ du carbone minéral dissous est de $-17,6\text{‰}$. Les variations de température sont liées à la composition isotopique du carbone minéral dissous dans les solutions de sol autrement que par le biais du fractionnement isotopique entre phase gazeuse et phase aqueuse. En effet, la température contrôle également la composition isotopique du CO_2 gaz dans les sols. Celle-ci résulte d'un mélange entre le CO_2 atmosphérique, dont le $\delta^{13}\text{C}$ est de -7‰ (FAURE, 1986), et le CO_2 issu de l'oxydation de la matière organique, dont le $\delta^{13}\text{C}$ est de -24 à -30‰ (FAURE, 1986). Dès lors la température, qui contrôle en partie l'intensité de la minéralisation de la matière organique, influence la proportion de CO_2 issue de l'oxydation du carbone organique des sols par rapport au CO_2 atmosphérique, et règle alors en partie le $\delta^{13}\text{C}$ du CO_2 des sols. Ainsi, ce dernier est en moyenne de -10‰ en hiver, lorsque la température est faible et l'activité biologique réduite, et correspond à une $p\text{CO}_2$ proche de celle de l'atmosphère (CERLING, 1984 ; SALOMONS et MOOK, 1986 ; CERLING *et al.*, 1991). Par contre, en été, lorsque la température est élevée et l'activité biologique intense, le $\delta^{13}\text{C}$ du CO_2 des sols est en moyenne de -25‰ pour une $p\text{CO}_2$ de l'ordre de 10^{-2} atm.

Les minéraux carbonatés précipités en milieu marin sont beaucoup plus riches en ^{13}C , avec un $\delta^{13}\text{C}$ représentatif de celui de l'eau de mer et variant entre -1 et $+2\text{‰}$ (FAURE, 1986 ; MARSHALL, 1992). Par contre, les minéraux carbonatés précipités en eau douce sont généralement plus riches en ^{12}C que les carbonates marins et leur $\delta^{13}\text{C}$ varie entre -8‰ et -3‰ (FAURE, 1986). L'altération chimique ne produit aucun fractionnement isotopique et la composition isotopique des bicarbonates est : (i) identique à celle de l'acide carbonique lors de la dissolution des silicates, (ii) exactement intermédiaire entre celle de l'acide carbonique et celle des minéraux carbonatés lors de la dissolution de roches carbonatées (en système fermé) et (iii) identique à celle des minéraux carbonatés lors de la dissolution des roches carbonatées par d'autres acides minéraux que l'acide carbonique (SALOMONS et MOOK, 1986 ; KENDALL, 1992). La composition isotopique du carbone inorganique dissous des eaux d'un fleuve résulte du mélange des eaux drainant les roches carbonatées de débit $Q(\text{carb})$, de concentration en HCO_3^- $\text{CHCO}_3(\text{carb})$ et de composition isotopique $\delta^{13}\text{C}(\text{carb})$, avec les eaux drainant les roches silicatées de débit $Q(\text{sil})$, de concentration en HCO_3^- $\text{CHCO}_3(\text{sil})$ et de composition isotopique $\delta^{13}\text{C}(\text{sil})$. La composition isotopique du carbone inorganique $\delta^{13}\text{C}(\text{tot})$ en solution dans les eaux du fleuve, de concentration en HCO_3^- $\text{CHCO}_3(\text{tot})$ et de débit $Q(\text{tot})$, peut s'écrire selon l'équation suivante (d'après DUPLESSY, 1972) :

$$Q(\text{tot}) \cdot \text{CHCO}_3(\text{tot}) \cdot \delta^{13}\text{C}(\text{tot}) = Q(\text{carb}) \cdot \text{CHCO}_3(\text{carb}) \cdot \delta^{13}\text{C}(\text{carb}) + Q(\text{sil}) \cdot \text{CHCO}_3(\text{sil}) \cdot \delta^{13}\text{C}(\text{sil}) \quad (27)$$

$$\text{et : } Q(\text{tot}) \cdot \text{CHCO}_3(\text{tot}) = Q(\text{carb}) \cdot \text{CHCO}_3(\text{carb}) + Q(\text{sil}) \cdot \text{CHCO}_3(\text{sil}) \quad (28)$$

Connaissant les paramètres $Q(\text{tot})$, $\text{CHCO}_3(\text{tot})$ et $\delta^{13}\text{C}(\text{tot})$ mesurés à l'exutoire du bassin drainé par le fleuve, ainsi que les compositions isotopiques $\delta^{13}\text{C}(\text{carb})$ et $\delta^{13}\text{C}(\text{sil})$ mesurées dans les eaux drainant uniquement des roches silicatées ou des roches carbonatées du bassin, les équations (27) et (28) nous permettent

d'estimer la contribution relative de l'altération des roches carbonatées, de l'altération des roches silicatées et du CO₂ d'origine atmosphérique au flux total de bicarbonates exportés par le fleuve.

HITCHON et KROUSE (1972) ont publié une étude très complète sur la composition en isotopes stables de l'oxygène, du carbone et du soufre dans les eaux du fleuve Mackenzie et de ses affluents. Malheureusement, l'absence de données sur le $\delta^{13}\text{C}$ des bicarbonates des eaux drainant les roches carbonatées et les roches silicatées du bassin ne permet pas d'estimer la contribution de chaque formation au flux total d' HCO_3^- . Plus récemment, KENDALL *et al.* (1992) ont enregistré les variations saisonnières de la composition isotopique des bicarbonates dissous dans les eaux de deux petits bassins versants à substratum composé principalement de roches non carbonatées localement accompagnées de calcite en veines ou en nodules. Dans ces deux bassins, la composition isotopique des bicarbonates en période de basses eaux est exactement intermédiaire ($\delta^{13}\text{C} = -11$ à -15‰) entre celle des roches carbonatées du bassin (-4‰) et celle du CO₂ des sols (-22‰), témoignant ainsi de la contribution presque exclusive de la dissolution des minéraux carbonatés (soit 50 % de CO₂ atmosphérique) au flux de bicarbonates (KENDALL *et al.*, 1992). En période de hautes eaux, sur l'un des deux bassins la composition isotopique montre que la calcite contribue pour 65 % au flux total de bicarbonates, ce qui n'est possible que par l'attaque des formations carbonatées par un autre acide que H₂CO₃ (KENDALL *et al.*, 1992). Ainsi, l'étude de la composition isotopique du carbone inorganique dissous dans les eaux de surface apparaît très utile et précise pour déterminer les différentes sources du carbone contribuant au flux de HCO_3^- , ainsi que leurs variations saisonnières. Cependant, peu d'études ont été développées jusqu'à maintenant sur cette méthode, qui reste néanmoins utile et très prometteuse et qui viendrait compléter les deux premières méthodes décrites au début de ce chapitre.

II – FLUX DE CO₂ CONSOMMÉ PAR TYPE DE ROCHE

Dans des conditions d'altération constantes (solution initiale altérante, pCO₂, température, fracturation et porosité de la roche...), la nature du minéral altéré détermine de façon invariable la quantité de CO₂ utilisée dans la réaction d'altération chimique, pour un volume d'eau constant. Dès lors, chaque type de roche, avec sa composition minéralogique particulière et placé dans des conditions standard d'altération, devrait consommer une quantité de CO₂ qui lui est propre. Dans cette seconde partie, nous proposons de caractériser la consommation de CO₂ pour les différentes lithologies, en définissant des relations flux de CO₂ – drainage sur des petits bassins versants monolithologiques.

A – MATÉRIELS ET MÉTHODES

1. Choix des données

Afin de mettre en relation la consommation de CO₂ et le type de roche, les bassins monolithologiques, pour lesquels des données de débit et de concentration en HCO_3^- sont disponibles, doivent tous appartenir à une même zone bioclimatique, de façon à éliminer l'influence des facteurs climatiques et de la végétation. Les études portant sur de tels ensembles de bassins monolithologiques sont rares. On peut citer celle de PETERS (1984), qui rassemble les concentrations moyennes en éléments majeurs dissous et les caractéristiques hydroclimatiques et lithologiques de 56 bassins monolithologiques aux Etats-Unis. Cependant, deux raisons nous ont conduit à ne pas utiliser ces données : (i) près de la moitié des bassins présentés par PETERS (1984) occupent une surface supérieure ou égale à 10 000 km², ne garantissant pas l'unicité et l'homogénéité des types de roches, et (ii) les bassins sont répartis sur tout le territoire des Etats-Unis, de la Floride à la Californie du Nord, ce qui ne répond pas à la nécessité d'homogénéité climatique définie plus haut.

Les données publiées par MEYBECK (1986) sur les débits estimés et les concentrations en éléments majeurs dissous mesurées dans les eaux de surface de 232 petits bassins versants monolithologiques français

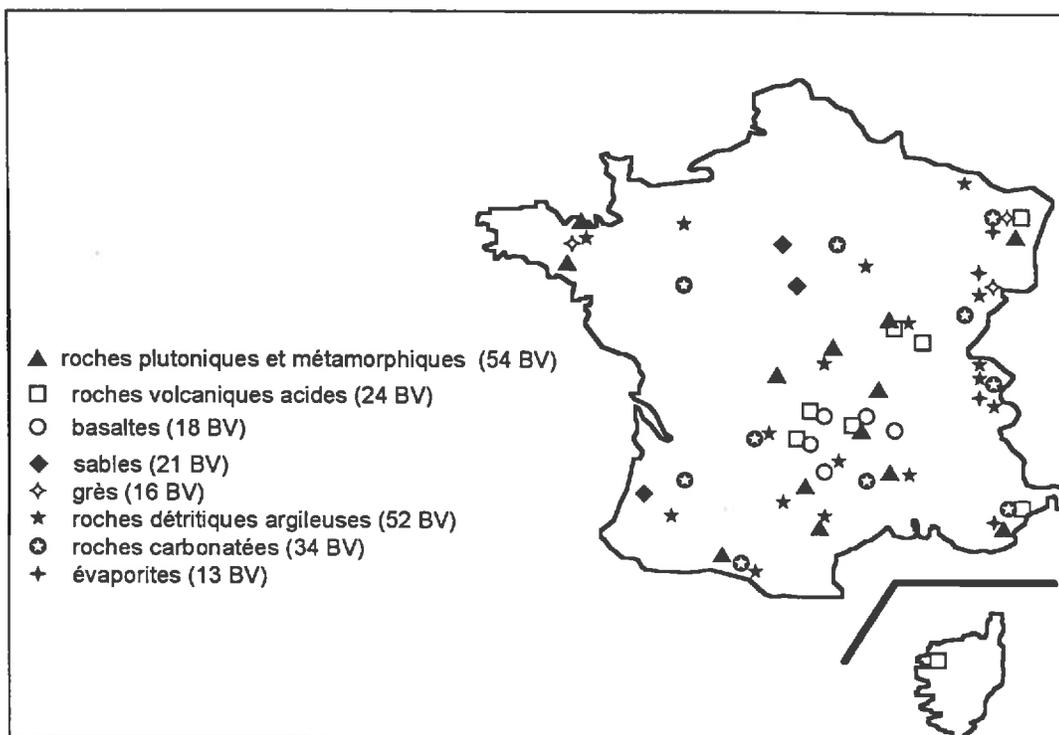


Fig.15 – Répartition géographique des petits bassins versants monolithologiques échantillonnés par MEYBECK (1986).

répondent très bien aux critères d'homogénéité climatique et lithologique dont nous venons de parler. La surface de ces bassins est inférieure à 200 km², avec une majorité de bassins compris entre 1 et 50 km².

Les bassins sont répartis sur l'ensemble du territoire français (fig. 15) et leur substratum géologique représente pratiquement tous les principaux types de roches affleurant actuellement à la surface des continents. Les bassins possèdent des caractéristiques morphoclimatiques homogènes, ils sont couverts par des forêts ou des pelouses alpines et ils ne subissent aucune pollution anthropique directe. Les analyses ont été effectuées sur un ou deux échantillons prélevés à l'exutoire de chaque bassin versant au cours des différentes périodes hydrologiques entre 1980 et 1983.

2. Méthode

On calcule le flux de HCO_3^- à partir du débit estimé et de la concentration en bicarbonates mesurée sur les 232 bassins monolithologiques de MEYBECK (1986). Le flux de CO_2 consommé par altération à l'exutoire du bassin est égal à la totalité du flux de bicarbonates pour les bassins versants à substratum non carbonaté et à la moitié du flux de bicarbonates pour les bassins versants à substratum carbonaté (voir chapitre I, paragraphe III-A-3-a). Pour les bassins versants à substratum évaporitique, on considère que ces roches sont composées essentiellement de minéraux évaporitiques et de minéraux carbonatés. Les bicarbonates proviennent alors principalement de la dissolution des carbonates et le flux de CO_2 est équivalent à la moitié du flux de HCO_3^- . Ensuite, les relations entre le flux spécifique (flux divisé par la surface du bassin) de CO_2 (FCO_2) et le débit spécifique (Q) sont déterminées par régression linéaire.

B - RÉSULTATS

1. Les relations flux de CO₂ consommé - débit par type de roche

En regroupant les bassins par grandes classes lithologiques, on peut observer de bonnes relations linéaires et positives entre F_{CO_2} et Q (tabl. 7 et fig. 16), bien que les débits n'aient pas été mesurés avec une grande précision (MEYBECK, 1986). Ainsi, lorsque le drainage augmente, l'érosion chimique et la consommation de CO₂ augmentent, mais à débit égal les flux de CO₂ (F_{CO_2}) sont plus importants pour les roches carbonatées que pour les roches silicatées (fig. 17 a). On retrouve l'influence prépondérante du drainage et de la lithologie sur l'érosion chimique, déjà soulignée par MEYBECK (1987), PROBST (1992) et PROBST *et al.* (1992 a). Ces paramètres sont également les facteurs principaux qui contrôlent l'intensité de l'érosion mécanique, notamment en région méditerranéenne (PROBST et AMIOTTE SUCHET, 1992 b).

Pour chaque type de roche on peut calculer un indice relatif de consommation de CO₂ (I_{CO_2}) sur le même modèle que l'indice relatif d'érosion chimique (I_E) déterminé par MEYBECK (1987) (tabl. 7). I_{CO_2} est égal au flux moyen de CO₂ consommé par un type de roche donné, rapporté au flux moyen de CO₂ consommé par les roches plutoniques et métamorphiques, prises comme référence car ce sont les roches les moins sensibles à l'érosion chimique et celles qui consomment le moins de CO₂ (tabl. 7).

a) Les roches magmatiques et métamorphiques

L'altération des basaltes est deux fois plus consommatrice de CO₂ que l'altération des roches volcaniques acides, qui consomme elle-même deux fois plus de CO₂ que l'altération des roches du bouclier (fig. 17 b). De telles différences entre les basaltes et les roches volcaniques acides peuvent être expliquées par une plus forte proportion de minéraux ferromagnésiens (olivine et pyroxènes) dans les basaltes, minéraux dont la dissolution est plus rapide que celle des plagioclases ou des feldspaths (MADÉ, 1991). Quant à la différence de consommation de CO₂ entre roches volcaniques acides et roches plutoniques et métamorphiques, elle peut s'expliquer de deux façons : (i) les minéraux des roches volcaniques acides sont plus petits et moins bien cristallisés que ceux des roches plutoniques, ce qui les rend plus fragiles face à l'érosion chimique, (ii) les roches volcaniques acides, formant des cratères et des coulées de lave, sont plus perméables et beaucoup plus

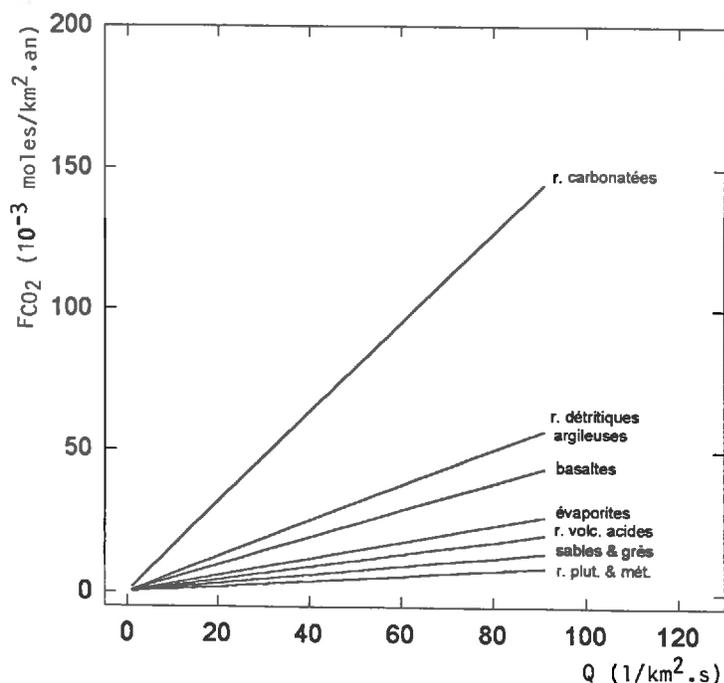


Fig.16 - Représentation graphique des modèles ajustés aux relations entre le flux de CO₂ consommé par érosion chimique (F_{CO_2}) et le débit (Q) des ruisseaux pour les 7 principaux types de roches définis dans le tableau 7.

Tableau 7 – Caractéristiques (N,a,r,s) des modèles ajustés aux relations entre le flux de CO₂ consommé par érosion chimique (F_{CO₂}) et le débit (Q) pour chaque type de roche. Valeurs des indices d'érosion chimique et de consommation de CO₂.

types de roches	composition lithologique	Relation F _{CO₂} -Q (2)				Indices	
		N (1)	coefficient a de F _{CO₂} =aQ	r (3)	s (4)	I _E (5)	I _{CO₂}
roches plutoniques et métamorphiques	granites, gneiss, micaschistes, schistes	41	0,095	0,92	1	1,0	1,0
roches volcaniques acides	rhyolites, andésites, trachy-andésites, ordanchites	22	0,222	0,98	1	–	2,3
basaltes	basaltes	18	0,479	0,98	1	–	5,0
sables et grès	sables, sables argileux, grès, grès ferrugineux, grès quartzeux	47	0,152	0,71	1	1,3	1,5
roches détritiques argileuses	schistes houillers et gréseux, schistes lustrés, argiles, grès argileux, gaizes	34	0,627	0,95	1	2,5	6,6
roches carbonatées	calcaires, craies, calcaires dolomitiques, cailloutis calcaires, marnes	19	1,586	0,98	1	12,0	16,7
roches évaporitiques	marnes à gypse et/ou à halite	9	0,293	0,99	1	40–80	3,1

(1) Nombre de bassins ; (2) F_{CO₂} en 10⁻³ moles/km².s, Q en l/km².s ; (3) coefficient de corrélation de Pearson ; (4) seuil de signification (%) ; (5) indice relatif d'érosion chimique (MEYBECK, 1987), I_E = taux d'érosion de la roche/taux d'érosion des roches granitiques. 1 l/km².s est équivalent à 31,5 mm/an.

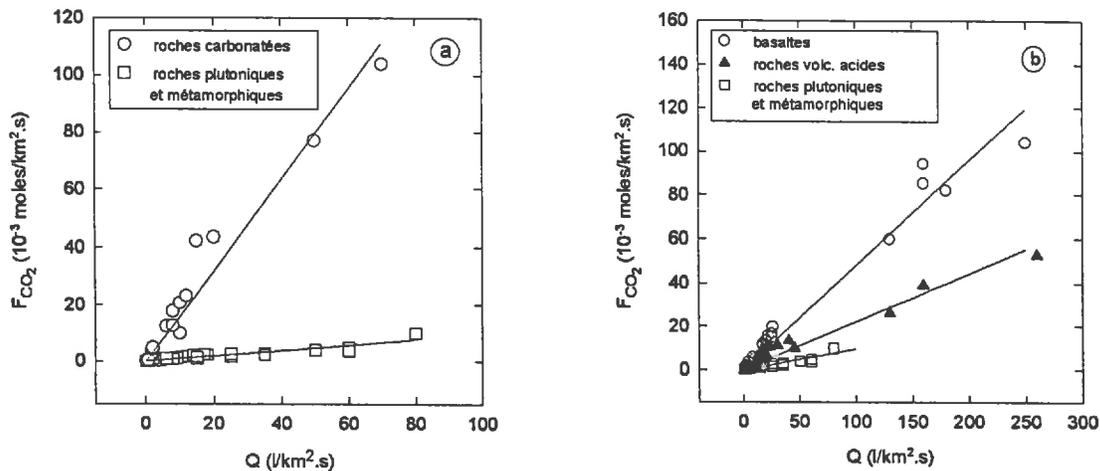


Fig.17 – Relations entre le flux de CO₂ consommé par érosion chimique (F_{CO₂}) et le débit (Q) des ruisseaux (a) pour les bassins versants sur roches carbonatées et sur roches plutoniques et métamorphiques et (b) pour les bassins versants sur basaltes, roches volcaniques acides et roches plutoniques et métamorphiques.

exposées aux intempéries que les roches plutoniques et métamorphiques. Ces résultats sont en contradiction avec ceux de BLUTH et KUMP (1994) qui déterminent des flux moyens de bicarbonates issus de l'altération de basaltes supérieurs ou égaux à ceux issus de l'altération des granites.

b) Les roches détritiques argileuses

Les roches détritiques argileuses montrent le I_{CO_2} le plus fort après les roches carbonatées. On ne peut pas exclure, dans ce type de roches, la présence de minéraux carbonatés, qui pourrait expliquer la forte valeur de I_{CO_2} . Ainsi, MEYBECK (1986) classe certaines de ces roches, comme les gaizes et les schistes lustrés, dans les roches détritiques carbonatées en se basant sur le rapport ionique Ca^{++}/Na^+ des eaux qui les drainent. Cependant, en ce qui concerne la relation F_{CO_2} -débit, nous n'avons pas observé de différence entre les roches détritiques carbonatées et non carbonatées définies par MEYBECK (1986). De plus, le rapport Ca^{++}/Na^+ des eaux drainant les roches détritiques dites carbonatées reste assez faible (entre 5 et 25) comparé à celui des roches carbonatées telles que les marnes ou les calcaires (de 50 à 200 ; MEYBECK, 1986), et les minéraux carbonatés ne peuvent être présents qu'en faible quantité. Ainsi, pour GARRELS et MACKENZIE (1971) les "shales" ou schistes argileux contiennent en moyenne 6 % de $CaCO_3$ normatif, les schistes 3 % et les pélites 5 %. La quantité de minéraux carbonatés présents dans les roches détritiques argileuses reste donc faible et leur dissolution devrait finalement modifier assez peu le flux de CO_2 calculé. La forte consommation de CO_2 sur ces roches peut s'expliquer par une fracturation et une perméabilité importantes de ces roches, favorisant le contact eau-minéral.

c) Les sables et les grès

Les grès, associés aux sables, montrent un I_{CO_2} très faible (le plus faible après les roches plutoniques et métamorphiques) car ils sont essentiellement composés de quartz dont la dissolution est très difficile et ne consomme pas de CO_2 (GARRELS et MACKENZIE, 1971). Le CO_2 consommé provient alors de la dissolution des autres minéraux silicatés peu nombreux.

d) Les roches carbonatées et les évaporites

Les roches carbonatées sont celles qui utilisent le plus de CO_2 , soit près de 17 fois plus que les granites (fig. 17 a). Cette forte consommation de CO_2 est justifiée par la très forte solubilité des minéraux carbonatés comme la calcite. Les marnes, qui contiennent des minéraux argileux en quantité non négligeable, sont confondues avec les calcaires et les craies dans la relation $F_{CO_2} = f(Q)$.

Les évaporites consomment peu de CO_2 malgré leur forte contribution au flux d'érosion chimique car la dissolution des minéraux sulfatés comme le gypse, ou des chlorures comme la halite, n'utilise pas de CO_2 . On remarquera enfin que la relation $F_{CO_2} = f(Q)$ n'est basée que sur 9 bassins (tabl. 7), et nous n'accorderons qu'une confiance limitée à cette relation.

2. Conséquence : variabilité spatiale de la consommation de CO_2

L'indice de consommation de CO_2 (I_{CO_2}) nous renseigne sur la forte variabilité de la consommation de CO_2 par érosion chimique d'une roche à l'autre. L'influence de la lithologie combinée à celle du drainage peut provoquer de très fortes variations dans la consommation de CO_2 . En considérant que le drainage et la lithologie sont les deux facteurs principaux de la consommation de CO_2 par érosion chimique et que l'influence d'autres facteurs comme la température ou la végétation sont négligeables, on peut extrapoler les relations définies en climat tempéré à d'autres climats. En utilisant les relations du tableau 7, nous avons calculé le flux moyen de CO_2 consommé par l'altération chimique de chaque type de roche pour les 12 principaux types morphoclimatiques observés à la surface du globe et définis par MEYBECK (1979). Les résultats de ce calcul, présentés dans le tableau 8, montrent la très forte variabilité de la consommation de CO_2 . Celle-ci fluctue de $0,05 \cdot 10^{-3}$ moles/ $km^2 \cdot s$ pour l'altération de roches cristallines sous climat aride à plus de $60 \cdot 10^{-3}$ moles/ $km^2 \cdot s$ pour l'altération de roches carbonatées sous climat tempéré très humide. On remarque également que l'altération de roches volcaniques acides sous climat très humide (drainage de 30 à 40 l/ $km^2 \cdot s$) consomme autant de CO_2 que l'altération de roches carbonatées sous climat plus sec (drainage

Tableau 8 – Flux moyens de CO₂ consommé par l'altération chimique des principaux types de roches affleurant à la surface du globe pour les 12 types morphoclimatiques définis par MEYBECK (1979).

	Q* (l/s.km ²)	flux de CO ₂ consommé (10 ⁻³ moles/km ² .s) par type de roche						
		roches plut. et métam.	roches volc. acides	basaltes	sables et grès	roches détrit. argil.	roches carbo- natées	roches évapo- ritiques
toundra et taïga	6,3	0,60	1,4	3,02	0,98	3,95	9,99	1,85
taïga humide	12,6	1,20	2,80	6,03	1,97	7,90	19,98	3,69
taïga très humide	34	3,23	7,55	16,29	5,30	21,32	1,59	9,96
tempéré très humide	40	3,80	8,88	19,16	6,24	25,08	63,44	11,72
tempéré humide	12,3	1,17	2,73	5,89	1,92	7,71	19,51	3,60
tempéré	6,1	0,58	1,35	2,92	0,95	3,82	9,67	1,79
tempéré semi-aride	3,7	0,35	0,82	1,77	0,58	2,32	5,87	1,08
aride	0,5	0,05	0,11	0,24	0,08	0,31	0,79	0,15
tropical contrasté	5,1	0,48	1,13	2,44	0,80	3,20	8,09	1,49
tropical humide	11,4	1,08	2,53	5,46	1,78	7,15	18,08	3,34
trop. très hum. (plaine)	31	2,94	6,88	14,84	4,84	19,44	49,17	9,08
trop. très hum. (montagne)	36	3,42	7,00	17,24	5,62	22,57	57,10	10,54

de 5 à 10 l/km².s). Enfin, le tableau 8 montre que la variabilité induite par le climat (c'est-à-dire le drainage) est plus forte que la variabilité induite par la lithologie.

III – CONCLUSIONS

Le flux de CO₂ d'origine atmosphérique consommé par l'altération chimique des roches est principalement influencé par l'intensité du drainage et par la nature de la roche. On a ainsi défini 7 principaux types de roches représentatifs de l'ensemble des roches affleurant à la surface des continents. Pour chaque type de roche, on a pu mettre en évidence des relations linéaires simples entre le flux de CO₂ consommé et le débit, en utilisant des données déjà publiées sur plus de 200 petits bassins versants monolithologiques. Les types de roches définis sont, par ordre croissant de consommation de CO₂ : les roches plutoniques et métamorphiques, les sables et les grès, les roches volcaniques acides, les évaporites, les basaltes, les roches détritiques argileuses, les roches carbonatées. On a alors déterminé, pour chaque type de roche, un indice de consommation de CO₂ (I_{CO₂}). Cet indice varie de 1,6 pour les grès, à 17 pour les roches carbonatées, et il est deux fois plus fort pour les basaltes que pour les roches volcaniques acides. Enfin, les roches détritiques argileuses montrent le I_{CO₂} le plus élevé après les roches carbonatées.

Nous avons ensuite appliqué les modèles $F_{CO_2} = f(Q)$ aux différentes régions morphoclimatiques du globe. La consommation de CO₂ varie de 0,05.10⁻³ moles/km².s à plus de 60.10⁻³ moles/km².s selon le climat et le type de roche. D'autre part, la variabilité induite par le climat est plus forte que celle induite par la lithologie.

Dans le chapitre V, nous appliquerons les modèles $F_{CO_2} = f(Q)$ aux bassins de l'Amazone, du Congo et de la Garonne, et nous comparerons les résultats ainsi obtenus aux données de terrain, de façon à valider ces modèles sous différents climats. L'objectif final est d'appliquer les modèles proposés dans cette étude à l'ensemble des surfaces continentales, pour estimer et modéliser le flux de CO₂ consommé par érosion chimique à l'échelle globale.

Chapitre III

BILAN ET MODÉLISATION DE LA CONSOMMATION DE CO₂ PAR ÉROSION CHIMIQUE SUR LES GRANDS BASSINS FLUVIAUX

La mesure des transports dissous par les fleuves est l'une des meilleures façons d'estimer la quantité de matière arrachée aux continents par l'érosion chimique. Les flux de matière minérale dissoute exportés par les fleuves vers les océans sont en grande partie composés des produits de l'altération des roches et du CO₂ d'origine atmosphérique exporté sous forme d'ions bicarbonates. Il faut ajouter aussi les apports de matière par les pluies, les rejets d'origine anthropique. La contribution du CO₂ atmosphérique au flux total de bicarbonates est comprise entre 50 et 100 %, le reste provenant de la mise en solution des minéraux carbonatés (voir chapitre I). Les deux méthodes le plus souvent utilisées pour estimer cette contribution du CO₂ au flux de bicarbonates ont été décrites dans le chapitre II. La première méthode consiste à décomposer les flux d'éléments majeurs dissous exportés par les fleuves ; elle a été utilisée par GARRELS et MACKENZIE (1971), HOLLAND (1978), MEYBECK (1979), BERNER *et al.* (1983), WOLLAST et MACKENZIE (1983) à l'échelle globale et par PROBST *et al.* (1994) à l'échelle des grands bassins fluviaux du Congo et de l'Amazonie. La seconde méthode consiste à modéliser les flux d'érosion chimique à partir de données hydrogéochimiques sur des bassins versants monolithologiques ; elle a été utilisée par MEYBECK (1987) à l'échelle globale et par NKOUNKOU et PROBST (1987) sur le bassin du Congo.

Dans le chapitre II nous avons montré, à l'échelle de petits bassins versants monolithologiques, comment le flux de CO₂ consommé par érosion chimique était en relation avec la nature de la roche et l'intensité du drainage. Dans ce chapitre, nous estimerons la quantité de CO₂ consommée par érosion chimique à l'échelle des grands bassins fluviaux, selon une méthode adaptée basée sur la décomposition des flux d'éléments majeurs dissous. Nous utiliserons alors ces résultats pour estimer le flux de CO₂ consommé à l'échelle globale. Enfin, nous tenterons de définir quels sont les principaux facteurs environnementaux qui contrôlent cette consommation de CO₂.

I – LES DONNÉES UTILISÉES DANS CETTE ÉTUDE

Afin d'étudier les mécanismes de l'érosion chimique à l'échelle globale, PROBST (1992) met en relation les flux des éléments majeurs transportés en solution avec différents paramètres d'état de surface (pente, altitude moyenne, couverture végétale...) et avec différentes variables hydroclimatiques (précipitations, drainage, température) sur 45 grands bassins fluviaux. Ces derniers avaient déjà été utilisés par PINET et SOURIAU (1988) pour établir des relations entre le transport en suspension et l'altitude des bassins. Les 45 bassins fluviaux (fig. 18) représentent 34 % de la surface totale des continents et 43 % des surfaces continentales exoréiques, c'est-à-dire drainées vers les océans. Ils sont répartis sur l'ensemble des continents et sous toutes les latitudes. L'approche développée par PROBST (1992) et dans les DEA de DUBUS (1989) et MOMBOISSE

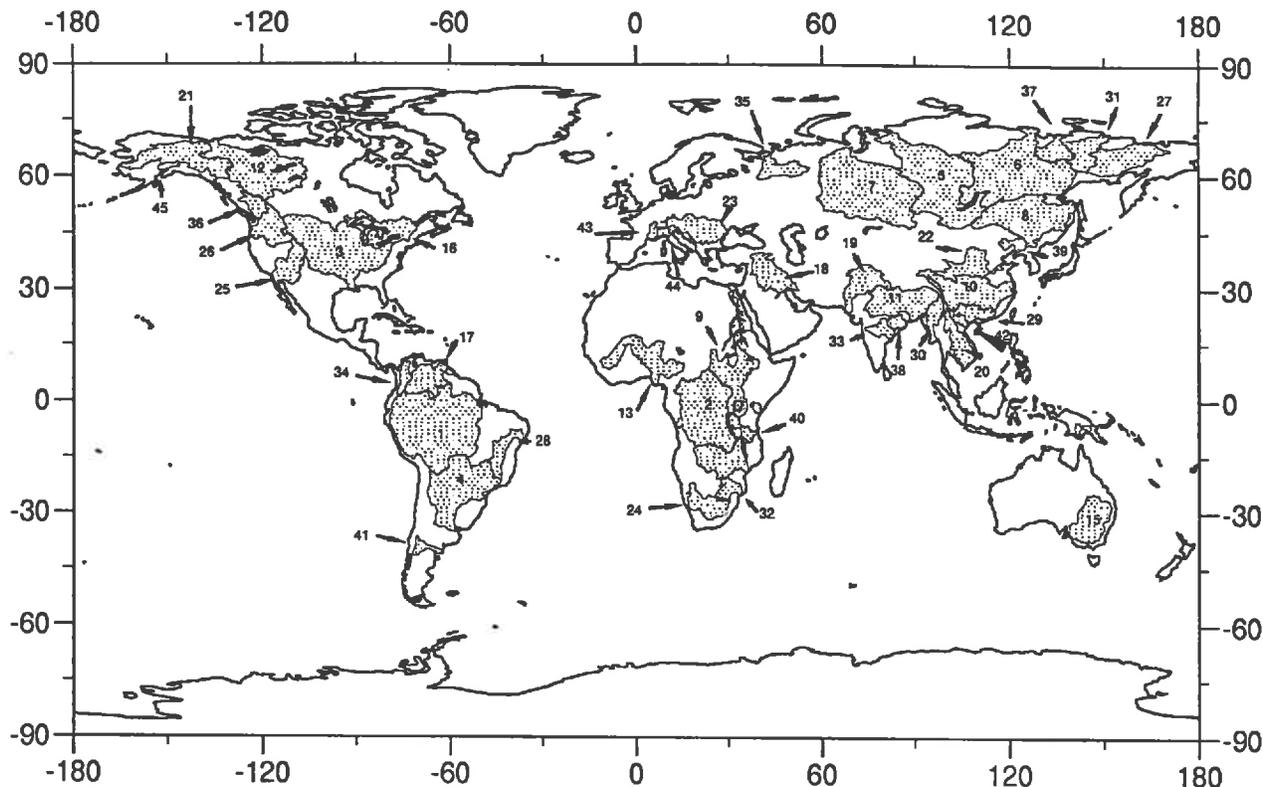


Fig.18 – Localisation des 45 grands bassins fluviaux sélectionnés pour cette étude (les numéros des bassins font référence aux numéros donnés dans le tableau 9).

(1990) sur les grands bassins fluviaux est reprise dans ce travail, où de nouveaux paramètres d'état de surface sont définis (tabl. 9) et où les données de transport en solution sont mises à jour (tabl. 13).

A – FACTEURS DE L'ENVIRONNEMENT

1. Paramètres déjà acquis

Plusieurs paramètres, concernant la couverture végétale du globe ainsi que la pente des terrains, ont déjà été acquis lors des travaux dirigés par J.L. PROBST (tabl. 10), notamment dans les DEA de DUBUS (1989) et MOMBOISSE (1990) et publiés dans PROBST (1992). Les paramètres morphoclimatiques moyens des bassins versants, tels que la pluviosité moyenne annuelle, la température moyenne annuelle, l'altitude moyenne et la longueur du fleuve, ont été calculés par PINET et SOURIAU (1988).

2. La lithologie

a) Paramétrisation de la lithologie

Comme nous l'avons vu au chapitre II, la lithologie est un paramètre important qui contrôle la consommation de CO₂ par érosion chimique, qui devrait être favorisée par la présence de roches carbonatées et/ou de roches détritiques argileuses (ou shales) sur un bassin versant. La lithologie étant un paramètre qualitatif, nous proposons de la caractériser par les variables (Icarb) et (Ishal) (tabl. 10 et tabl. 9). Pour cela, nous

Tableau 9 - Valeurs moyennes des variables hydroclimatiques et des paramètres d'état de surface des 45 grands bassins fluviaux sélectionnés pour cette étude. Ces valeurs ont été déterminées (1) par PINET et SOURIAU (1988), (2) par PROBST (1992) et (3) dans cette étude.

n° carte	S ⁽¹⁾ 10 ⁶ km ²	L ⁽¹⁾ km	P ⁽¹⁾ mm/an	T ⁽¹⁾ °C	D ⁽¹⁾ mm/an	Iv ⁽²⁾ %	Ic ⁽²⁾ %	Ips ⁽²⁾	H ⁽¹⁾ m	Pt ⁽²⁾ %	Icarb ⁽³⁾ %	Ishal ⁽³⁾ %	Rsil ⁽³⁾	Rpyr ⁽³⁾
1	5.908	6299	2030	27	1066	5.7	0.2	5.7	467	5.61	1.5	56.0	0.90	0.18
8	1.923	4352	380	-1	169	5.4	11.0	5.0	585	7.11	0.0	27.7	1.08	0.16
25	0.715	2317	250	16	28	3.6	0.0	3.6	1537	18.68	0.0	0.0	1.23	0.17
26	0.67	1850	640	10	375	5.1	7.2	4.8	1293	23.41	0.0	20.9	1.00	0.10
2	3.698	4370	1520	24	352	5.0	13.0	4.8	751	3.51	14.1	0.0	1.38	0.20
23	0.778	2859	760	10	265	5.5	46.0	3.6	501	11.99	44.0	34.1	0.52	0.14
36	0.247	1375	760	4	453	5.8	5.7	5.6	1140	23.16	0.0	51.1	0.96	0.16
11	1.669	5401	2030	18	582	4.8	33.2	3.7	1535	1.4	23.4	25.5	1.07	0.18
33	0.322	1448	1020	29	261	5.3	34.4	4.1	413	4.27	0.0	1.8	0.99	0.10
22	0.814	4668	760	13	65	4.0	34.7	2.7	1860	11.69	20.8	0.0	1.48	0.16
42	0.165	1200	1520	24	745	5.6	23.0	4.7	987	13.93	52.0	6.9	1.32	0.17
31	0.356	1789	200	-12	166	4.1	0.0	4.1	713	12.52	0.0	45.5	0.93	0.22
19	0.916	2896	380	24	260	3.2	24.4	3.0	1807	16.3	44.6	5.1	1.37	0.17
30	0.414	2092	1780	24	1034	5.7	12.5	5.3	758	16.7	5.0	21.1	1.12	0.23
27	0.658	2599	220	-9	205	4.9	0.0	4.9	557	11.59	0.0	13.8	1.19	0.23
6	2.438	4269	250	-9	219	5.6	0.0	5.6	600	8.34	7.3	29.6	1.09	0.16
39	0.191	1438	760	7	31	4.6	39.3	3.0	496	6.12	0.0	25.5	1.15	0.19
32	0.342	1770	760	21	15	3.3	31.1	2.5	766	4.68	8.2	0.0	1.34	0.13
12	1.616	4240	380	-4	154	5.2	0.0	5.2	618	9.75	11.3	64.8	0.77	0.18
34	0.276	1537	1270	24	859	5.6	3.4	5.5	1203	24.9	8.4	20.4	1.11	0.13
38	0.195	1295	1270	24	344	5.1	33.3	4.3	330	4.7	0.0	3.8	1.46	0.15
20	0.849	4023	1270	21	624	4.7	17.8	4.3	875	8.71	22.2	52.2	0.63	0.16
3	3.265	3778	760	13	178	5.2	57.8	2.8	661	5.05	19.4	43.2	0.9	0.20
15	1.14	2589	760	18	19	4.0	21.2	3.2	243	2.72	0.3	50.6	0.91	0.15
41	0.178	729	250	16	169	3.9	0.0	3.9	745	8.57	2.7	0.0	1.42	0.17
13	1.55	4183	1140	29	124	3.6	18.0	3.0	364	2.87	2.7	0.0	1.32	0.14
9	1.905	6689	510	27	47	3.8	16.4	3.4	856	5.47	4.6	0.0	1.32	0.14
7	2.249	3680	380	-1	186	5.0	21.9	4.3	208	2.18	4.9	66.0	0.75	0.20
24	0.726	2092	380	16	15	3.1	19.2	2.5	1240	4.33	2.4	0.0	1.17	0.19
17	1.02	2061	1400	24	1078	5.3	0.6	5.3	373	6.46	0.0	42.1	1.03	0.17
4	2.868	4499	1140	21	164	4.8	5.7	4.5	557	4.65	0.6	15.8	0.91	0.13
44	0.07	652	760	13	657	5.8	33.6	4.1	793	25.9	0.0	100.0	0.50	0.19
43	0.099	813	1020	13	495	6.0	54.2	3.3	754	23.05	22.4	77.6	0.50	0.19
40	0.18	1237	1140	21	50	4.0	12.7	3.6	912	9.52	0.0	0.0	1.34	0.19
28	0.63	3199	1020	24	154	4.1	0.0	4.1	614	4.15	36.1	4.9	1.38	0.17
35	0.262	740	500	2	416	6.0	3.6	5.8	119	1.55	6.8	91.6	0.51	0.19
16	1.099	3057	890	4	376	6.7	20.4	5.7	271	3.96	51.5	8.5	1.32	0.16
45	0.051	600	800	-1	784	5.4	0.0	5.4	1031	23.97	0.0	80.3	0.70	0.18
18	0.923	2800	250	21	50	2.8	19.1	2.5	652	9.69	44.0	27.8	0.85	0.18
29	0.464	1957	1780	21	651	6.0	36.0	4.2	670	8.32	52.2	0.0	1.46	0.17
37	0.24	1368	130	-15	121	4.9	0.0	4.9	703	12.95	0.0	31.3	1.05	0.22
10	1.827	5525	1270	16	508	5.4	30.0	4.0	1601	13.56	66.6	6.5	1.27	0.17
5	2.553	4129	380	-7	220	5.6	0.0	5.6	741	8.87	2.4	22.6	0.86	0.12
21	0.833	3701	380	-4	252	5.3	0.0	5.3	727	14.52	0.0	85.8	0.64	0.18
14	1.42	2735	1020	21	157	4.2	22.4	3.5	1009	4.54	10.2	0.0	1.37	0.20

S: superficie du bassin versant
L: longueur du fleuve
P: précipitations moyennes annuelles
T: température moyenne annuelle de l'air
D: drainage moyen annuel
Iv: indice de végétation
Ic: intensité culturale
Ips: indice de protection des sols
Icarb: indice de drainage des surfaces carbonatées
Ishal: indice de drainage des surfaces de roches détritiques argileuses (shales)
Rsil: rapport moyen (Na+K)/(Ca+Mg) dans les eaux drainant les roches silicatées du bassin
Rpyr: rapport moyen SO₄(Ca+Mg+Na+K) dans les eaux drainant les roches silicatées du bassin

Tableau 10 – Description des différents paramètres d'état de surface des bassins déterminés par (1) DUBUS (1989) et PROBST (1992), (2) MOMBOISSE (1990) et PROBST (1992) et (3) ceux déterminés dans cette étude.

paramètre d'état de surface	description	sources	réf.
intensité culturale Ic (%)	pourcentage de surfaces cultivées	carte mondiale d'intensité culturale (Matthews, 1983) résolution 1° × 1°	(1)
indice de végétation Iv	regroupement des 32 types de végétation de la classification de l'UNESCO (1973) en 5 groupes classés par ordre croissant de protection des sols face à l'érosion (0 : déserts, 1 : cultures, 2 : toundra, 3 : steppes, 4 : savanes, 5 : prairies, 6 : forêts et taïga)	carte mondiale des types de végétation (Matthews, 1983) résolution 1° × 1°	(1)
indice de protection des sols Ips	indice tenant compte de la protection des sols par la végétation et par les cultures. $Ips = (Ic + (100 - Ic) \cdot Iv) / 100$	cartes mondiales des types de végétation et de l'intensité culturale (Matthews, 1983) résolution 1° × 1°	(1)
pente moyenne Pt (%)	moyenne des pentes des surfaces élémentaires de 5 minutes carrées	carte mondiale des pentes moyennes (Moore et Mark, 1986 USGS) résolution 5mn × 5mn	(2)
indice de drainage des surfaces carbonatées Icarb (%)	rapport entre le volume d'eau drainant les roches carbonatées et le volume d'eau drainant la totalité des roches du bassin	cartes mondiales des type de roche (d'après FAO-UNESCO 1971-1981) et du drainage (d'après Willmott <i>et al.</i> , 1984) / résolution 1° × 1°	(3)
indice de drainage des surfaces de roches détritiques argileuses (shales) Ishal (%)	rapport entre le volume d'eau drainant les shales et le volume d'eau drainant la totalité des roches du bassin	cartes mondiales des type de roche (d'après FAO-UNESCO 1971-1981) et du drainage (d'après Willmott <i>et al.</i> , 1984) / résolution 1° × 1°	(3)

avons déterminé pour chaque bassin les surfaces occupées par les différents types de roche et l'intensité du drainage sur ces surfaces, à partir des cartes décrites ci-dessous.

b) Carte de lithologie globale

Pour définir sur chaque bassin versant les surfaces occupées par les différents types de roche, nous avons construit, puis numérisé selon une résolution de 1° × 1°, une carte de lithologie pour l'ensemble des surfaces continentales, d'après les cartes lithologiques et géologiques publiées par FAO-UNESCO (1971-1981) pour chaque continent. La carte mondiale qui en résulte est présentée sur la figure 19. Six principaux types de roches sont distingués : les sables et les grès, les roches carbonatées, les roches détritiques argileuses (shales), les roches plutoniques et métamorphiques ou roches de bouclier, les roches volcaniques acides et les basaltes. Les proportions de ces différents types de roche affleurant à la surface des continents sont données dans les tableaux 11 et 12 respectivement pour les grands bassins fluviaux et pour l'ensemble des surfaces continentales.

Les proportions calculées pour l'ensemble des continents (tabl. 12) sont tout à fait comparables à celles données par BLATT et JONES (1975) sur la base des cartes géologiques et par MEYBECK (1987) à partir des données de BLATT et JONES (1975) et des volumes des grands types de roches déterminés par RONOV et YAROSHEVSKIY (1972 et 1976). Cependant, en ce qui concerne les roches sédimentaires détritiques, MEYBECK (1987) estime que la proportion de grès (16 %) est deux fois moins grande que celle des shales (34 %), alors

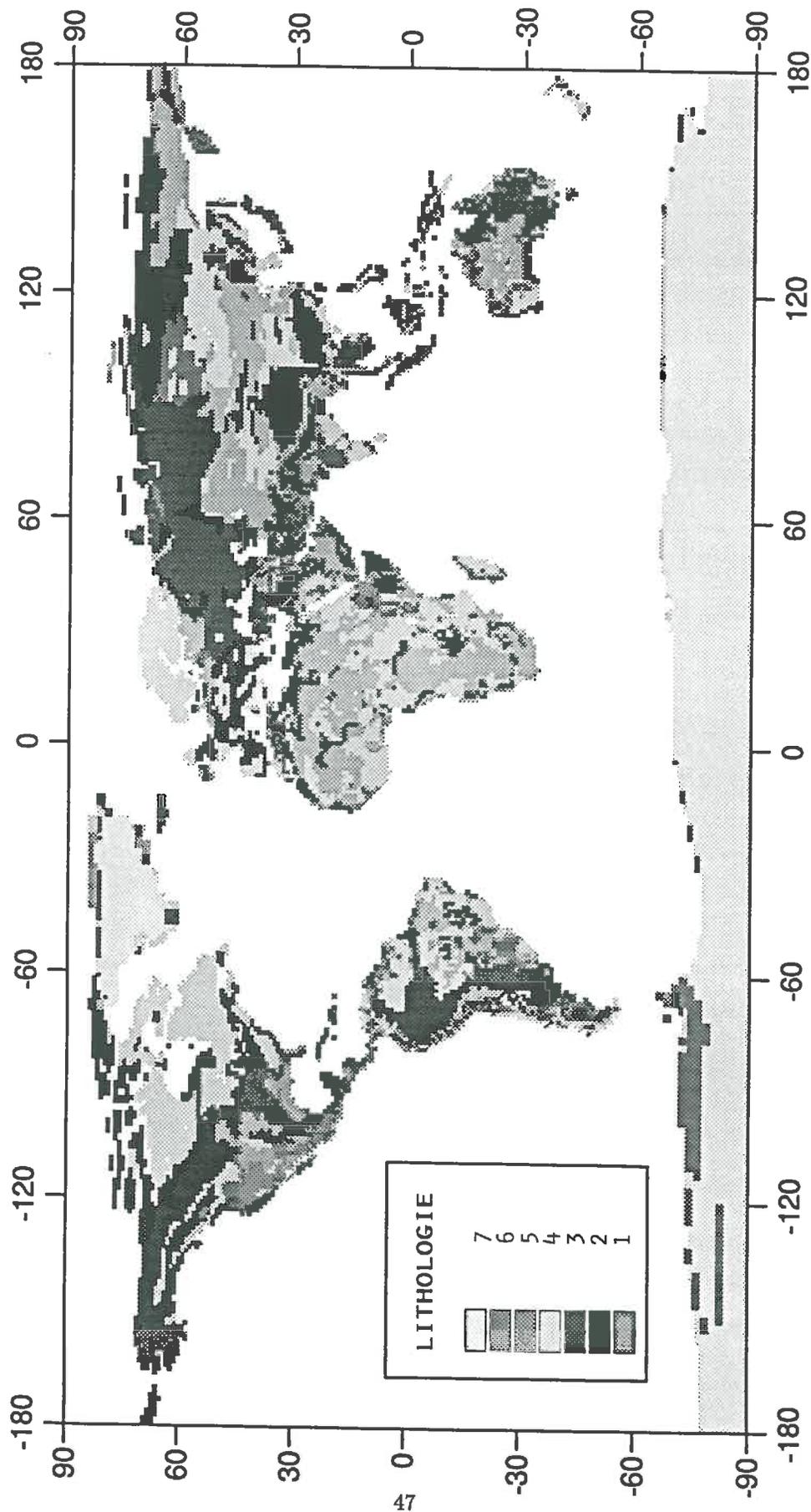


Fig.19 – Distribution globale des affleurements des principaux types de roches (résolution $1^\circ \times 1^\circ$). 1- sables et grès ; 2- roches carbonatées ; 3- roches détritiques argileuses (shales) ; 4- roches plutoniques et métamorphiques ; 5- roches volcaniques acides ; 6- basaltes ; 7- glacc.

Tableau 11 – Proportions des affleurements des différents types de roches sur les grands bassins fluviaux (en % de la surface totale du bassin).

	sables et grès	carbonates	r. détrit. argil. (shales)	r. pluton. et métamorph.	r. volcan. acides	basaltes
AMAZONE	16,56	3,93	50,55	26,91	2,05	0,00
AMOUR	22,67	0,00	30,28	40,73	0,00	6,32
COLORADO	48,29	0,00	0,00	17,22	34,49	0,00
COLUMBIA	4,02	0,00	7,37	31,06	41,75	15,79
CONGO	52,90	13,39	0,00	33,03	0,00	0,68
DANUBE	0,00	30,70	49,01	11,96	0,00	0,00
FRASER	0,00	0,00	60,84	22,91	16,25	0,00
GANGES-BRAHM.	17,80	13,38	38,52	23,29	0,00	7,01
GODAVARI	12,54	0,00	4,23	33,30	0,00	49,94
HUANGHO	16,18	16,98	0,00	66,84	0,00	0,00
HUNGHO	14,38	49,70	14,47	21,45	0,00	0,00
INDIGIRKA	61,77	0,00	38,23	0,00	0,00	0,00
INDUS	23,38	26,78	31,79	18,05	0,00	0,00
IRRAWADDI	67,43	10,76	19,14	2,67	0,00	0,00
KOLYMA	87,31	0,00	12,69	0,00	0,00	0,00
LENA	5,42	6,85	34,76	44,82	0,00	8,15
LIAO HE	49,97	0,00	27,14	18,45	0,00	4,45
LIMPOPO	12,80	22,44	0,00	51,78	0,00	12,98
MACKENZIE	0,00	13,93	62,93	23,14	0,00	0,00
MAGDALENA	22,69	13,70	18,09	18,21	27,31	0,00
MEKONG	9,88	18,69	61,25	1,41	1,46	7,30
MISSISSIPPI	27,44	18,01	44,38	9,37	0,81	0,00
MURRAY	0,00	0,90	74,59	18,22	2,73	3,57
NIGER	39,90	3,20	0,00	55,28	0,00	1,62
NIL	30,33	4,70	0,00	57,20	0,00	7,15
OB	28,28	4,51	63,17	3,57	0,00	0,47
ORANGE	62,49	12,02	0,00	22,55	0,00	2,94
ORENOQUE	9,18	0,00	47,09	38,00	0,00	5,73
PARANA	25,24	1,20	46,11	12,79	0,79	13,09
PO	0,00	0,00	100,00	0,00	0,00	0,00
RHONE	0,00	30,21	69,79	0,00	0,00	0,00
RIO NEGRO	20,20	0,00	13,21	32,91	26,89	6,80
RUFIJI	46,60	0,00	0,00	46,73	0,00	6,67
SAO FRANCISCO	12,81	38,14	5,47	43,58	0,00	0,00
SEVERNAIA DVI.	1,70	7,07	91,23	0,00	0,00	0,00
XI JIANG	7,61	62,25	0,00	30,14	0,00	0,00
ST LAURENT	0,00	48,20	9,60	42,20	0,00	0,00
SUSITNA	0,00	0,00	79,67	20,33	0,00	0,00
TANA	44,44	0,00	0,00	33,33	0,00	22,23
TIGRE-EUPHR.	18,35	55,50	22,89	0,00	2,16	1,09
YANA	70,48	0,00	29,52	0,00	0,00	0,00
YANGTZE KIANG	9,14	60,47	6,29	24,09	0,00	0,00
YENISEI	11,70	1,68	15,71	38,99	0,00	31,92
YUKON	0,00	0,00	81,45	18,55	0,00	0,00
ZAMBEZE	58,24	7,01	0,00	33,01	0,00	1,73

que nous déterminons des surfaces d'affleurement équivalentes pour ces deux types de roches (26 et 25 % respectivement). La comparaison de nos résultats avec ceux de BLUTH et KUMP (1991) montre des différences importantes (tabl. 12). BLUTH et KUMP (1991) reconstituent la distribution globale des grands types de roches par maille de 2° × 2°, par une procédure itérative à partir de cartes paléogéographiques globales. Leurs

Tableau 12 – Proportion des affleurements des différents types de roches à la surface des continents (en % de la surface totale des continents).

types de roches	affleurements (% des surfaces continentales)			
	ce travail	BLATT et JONES (1975)	MEYBECK (1987)	BLUTH et KUMP 1990
sables et grès	26	–	15,8	41
shales*	25	–	34,4	25
roches carbonatées	14	–	15,9	14
total roches sédimentaires	65	66	66,1	80
roches plutoniques et métamorphiques	27	26	26	8
roches volcaniques acides	2,9	–	3,75	–
basaltes	5,1	–	4,15	–
total roches volcaniques	8,0	8,0	7,9	12
total roches cristallines	35	34	33,9	20

* évaporites incluses

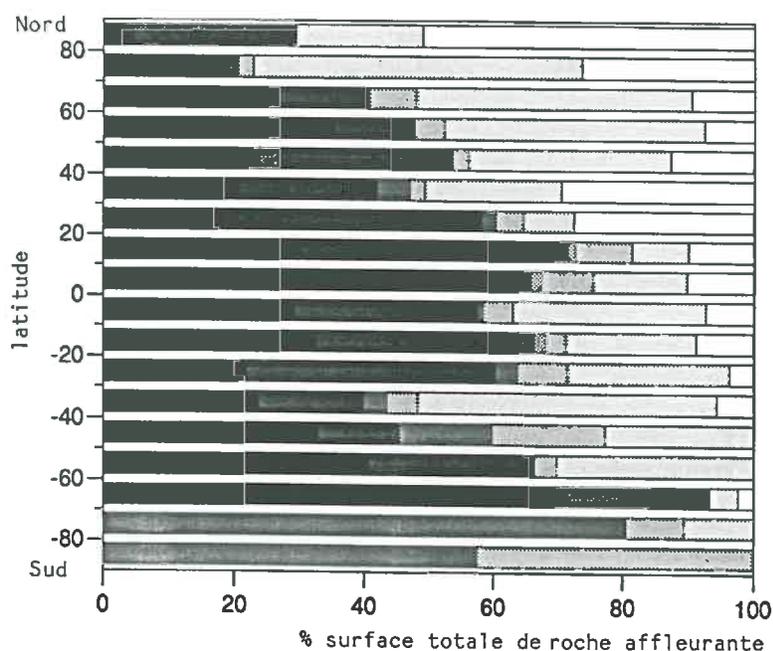


Fig.20 – Distribution latitudinale des affleurements continentaux des différents types de roche.

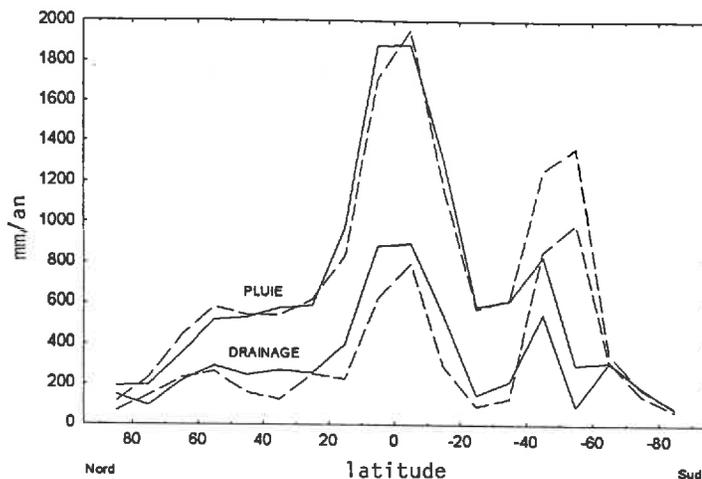
résultats sous-estiment nettement les surfaces occupées par les boucliers au bénéfice des roches sédimentaires détritiques.

La distribution latitudinale des types de roches (fig. 20), basée sur la carte réalisée dans ce travail, montre que les roches plutoniques et métamorphiques sont situées entre 50 et 70°N (boucliers canadien et scandinave), ainsi qu'aux latitudes équatoriales (boucliers sud-américain et africain) et de 60 à 70°S (pointe de l'Amérique du Sud). 87 % des roches carbonatées affleurent dans l'hémisphère Nord, essentiellement aux latitudes septentrionales et entre 20 et 40°N. Enfin, les roches détritiques (grès, sables et shales) sont présentes en quantités sensiblement équivalentes sous la plupart des latitudes.

3. Le drainage

Le volume d'eau drainant les roches carbonatées et les shales de chaque bassin est déterminé d'après les données issues des travaux de WILLMOTT *et al.* (1985), qui publient des cartes globales des valeurs moyennes

Fig.21 - Distribution latitudinale de l'intensité du drainage et des précipitations (d'après WILLMOTT *et al.*, 1985, trait continu et BAUGARTNER et REICHEL, 1975, tireté).



mensuelles des précipitations observées et de l'évapotranspiration théorique. Les données informatisées avec une résolution de $1^\circ \times 1^\circ$ nous ont été fournies par le NCAR (National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, USA). Les précipitations observées sont issues de l'interpolation des moyennes mensuelles interannuelles de 13 332 stations réparties à la surface des continents. L'évapotranspiration est calculée par WILLMOTT *et al.* (1985) sur la base de la formule de Thornwaite (dont les principaux paramètres sont la température de l'air et la pluviosité) et d'un modèle hydrologique tenant compte de la fonte du manteau neigeux et de la capacité de rétention en eau des sols. Nous avons alors calculé le drainage théorique qui correspond à la différence entre les précipitations et l'évapotranspiration théorique. Lorsque cette différence est négative, le drainage est considéré comme nul. La carte du drainage moyen annuel sur les continents est présentée sur la figure 22. Nous avons comparé la distribution latitudinale du drainage moyen annuel calculé d'après les données de WILLMOTT *et al.* (1985) avec celle du drainage moyen annuel déterminé par BAUMGARTNER et REICHEL (1975) d'après des données de débit de très nombreux cours d'eau répartis à la surface du globe (fig. 21). On peut remarquer sur la figure 21 que les valeurs de drainage sont similaires quelle que soit la latitude, sauf pour la tranche de latitude correspondant à la pointe de l'Amérique du Sud (40 à 60°S), où la différence observée entre les valeurs de drainage est également présente lorsqu'on compare les précipitations.

B - LES FLUX D'ÉLÉMENTS MAJEURS DISSOUS

Les flux d'éléments majeurs en solution sont présentés pour chaque fleuve dans le tableau 13. Ces flux sont calculés d'après les valeurs de concentrations et de débits des fleuves tirés de différentes sources. Pour le Congo, les données ont été acquises dans le cadre du programme PIRAT-GBF (Programme Interdisciplinaire de Recherche sur les Environnements Péri-atlantiques - Grands Bassins Fluviaux, INSU/CNRS et ORSTOM), à raison d'un échantillon par mois de 1987 à 1989. Pour les autres fleuves, les données sont tirées de la littérature, notamment de LIVINGSTONE (1963), MEYBECK (1979, 1984) ainsi que des travaux du programme SCOPE "Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers" (DEGENS, 1982 ; DEGENS *et al.*, 1983, 1985, 1987, 1988). Les données correspondent aux stations de prélèvement situées le plus à l'aval possible sur les fleuves lorsqu'elles existent, de façon à rendre compte au maximum des flux exportés en solution vers l'océan. A chaque fois que cela est possible, les concentrations sont des moyennes annuelles ou interannuelles pondérées par le débit. On calcule alors le flux moyen de chaque élément en faisant le produit de la concentration moyenne par le débit moyen interannuel du fleuve (Q_t) donné par PINET et SOURIAU (1988). Les flux annuels ainsi calculés (tabl. 13) sont représentatifs des apports moyens aux océans par les fleuves.

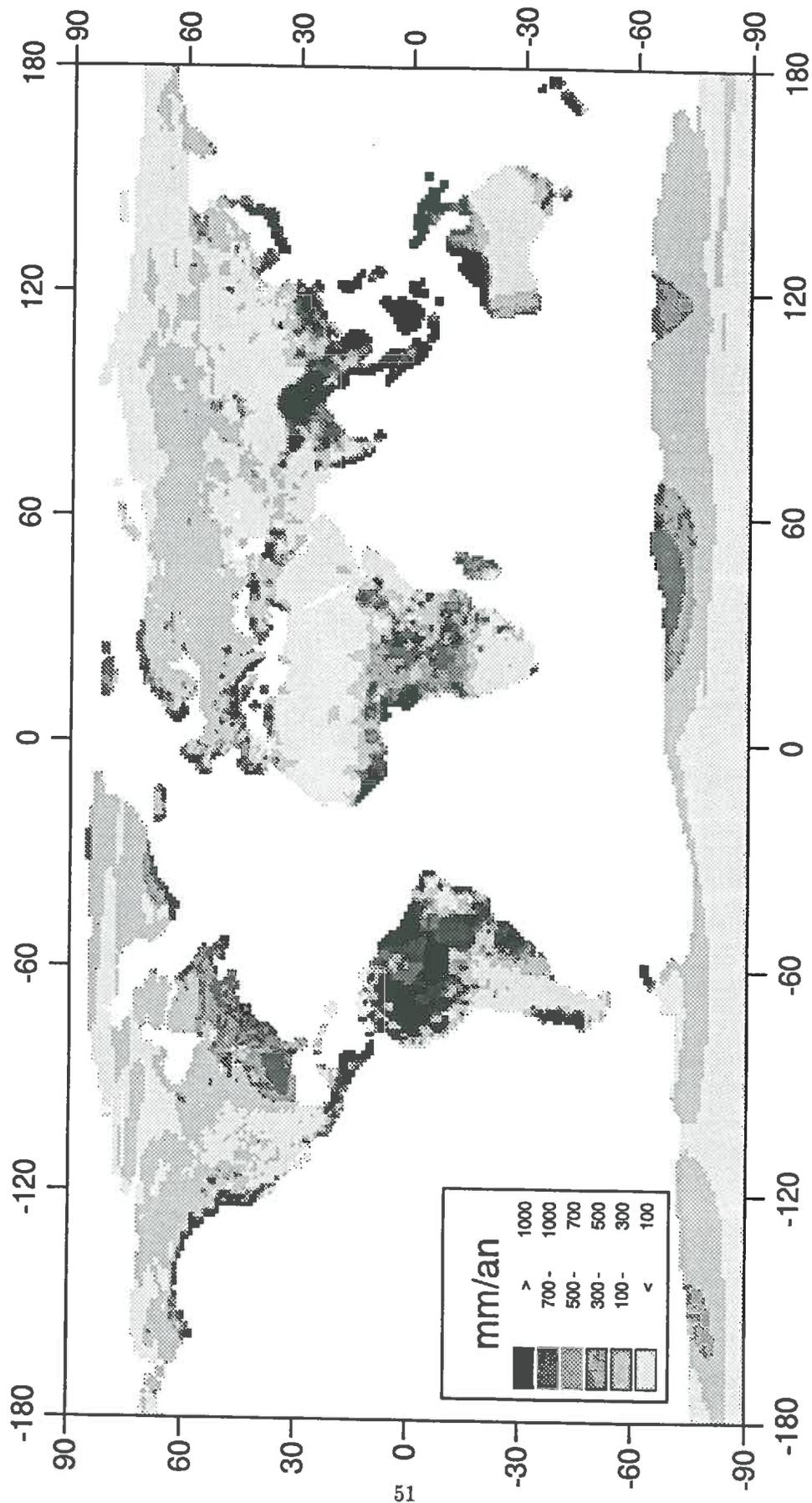


Fig.22 - Distribution globale de l'intensité du drainage moyen annuel (mm/an) d'après WILLMOTT et al. (1985).

Tableau 13 – Flux moyens annuels totaux d'éléments majeurs transportés en solution par les grands fleuves mondiaux.

	S 10 ⁶ km ²	Qt km ³ /an	flux de matière en solution transporté par les fleuves (10 ⁶ t/an)								réf.
			SiO ₂	Ca ⁺⁺	Mg ⁺⁺	Na ⁺	K ⁺	Cl ⁻	SO ₄ ⁻⁻	HCO ₃ ⁻	
AMAZONE	5,91	6300	-	42,84	6,93	14,49	6,30	17,01	35,91	166,32	(1)
AMOUR	1,92	325	-	3,29	0,84	2,65	0,37	0,75	1,64	13,88	(2)
COLORADO	0,71	20	0,20	1,80	0,60	2,28	0,12	2,06	6,26	2,94	(3)
COLUMBIA	0,67	251	-	5,21	1,36	1,83	0,29	0,90	2,60	20,62	(3)
CONGO	3,70	1300	13,39	3,08	1,79	2,59	1,82	1,82	1,52	17,46	(4)
DANUBE	0,78	206	1,03	10,09	1,85	4,45	0,52	4,02	4,94	39,14	(5)
FRASER	0,25	112	0,55	1,79	0,24	0,17	0,08	0,01	0,90	6,72	(2)
GANGES-BRAHM.	1,67	971	-	22,62	4,37	3,69	3,30	4,66	5,73	90,40	(5)
GODAVARI	0,32	84	0,72	1,64	0,40	0,89	0,25	1,23	0,57	7,80	(6)
HUANGHE	0,81	53	0,27	2,32	1,26	2,73	0,16	2,75	4,00	10,47	(7)
HUNGHO	0,16	123	0,57	2,04	1,00	1,36	0,18	1,03	1,76	10,05	(8)
INDIGIRKA	0,35	59	-	-	-	-	-	-	-	-	
INDUS	0,92	238	0,73	7,89	2,27	6,58	1,62	5,55	7,58	36,24	(9)
IRRAWADI	0,41	428	-	-	-	-	-	-	-	-	
KOLYMA	0,66	135	-	-	-	-	-	-	-	-	
LENA	2,44	533	-	9,59	2,03	8,80	1,22	8,10	11,30	35,39	(10)
LIAOHE	0,19	6	-	-	-	-	-	-	-	-	
LIMPOPO	0,34	5	-	0,10	0,06	0,10	0,02	0,07	0,03	0,72	(10)
MACKENZIE	1,62	249	0,87	8,96	1,94	1,74	0,20	1,89	7,82	26,39	(11)
MAGDALENA	0,28	237	2,99	3,56	0,78	1,97	0,44	3,18	3,41	11,68	(5)
MEHANDI	0,19	67	0,61	0,70	0,64	0,68	0,10	0,98	2,10	4,10	(12)
MEKONG	0,85	530	4,69	7,53	1,70	1,91	1,06	2,81	2,01	30,69	(5)
MISSISSIPPI	3,26	580	-	23,64	6,58	12,48	1,82	14,58	31,35	72,95	(3)
MURRAY	1,14	22	-	0,46	0,37	2,22	0,13	3,76	0,84	2,07	(13)
NEGRO	0,18	30	0,49	0,65	0,13	0,85	0,05	0,60	1,31	2,13	(14)
NIGER	1,55	192	2,67	1,09	0,44	0,38	0,19	0,15	0,13	6,57	(15)
NIL	1,90	89	-	2,57	1,01	3,03	0,59	2,84	2,48	14,01	(16)
OB	2,25	419	-	7,98	1,61	1,80	0,38	0,85	3,10	32,72	(2)
ORANGE	0,73	11	0,18	0,20	0,09	0,15	0,02	0,12	0,08	1,18	(5)
ORENOQUE	1,02	1100	8,43	3,40	0,62	1,10	0,84	1,09	1,43	13,61	(17)
PARANA	2,87	470	-	3,59	0,95	2,29	1,07	2,32	1,94	17,95	(18)
PO	0,07	46	-	2,86	0,55	0,68	0,09	0,83	2,76	8,19	(19)
RHONE	0,10	49	-	3,48	0,32	0,56	0,11	1,10	2,25	8,75	(18)
RUFIJI	0,18	9	-	-	-	-	-	-	-	-	
SAO FRANCISCO	0,63	97	2,38	2,09	-	-	-	0,22	0,19	2,11	(20)
SEVERNAIA DVI.	0,26	109	-	4,51	1,02	1,28	0,18	1,53	5,13	13,30	(10)
ST LAURENT	1,10	413	-	12,32	3,13	4,44	0,52	8,79	10,82	36,96	(21)
SUSITNA	0,05	40	0,19	0,76	0,13	0,14	0,14	0,08	0,55	2,47	(3)
TIGRE	0,92	46	-	2,44	1,23	1,51	-	2,45	3,54	8,14	(2)
XI JIANG	0,46	302	1,96	11,63	1,38	0,40	0,26	0,37	2,32	40,20	(22)
YANA	0,24	29	-	0,24	0,06	0,01	0,00	0,04	0,08	0,92	(10)
YANGTZE	1,83	928	5,85	25,71	6,77	8,56	1,19	4,18	12,99	102,45	(23)
YENISEI	2,55	562	-	11,80	2,30	1,13	0,16	5,06	4,83	41,59	(24)
YUKON	0,83	210	-	6,92	1,31	0,64	0,31	0,22	2,76	23,71	(3)
ZAMBEZE	1,42	223	2,74	2,16	0,49	0,89	0,27	0,22	0,67	5,55	(5)

Références : (1) PROBST *et al.* (1994) - (2) MEYBECK (1984) - (3) USGS (annuel) - (4) PROBST *et al.* (1992 b) (PIRAT et PEGI) - (5) MEYBECK (1979) - (6) BIKSHAM et SUBRAMANIAN (1988) - (7) WEI-BIN *et al.* (1983) - (8) MING-HUI *et al.* (1982) - (9) ARAIN (1988) - (10) LIVINGSTONE (1963) - (11) REEDER *et al.* (1972) - (12) SUBRAMANIAN (1979) - (13) HERCZEG *et al.* (1993) - (14) DEPETRIS (1980) - (15) MARTINS (1983) - (16) - KEMPE (1983) - (17) PAOLINI *et al.* (1987) - (18) KEMPE (1982) - (19) PETTINE *et al.* (1985) - (20) PAREDES *et al.* (1983) - (21) COSSA et TREMBLAY (1983) - (22) QUNYING *et al.* (1987) - (23) WEI-BIN (1985) - (24) GITELSON *et al.* (1988).

II – DÉTERMINATION DU FLUX DE CO₂ CONSOMMÉ PAR ÉROSION CHIMIQUE SUR LES GRANDS BASSINS VERSANTS

La méthode que nous utiliserons ici pour calculer le flux de CO₂ consommé par érosion chimique a été décrite dans le chapitre II. Elle consiste à reconstituer la provenance minéralogique des flux d'éléments dissous à partir des flux de matière dissoute issus de l'érosion chimique. Nous considérons ici que les flux d'éléments majeurs en solution transportés par les fleuves ont deux origines : l'érosion chimique et les apports atmosphériques. Nous ne prendrons pas en compte les apports par les rejets anthropiques, bien qu'ils soient parfois importants pour certains grands fleuves tels que le Saint-Laurent (COSSA et TREMBLAY, 1983), le Mississippi ou le Rhin (MEYBECK, 1979). Cependant, les estimations des rejets d'origine anthropique pour chaque fleuve sont peu nombreuses et l'extrême variabilité spatio-temporelle de ces rejets interdit toute extrapolation d'un fleuve à l'autre. Dès lors, les flux d'érosion chimique sont calculés par différence entre les transports fluviaux en solution et les apports atmosphériques.

A – ESTIMATION DES APPORTS ATMOSPHÉRIQUES

L'estimation des apports atmosphériques pour chaque élément majeur (Xi) en solution est effectuée par l'intermédiaire des rapports moyens Xi/Cl des eaux de pluie déterminés par MEYBECK (1984) pour différentes régions morphoclimatiques. Les chlorures dissous dans les eaux de pluie sont d'origine marine uniquement et leurs concentrations décroissent selon une relation bilogarithmique de la côte vers l'intérieur des terres. Cette relation a été déterminée par MEYBECK (1986) pour le territoire français. En utilisant cette relation, nous avons estimé la teneur moyenne en chlorures des eaux de pluie de chaque bassin en fonction de la distance à l'océan d'où proviennent les précipitations. Ensuite, la teneur de chaque élément Xi est déterminée d'après les rapports Xi/Cl des eaux de pluie. Pour chaque élément et dans chaque bassin, les flux moyens annuels totaux apportés par les pluies sont estimés en faisant le produit de la concentration dans les eaux de pluie par la pluviosité moyenne annuelle. Si le flux de chlorures apporté par les pluies est supérieur à celui transporté par le fleuve, on considère alors que la concentration en chlorures des eaux de pluie est équivalente au flux de Cl⁻ transporté par le fleuve divisé par la pluviosité moyenne annuelle.

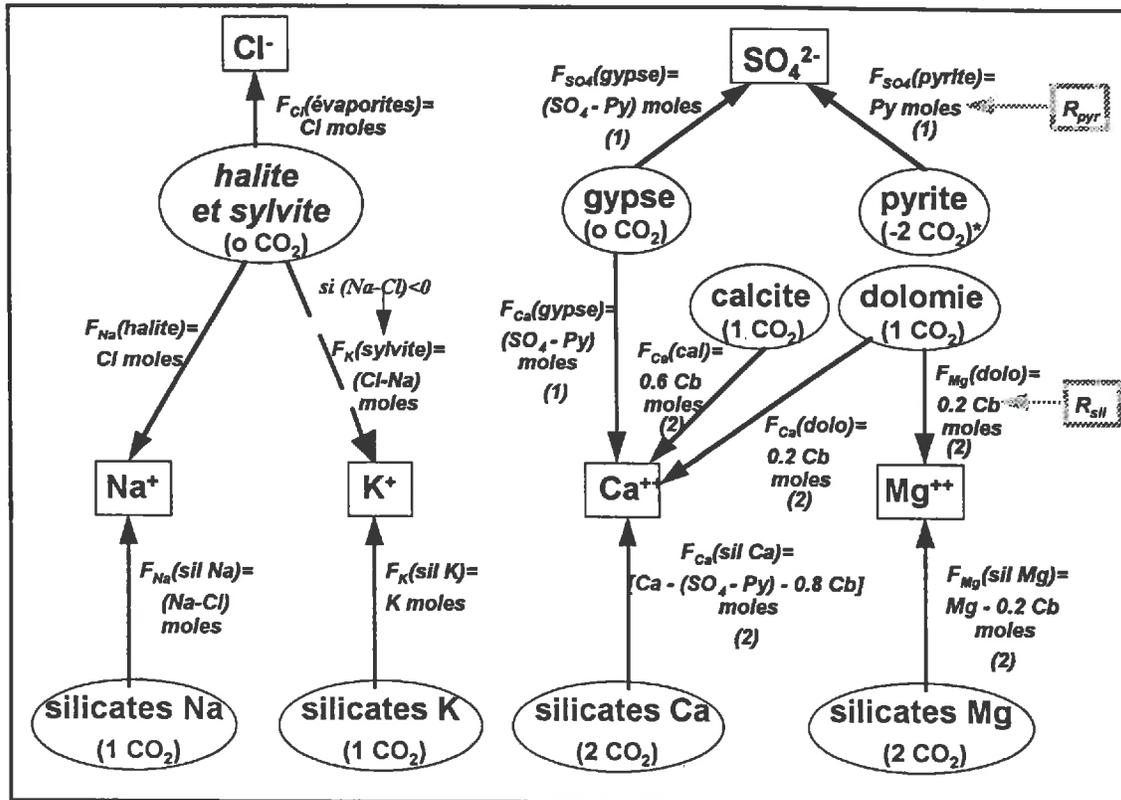
B – MÉTHODE DE CALCUL DU FLUX DE CO₂

Après correction des apports atmosphériques, la méthode de décomposition décrite au chapitre II est appliquée aux flux d'éléments majeurs en solution. Cette méthode aura pour nom de code MEGA ("Major Elements Geochemical Approach") et elle décompose chaque flux d'éléments majeurs pour reconstituer leurs origines minéralogiques. Elle permet ainsi de distinguer la quantité d'ions bicarbonates provenant du CO₂ d'origine atmosphérique de celle provenant de la mise en solution des ions carbonates des minéraux carbonatés. Cette dernière quantité est équivalente (en moles) à la quantité de Ca et de Mg issue de la dissolution des roches carbonatées. Par différence avec le flux total d'ions bicarbonates, on obtient le flux de CO₂ consommé par altération chimique. On utilisera en outre cette décomposition pour reconstituer l'origine minéralogique (silicates sodiques, potassiques, calciques ou magnésiens, carbonates, évaporites, pyrite) des flux d'éléments majeurs.

1. Hypothèses de base

Rappelons ici les hypothèses de base en ce qui concerne les flux molaires de chaque élément exportés par le fleuve et corrigés des apports atmosphériques (fig. 23).

- Tous les ions chlorures proviennent en priorité de la dissolution de la halite (NaCl) qui produit une quantité équivalente d'ions Na⁺. Dans le cas où il y a plus de Cl⁻ que de Na⁺, le Cl⁻ provient de la dissolution de la sylvite (KCl), produisant une quantité équivalente d'ions K⁺.



* équivalent d'acide sulfurique issu de l'oxydation de la pyrite et qui participe à la libération des cations majeurs lors de l'altération chimique des roches silicatées.

(1) $Py = \text{flux molaire de } SO_4 \text{ issu de l'oxydation de la pyrite, } Py = R_{pyr} \cdot (Na + K - Cl) / (1/R_{sil} + 1)$, avec $R_{pyr} = SO_4 / (Na + K + Ca + Mg)$ et $R_{sil} = (Na + K) / (Ca + Mg)$ dans les eaux drainant les roches silicatées ;

(2) $Cb = \text{flux molaire de Ca et de Mg issu de l'altération des carbonates ; } Cb = Ca + Mg - (SO_4 - Py) - 1/R_{sil} \cdot (Na + K + Cl)$ avec $R_{sil} = (Na + K) / (Ca + Mg)$ dans les eaux drainant les roches silicatées.

Fig.23 - Reconstitution des flux d'éléments majeurs issus de l'altération des différents minéraux par le modèle MEGA (tous les flux sont en moles).

- Le reste des ions Na^+ provient de l'hydrolyse de minéraux silicatés sodiques.
- Le reste des ions K^+ provient de l'hydrolyse de minéraux silicatés potassiques.
- Les ions sulfates proviennent de l'oxydation des sulfures et de la dissolution du gypse ($CaSO_4$), laquelle libère une quantité équivalente d'ions Ca^{++} .
- Le reste du calcium provient de la dissolution des minéraux carbonatés (dolomie et calcite) ainsi que de la dissolution des minéraux silicatés calciques.
- Le magnésium est produit par la dissolution des minéraux carbonatés (dolomie) et par celle des minéraux silicatés magnésiens.

Rappelons que la quantité de calcium et de magnésium issue de la dissolution des roches carbonatées correspond à la différence entre le flux molaire total de $Ca+Mg$ et celui provenant de l'altération des roches silicatées. Ce dernier est déterminé à partir du rapport $R_{sil} = (Na + K) / (Ca + Mg)$ dans les eaux drainant les roches silicatées. Le flux d'ions sulfates issus de l'oxydation de la pyrite est déterminé en fonction du rapport $R_{pyr} = SO_4 / (Na + K + Ca + Mg)$ dans les eaux drainant les roches silicatées. Enfin, la proportion relative de Ca (80 %) et de Mg (20 %) dans les eaux drainant les roches carbonatées est celle proposée par MEYBECK (1987) pour l'ensemble des affleurement de roches carbonatées du monde. Ces proportions

correspondent à la moyenne globale des roches carbonatées. Le bilan du CO₂ atmosphérique consommé peut alors être établi de deux manières.

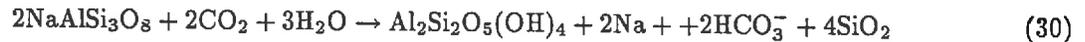
a) *Bilan géochimique direct basé sur le flux total de bicarbonates*

Cette première méthode consiste à estimer le flux d'ions bicarbonates d'origine atmosphérique en faisant la différence entre le flux total de bicarbonates et le flux de Ca+Mg provenant de la dissolution des minéraux carbonatés et déterminé par le modèle MEGA :

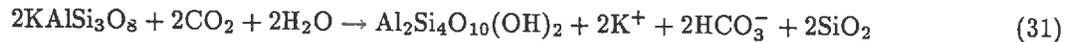
$$F_{CO_2}(\text{consommé}) = F_{HCO_3}(\text{total}) - F_{CaMg}(\text{carbonates}) \quad (29)$$

b) *Bilan géochimique indirect basé sur les bilans par minéraux*

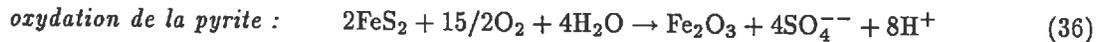
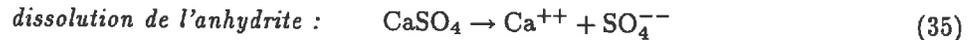
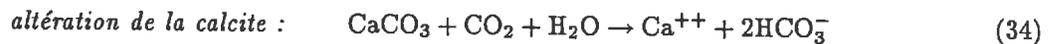
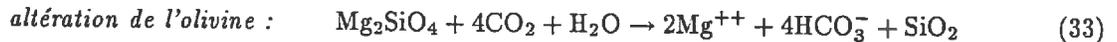
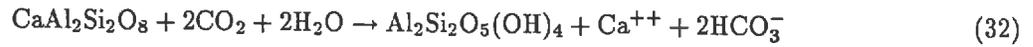
Cette seconde méthode consiste à faire le bilan des moles de CO₂ consommées par l'altération des différents minéraux déterminée par le modèle MEGA, en utilisant les coefficients stoechiométriques des équilibres chimiques suivants (GARRELS et MACKENZIE, 1971) : *altération d'albite en kaolinite* :



altération d'orthose en montmorillonite :



altération d'anorthite en kaolinite :



On peut alors calculer la quantité de CO₂ consommée (en moles) en fonction de celle des cations libérés par attaque à l'acide carbonique, diminuée de celle des cations libérés par attaque à l'acide sulfurique produit par oxydation de la pyrite :

$$F_{CO_2} = 2F_{CaMg}(\text{silicates}) + F_{NaK}(\text{silicates}) + F_{CaMg}(\text{carbonates}) - 2F_{SO_4}(\text{pyrite}) \quad (37)$$

2. Estimation des rapports R_{sil} et R_{pyr} sur les bassins fluviaux

Les rapports molaires R_{sil}(Na + K)/(Ca + Mg) et R_{pyr}(SO₄/(Na + K + Ca + Mg) dans les eaux de drainage varient d'un type de roche à l'autre. Le tableau 14 donne les valeurs de chacun de ces deux rapports calculés pour chaque type de roche d'après les données de MEYBECK (1986) sur la composition moyenne des eaux drainant les principaux types de roche. Dès lors, sur les grands bassins fluviaux, dont le substratum est composé de plusieurs types de roches silicatées, les rapports R_{sil} et R_{mpyr} (tabl. 9) correspondent à la moyenne pondérée par les débits des rapports respectifs de chaque type de roche présent sur le bassin. La surface des types de roches présents sur chaque bassin et le drainage correspondant sont déterminés grâce aux cartes globales de lithologie (fig. 19) et de drainage (fig. 22). Pour le bassin du Congo, nous avons choisi d'utiliser le rapport R_{sil} déterminé par NKOUNKOU et PROBST (1987) à partir de données hydrogéochimiques de petits bassins versants monolithologiques du bassin du Congo.

Tableau 14 – Valeurs moyennes des rapports R_{sil} et R_{pyr} pour les eaux drainant différents types de roches silicatées.

types de roches	$R_{sil} = \frac{(Na^+ + K^+)}{(Ca^{2+} + Mg^{2+})}$	$R_{pyr} = \frac{SO_4^{2-}}{(Na^+ + K^+ + Ca^{2+} + Mg^{2+})}$
roches plutoniques et métamorphiques	1,5	0,15
roches volcaniques acides	1,2	0,02
basaltes	0,5	0,02
sables et grès	1,3	0,24
roches détritiques argileuses (shales)	0,5	0,19

C – RÉSULTATS

1. Flux de bicarbonates et flux de CO_2 consommé par bassin

Utilisant le bilan géochimique direct, nous avons calculé pour chaque bassin le flux de bicarbonates provenant du CO_2 atmosphérique (F_{CO_2}), que nous nommerons plus simplement "flux de CO_2 consommé". Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 15 et sur la figure 24. Les flux de CO_2 consommé montrent une forte variabilité d'un fleuve à l'autre. Le flux le plus faible est calculé pour le bassin du Murray (Australie), avec $21 \cdot 10^3$ moles/ $km^2 \cdot an$. L'Orange, le Yana, le Limpopo et le Zambèze montrent également des F_{CO_2} faibles, inférieurs à 40 moles/ $km^2 \cdot an$. Le flux le plus fort est estimé pour le Pô (près de 1200 moles/ $km^2 \cdot an$), très loin devant le Xi Jiang (734 moles/ $km^2 \cdot an$), le Rhône (725 moles/ $km^2 \cdot an$) et le Hungo (667 moles/ $km^2 \cdot an$).

Pour chaque bassin, nous avons également calculé la contribution ($\%CO_2$) du flux de CO_2 consommé par érosion chimique (F_{CO_2}) au flux total de bicarbonates transportés par le fleuve (tabl. 15). Les variations de cette contribution en % sont représentées sur la figure 25, de même que la contribution de la dissolution des minéraux carbonatés au flux total de HCO_3^- ($\%CaCO_3$), la somme $\%CO_2 + \%CaCO_3$ étant égale à 100. La contribution $\%CO_2$ varie de 50 % lorsque les HCO_3^- proviennent de l'altération de roches carbonatées, à 100 % lorsque les ions HCO_3^- proviennent de l'altération des roches silicatées. De la même façon, $\%CaCO_3$ varie de 0 à 50 % maximum.

Fig.24 – Variabilité des flux de CO_2 consommé (F_{CO_2}) sur les grands bassins fluviaux.

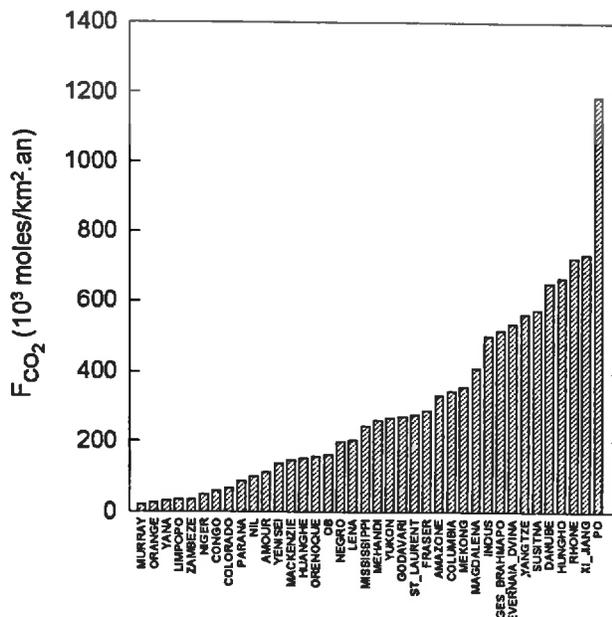
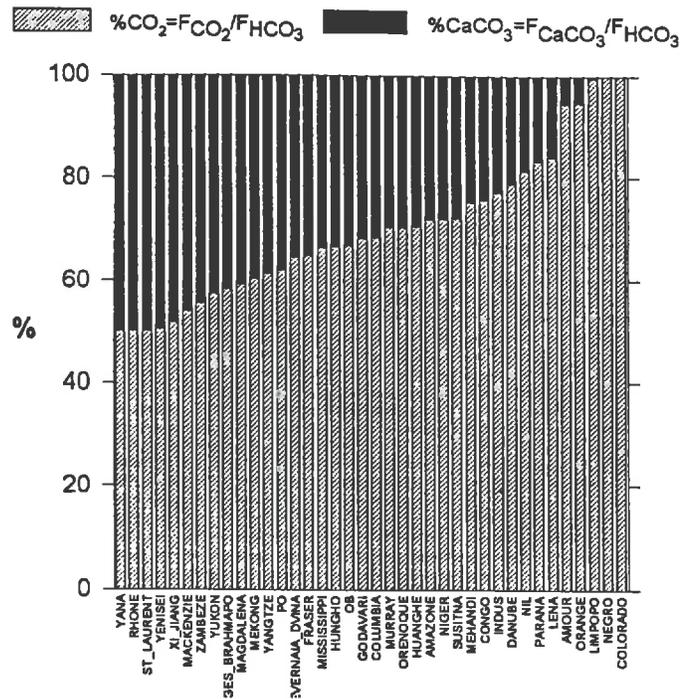


Tableau 15 – Flux moyens annuels spécifiques d'ions bicarbonates totaux (F_{HCO_3}), de CO_2 consommé (F_{CO_2}) et d'ions bicarbonates issus de la dissolution des carbonates des roches (F_{CaCO_3}) transportés par les grands fleuves mondiaux. $\%CO_2$ et $\%CaCO_3$ sont les contributions respectives de F_{CO_2} et de F_{CaCO_3} au flux total de bicarbonates (F_{HCO_3}).

	F_{HCO_3}	F_{CO_2}	F_{CaCO_3}	$\%CO_2$	$\%CaCO_3$
	10 ³ moles/km ² .an			%	
AMAZONE	462	333	129	72	28
AMOUR	118	112	7	94	6
COLORADO	67	67	0	100	0
COLUMBIA	505	346	159	69	31
CONGO	77	59	19	76	24
DANUBE	825	651	174	79	21
FRASER	446	290	156	65	35
GANGES-BRAHMAPOUTRE	888	517	371	58	42
GODAVARI	397	272	125	68	32
HUANGHE	211	149	62	71	29
HUNGHO	999	646	353	65	35
INDUS	649	501	147	77	23
LENA	238	200	38	84	16
LIMPOPO	35	34	0	100	0
MACKENZIE	268	144	123	54	46
MAGDALENA	694	400	294	58	42
MEHANDI	345	240	105	70	30
MEKONG	593	358	235	60	40
MISSISSIPPI	366	239	127	65	35
MURRAY	30	21	9	70	30
NEGRO	196	196	0	100	0
NIGER	69	50	19	72	28
NIL	121	98	22	81	19
OB	238	160	79	67	33
ORANGE	27	25	1	95	5
ORENOQUE	219	154	65	70	30
PARANA	103	89	13	87	13
PO	1919	1173	746	61	39
RHONE	1449	725	725	50	50
SEVERNAIA DVINA	832	537	295	65	35
ST LAURENT	551	276	276	50	50
SUSITNA	793	574	219	72	28
XI JIANG	1420	734	686	52	48
YANA	63	31	31	50	50
YANGTZE	919	564	356	61	39
YENISEI	267	134	133	50	50
YUKON	467	268	199	57	43
ZAMBEZE	64	36	29	55	45

Lors du calcul de F_{CO_2} , certaines valeurs aberrantes sont apparues pour quelques fleuves. Ainsi, pour le Colorado et le Rio Negro, le flux de HCO_3^- provenant de la dissolution des ions carbonates des minéraux carbonatés (F_{CaCO_3}) est négatif. Nous avons alors considéré que ce flux était nul, et la contribution $\%CO_2$ est alors de 100%. Ceci peut être dû, soit à des données de départ erronées, soit à une mauvaise estimation du rapport R_{sil} , soit encore à des apports anthropiques importants qui ne sont pas pris en compte dans nos calculs. D'un autre côté, pour le Yana et pour le Rhône, F_{CaCO_3} apparaît supérieur à F_{CO_2} , ce qui, là aussi, est aberrant, sauf si on estime qu'une part non négligeable de l'altération des roches carbonatées est assurée par d'autres acides que l'acide carbonique. Nous avons considéré dans ce cas que F_{CaCO_3} pouvait atteindre au maximum la moitié de la valeur du flux total de HCO_3^- ; dès lors, la contribution $\%CO_2$ est de 50%.

Fig.25 – Variabilité de la contribution du flux de CO_2 consommé (F_{CO_2}) et du flux de bicarbonates issus de la dissolution des minéraux carbonatés des roches (F_{CaCO_3}) au flux total de bicarbonates (F_{HCO_3}).



Pour une dizaine de fleuves, la contribution de la dissolution des carbonates ($\%CaCO_3$) n'est pas nulle, alors qu'il ne semble pas y avoir d'affleurements de roches carbonatées sur le bassin (tabl. 11). Différentes hypothèses peuvent expliquer cette anomalie. La carte de base (fig. 19) utilisée pour définir la proportion des différentes formations est simplifiée et a une résolution de $1^\circ \times 1^\circ$, soit un peu plus de $10\,000\text{ km}^2$ à l'équateur, ce qui ne permet pas de distinguer des affleurements relativement localisés de calcaires ou de dolomies. Cette limite de résolution conduit à ignorer les affleurements réduits des formations carbonatées sur certains bassins. En outre, pour des bassins versants de faible superficie, des erreurs importantes peuvent apparaître dans le calcul des proportions de chaque type de roche. C'est le cas du Pô (Italie), qui draine des formations très variées de la chaîne alpine ainsi que les roches détritiques de la plaine du Pô et pour lequel il a été déterminé un substratum composé uniquement de shales (tabl. 11). La carte ignore également les formations carbonatées situées en profondeur et qui peuvent parfois contribuer au flux de bicarbonates exporté par le fleuve. Ainsi PROBST *et al.* (1994) montrent que sur le bassin de l'Oubangui (affluent du Congo) 25% du flux de HCO_3^- viennent des carbonates de kryptokarsts protérozoïques. Enfin, les shales sont composés de roches très diverses dont certaines, comme les molasses ou les flyschs, peuvent contenir des minéraux carbonatés en quantité non négligeable. Ainsi, les shales affleurent en plus ou moins grandes quantités (tabl. 11) sur tous les bassins dépourvus de formations carbonatées mais montrant cependant une contribution des minéraux carbonatés.

2. Influence du drainage et de la lithologie

Nous avons vu dans le chapitre II que le drainage et la lithologie jouaient tous deux un rôle de premier plan dans la consommation de CO_2 par érosion chimique à l'échelle des petits bassins versants. Nous allons voir ici que cette double influence est plus que jamais importante à l'échelle des grands bassins fluviaux.

a) Influence du drainage

Le drainage est un facteur important qui contrôle l'intensité de l'érosion chimique. Il rend compte à la fois de la quantité d'eau et du renouvellement des solutions en contact avec les minéraux pour les altérer,

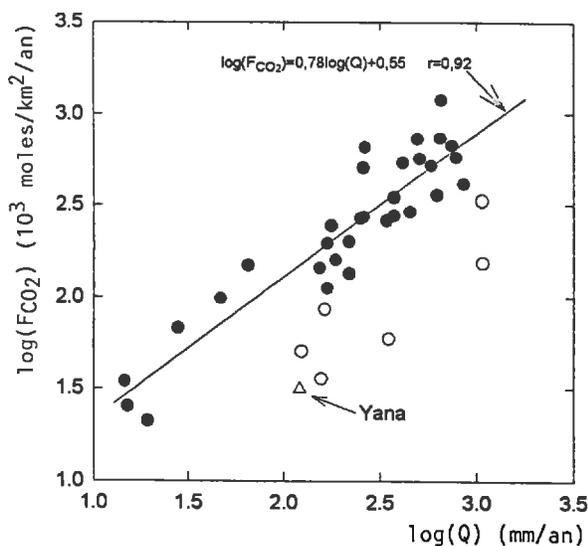


Fig.26 – Relation entre le flux spécifique de CO_2 consommé (F_{CO_2}) et l'intensité du drainage (Q) pour les grands bassins fluviaux du monde. Les cercles vides représentent les bassins dont la plus grande partie de la superficie est occupée par des formations latéritiques et qui ne sont pas pris en compte dans le calcul de la régression.

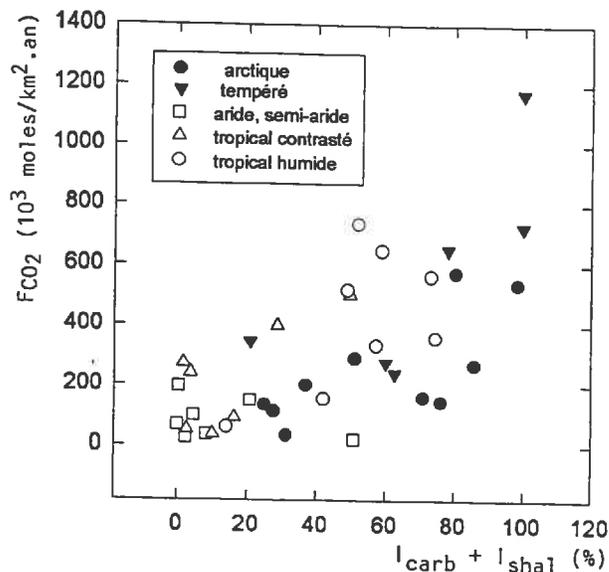


Fig.27 – Relation entre le flux spécifique de CO_2 consommé (F_{CO_2}) et l'intensité du drainage des roches carbonatées (I_{carb}) et des shales (I_{shal}).

et du potentiel de transfert des éléments érodés du continent vers l'océan. On observe ainsi (fig. 26) une relation bilogarithmique entre le flux spécifique de CO_2 consommé (F_{CO_2}) et l'intensité du drainage (Q).

La dispersion du nuage de points témoigne de la présence d'autres facteurs de contrôle, mais on peut y distinguer deux tendances. La première, qui regroupe les bassins de l'Amazone, de l'Orénoque, du Parana, du Congo, du Niger, du Zambèze et du Yana, montre, à débit équivalent, un flux de CO_2 consommé plus faible que l'ensemble des grands bassins fluviaux. Les six premiers bassins cités sont en grande partie recouverts de formations latéritiques, très pauvres en minéraux altérables et donc consommant peu de CO_2 . En ce qui concerne le Yana, sa très faible température moyenne annuelle ($-15^\circ C$), qui est de loin la plus faible des bassins de climat arctique (tabl. 9), peut avoir pour effet d'inhiber les réactions d'altération chimique et pourrait expliquer en partie la présence de ce fleuve arctique dans cette catégorie de bassins à faible F_{CO_2} . Rappelons également que nous suspectons les données géochimiques de base sur le Yana d'être erronées. La deuxième tendance observée (fig. 26) regroupe le reste des bassins, sur lesquels la consommation de CO_2 est plus intense à débit équivalent que sur les bassins du premier groupe. Là encore, le nuage de points est un peu dispersé et laisse supposer l'influence d'autres facteurs tels que la lithologie notamment.

b) Influence de la lithologie

La figure 27 représente les variations de F_{CO_2} en fonction de la somme des indices ($I_{carb} + I_{shal}$), qui représentent, en %, la contribution du drainage, respectivement des roches carbonatées et des shales d'un bassin versant au drainage total de ce bassin. On peut observer une relation positive, mais on remarquera qu'à indice ($I_{carb} + I_{shal}$) équivalent, la consommation de CO_2 est moins intense sur les fleuves des régions arctiques que sur les autres. On peut voir là l'influence de la faible température des zones septentrionales qui inhiberait les réactions chimiques d'altération.

3. Origine des éléments dissous transportés par les fleuves

a) Bilan du CO₂ consommé

Nous avons reconstitué l'origine minéralogique de chaque flux d'ions majeurs transportés en solution selon le modèle MEGA décrit plus haut dans ce chapitre au paragraphe III-B (fig. 23). Au cours du calcul, chaque fois que le flux d'un élément donné était négatif, il a été ramené à zéro. Les résultats obtenus sont présentés pour tous les fleuves dans le tableau 17. Pour le bassin de l'Amazonie, les résultats que nous avons obtenus sont comparés avec ceux de TARDY *et al.* (1993) basés sur une autre méthode de décomposition des flux d'éléments majeurs (tabl. 16).

En ce qui concerne l'origine minéralogique du potassium et du magnésium, nos résultats sont comparables à ceux de TARDY *et al.* (1993). Par contre, en ce qui concerne le calcium et le sodium, on peut noter des différences importantes. En effet, la répartition des ions Ca⁺⁺ entre minéraux silicatés et carbonatés est différente d'une étude à l'autre. Ainsi, le rapport $R_{\text{sil}} = (\text{Na} + \text{K})_{\text{sil}} / (\text{Ca} + \text{Mg})_{\text{sil}}$ est de 0,75 seulement selon les résultats de TARDY *et al.* (1993), ce qui est inférieur au rapport que nous avons calculé dans cette étude (0,9) et à celui déterminé par PROBST *et al.* (1994) (1,2). La faible proportion de Ca⁺⁺ dans les eaux drainant les roches carbonatées ainsi déterminée par TARDY *et al.* (1993) conduit à une surestimation du flux de CO₂ consommé, d'autant plus que leur bilan ne tient pas compte de l'attaque des minéraux par l'acide sulfurique provenant de l'oxydation de la pyrite.

Le flux de HCO₃⁻ issu du CO₂ d'origine atmosphérique présenté dans le tableau 17 a été calculé en faisant le bilan de la consommation de CO₂ par minéral altéré (bilan géochimique indirect) selon l'équation (36). Ce flux de CO₂ (F_{CO₂,th}) est très proche de celui (F_{CO₂}) calculé en soustrayant le flux de Ca+Mg des carbonates au flux total de HCO₃⁻ (éq. 29). La figure 28 représentant la variabilité du facteur $\Delta\text{CO}_2 = (\text{F}_{\text{CO}_2,\text{th}} - \text{F}_{\text{CO}_2}) / (\text{F}_{\text{CO}_2,\text{th}} + \text{F}_{\text{CO}_2})$ sur l'ensemble des fleuves montre que les écarts sont relativement faibles (<20%). Pour la majorité des fleuves, ΔCO_2 est positif, ce qui veut dire que le flux de CO₂ nécessaire à l'altération chimique des minéraux est supérieur au flux de CO₂ calculé à partir du flux de bicarbonates. Il semblerait que, dans ce cas, d'autres acides tels que des acides organiques, qui n'ont pas été pris en compte dans nos calculs, interviendraient dans l'altération chimique, ce qui provoquerait une surestimation de la consommation de CO₂ calculée selon le bilan géochimique indirect. Lorsque ΔCO_2 est négatif, le bilan géochimique indirect sous-estime la quantité de CO₂ consommé par rapport à celle calculée selon le bilan géochimique direct. Dans ce cas, on a pu surestimer la contribution de la dissolution des minéraux évaporitiques qui ne consomme pas de CO₂.

b) Bilan de la silice

Comme nous l'avons vu auparavant, l'hydrolyse des minéraux silicatés s'accompagne souvent de la formation de minéraux argileux tels que la kaolinite ou la montmorillonite. La quantité de silice libérée en solution lors de ces processus d'altération chimique est fonction du degré d'altération et donc de la nature des minéraux secondaires formés. Ainsi, l'anorthite s'altère en kaolinite (éq. 31) sans libérer de silice, et en montmorillonite en puisant de la silice dans la solution environnante. D'un autre côté, l'albite ou l'orthose libèrent 4 moles de silice pour 2 moles de Na ou de K lorsqu'elles s'altèrent en kaolinite (éq. 29) et 2 moles de silice pour 2 moles de Na ou de K lorsqu'elles s'altèrent en montmorillonite (éq. 30). PÉDRO (1966) définit alors les trois grands types d'altération : (i) l'allitisation correspond au lessivage complet de la silice et à la formation de gibbsite ; (ii) la monosiallisation correspond à l'altération des feldspaths en kaolinite et le rapport SiO₂/Al₂O₃ des minéraux néoformés est de 2 ; (iii) la bisiallisation correspond à la formation de montmorillonite et le rapport SiO₂/Al₂O₃ des minéraux néoformés est supérieur à 2.

Lors de la formation de kaolinite (monosiallisation), seule l'altération de l'orthose et de l'albite libère de la silice à raison de 4 moles pour 2 moles de Na ou de K libérées. Sur ces bases simples il est possible de calculer la quantité théorique de silice (F_{SiO₂,th}) libérée par altération des minéraux silicatés en kaolinite pour chaque fleuve comme suit :

$$F_{\text{SiO}_2,\text{th}} = 2F_{\text{Na silicates}} + 2F_{\text{K silicates}} \quad (38)$$

Tableau 16 – Origine minéralogique des concentrations en solution ($\mu\text{moles/l}$) des éléments majeurs dans les eaux de l'Amazonie et bilan du CO_2 consommé ; comparaison des résultats obtenus dans cette étude avec ceux de TARDY *et al.* (1993).

	Na^+		K^+	Ca^{++}			Mg^{++}		Cl^-	SO_4^{2-}	CO_2
	sil.	évap.	sil.	sil.	carb.	évap.	sil.	carb.	évap.	pyr.	cons.
cette étude	27	60	24	38	96	33	19	24	60	19	246
TARDY <i>et al.</i> (1993)	53	49	22	80	54	46	20	28	49	-	357

Tableau 17 – Flux moyens spécifiques annuels d'éléments majeurs en solution issus de l'altération chimique des différents minéraux (d'après le modèle MEGA) et bilan du CO_2 consommé calculé selon la méthode du bilan géochimique indirect (tous les flux en 10^3 moles/ km^2 .an).

	Na^+		K^+		Ca^{2+}			Mg^{2+}		Cl^-	SO_4^{2-}		HCO_3^-	
	sil.	évap.	sil.	évap.	sil.	carb.	gypse	sil.	carb.	évap.	gypse	pyr.	carb.	atm.
AMAZONE	29	64	26	0	41	103	35	20	26	64	35	21	129	263
AMOUR	50	7	4	0	34	5	0	15	1	7	0	16	7	126
COLORADO	59	78	4	0	0	0	67	33	0	78	67	19	0	90
COLUMBIA	83	25	9	0	44	127	10	47	32	25	10	18	159	397
CONGO	19	0	11	0	4	15	0	14	4	0	0	0	19	85
DANUBE	105	141	16	0	172	139	10	61	35	141	10	50	174	661
FRASER	29	0	8	0	31	125	24	8	31	0	24	12	156	248
GANGES-BRA.	23	50	48	0	37	297	0	29	74	50	0	25	371	525
GODAVARI	15	87	17	0	12	100	1	19	25	87	1	6	125	208
HUANGHE	53	90	4	0	0	49	28	49	12	90	28	15	62	186
HUNGHO	193	134	25	0	0	283	28	173	71	134	28	65	353	786
INDUS	142	165	44	0	65	118	28	71	29	165	28	55	147	496
LENA	64	92	12	0	44	31	23	26	8	92	23	23	38	206
LIMPOPO	10	0	1	0	3	0	0	5	0	0	0	0	0	25
MACKENZIE	14	30	2	0	0	99	40	24	25	30	40	7	123	174
MAGDALENA	0	294	39	10	0	235	113	55	59	304	113	7	294	428
MEHANDI	19	103	9	0	0	84	88	108	21	103	88	7	105	334
MEKONG	9	71	30	0	30	188	0	32	47	71	0	16	235	365
MISSISSIPPI	43	119	13	0	7	102	67	55	25	119	67	24	127	260
MURRAY	0	77	1	3	0	7	0	7	2	79	0	0	9	23
NEGRO	112	91	6	0	31	0	57	29	0	91	57	17	0	205
NIGER	8	0	2	0	0	15	0	7	4	0	0	0	19	44
NIL	28	38	6	0	10	18	3	16	5	38	3	8	22	91
OB	24	10	4	0	24	63	0	13	16	10	0	13	79	156
ORANGE	6	0	0	0	2	1	0	3	0	0	0	0	1	18
ORENOQUE	20	13	19	0	29	52	0	9	13	13	0	13	65	154
PARANA	13	13	6	0	14	11	0	7	3	13	0	5	13	64
PO	91	297	32	0	82	597	324	162	149	297	324	70	746	1218
RHONE	0	224	24	66	59	580	217	0	145	290	217	0	725	867
SEVERNAIA D.	49	161	16	0	28	236	164	101	59	161	164	37	295	543
ST-LAURENT	0	165	9	48	0	221	87	58	55	214	87	0	276	401
SUSITNA	72	27	70	0	146	176	34	56	44	27	34	62	219	641
XI-JIANG	19	0	12	0	39	549	33	0	137	0	33	9	686	779
YANA	0	2	0	3	0	25	2	4	6	4	2	0	31	39
YANGTZE	142	49	15	0	45	285	19	79	71	49	19	48	356	665
YENISEI	0	18	1	36	0	106	18	10	27	54	18	0	133	154
YUKON	26	2	8	0	32	159	11	23	40	2	11	16	199	311
ZAMBEZE	23	0	3	0	12	23	0	7	6	0	0	9	29	75

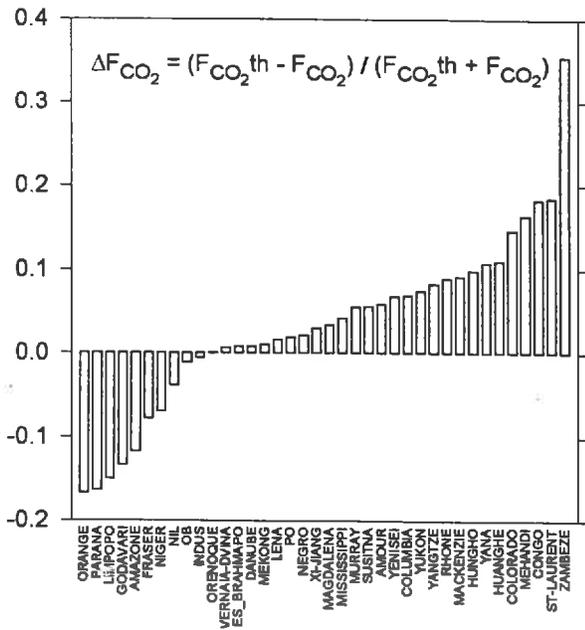


Fig.28 – Différence relative entre le flux de CO_2 (F_{CO_2}) calculé à partir du flux de bicarbonates (bilan géochimique direct) et le flux de CO_2 ($F_{CO_2 th}$) déterminé en faisant le bilan de consommation par minéral (bilan géochimique indirect).

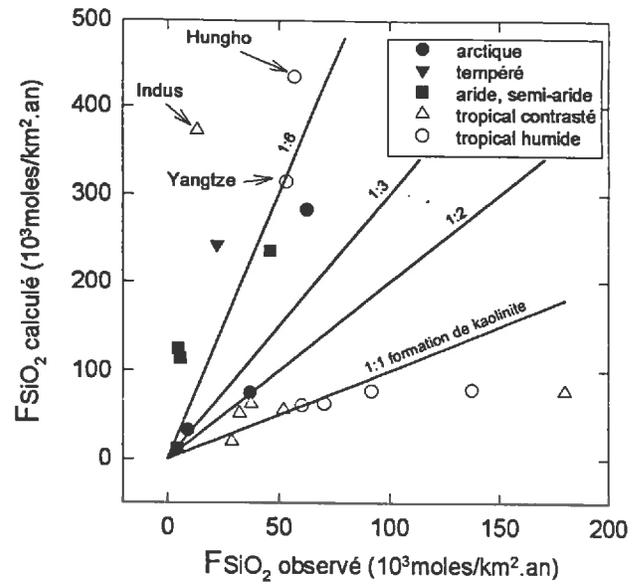


Fig.29 – Comparaison entre le flux dissous de silice théorique, calculé d'après le bilan par minéral avec formation de kaolinite, et le flux dissous de silice observé.

On compare alors cette quantité théorique au flux de silice réellement exporté par les fleuves (fig. 29) où deux tendances s'individualisent. La première regroupe les fleuves des régions tropicales-équatoriales dont le flux de silice observé est proche ou supérieur à $F_{SiO_2 th}$. Pour ces fleuves, l'altération en est au minimum au stade de la monosiallitisisation, avec une tendance à l'allitisation.

La seconde tendance regroupe les fleuves des régions arides et semi-arides, des régions tempérées et des régions arctiques. Dans ce second groupe, la quantité de silice théoriquement libérée est largement supérieure à la quantité de silice mesurée, et le minéral secondaire néoformé serait par conséquent la montmorillonite (bisiallitisisation).

Ces deux tendances sont en accord avec les conclusions de TARDY (1969) qui montre que l'allitisation et la monosiallitisisation sont favorisées par les climats équatoriaux et tropicaux humides et que la bisiallitisisation est favorisée par les climats tempérés ou froids ainsi que par les climats arides. Trois fleuves de climat tropical semblent cependant ne pas rentrer dans ce schéma type puisqu'ils appartiennent à la seconde tendance marquée par la bisiallitisisation. Le Yangtze et le Hungho ont la majorité de leur bassin en région tropicale humide mais drainent des régions montagneuses où la température est plus basse. Le même processus peut être invoqué pour l'Indus en climat tropical contrasté, qui draine une partie de la chaîne himalayenne.

Pour permettre une caractérisation plus précise du type d'altération dominant de chacun des fleuves, nous avons calculé le rapport molaire $Re = SiO_2 / Al_2O_3$ des minéraux néoformés, selon la méthode développée par TARDY (1969). Ce dernier calcule Re à partir de la composition chimique des solutions résultantes de l'altération de roches silicatées selon l'équation suivante :

$$Re = \frac{SiO_2^{fix}}{Al_2O_3^{fix}} = \frac{3Na_{silicates} + 3K_{silicates} + Ca_{silicates} + Mg_{silicates} - SiO_2}{0,5Na_{silicates} + 0,5K_{silicates} + Ca_{silicates} + Mg_{silicates}} \quad (39)$$

On peut considérer Re comme un indice d'altération. Plus Re est faible, plus la quantité de silice libérée et

évacuée est grande et plus l'érosion chimique est intense. On remarque alors sur la figure 30 que trois bassins seulement (la Magdalena, l'Orénoque et le Niger) tendent vers l'allitisation, c'est-à-dire vers une évacuation totale de la silice et la formation de gibbsite. Les quatre bassins suivants dans l'ordre d'altération croissante (le Mekong, le Xi-Jiang, le Congo et le Mehandi) appartiennent également aux climats des régions tropicales et sont très proches de la monosiallitisatation ($Re \sim 2$).

Tous les autres bassins pour lesquels on a pu calculer Re sont au stade de la bisiallitisatation. Le Yangtze, le Hungho et l'Indus, fleuves de la zone tropicale pour lesquels nous avons déjà signalé un degré d'altération peu poussé, montrent des valeurs de Re parmi les plus élevées (entre 3 et 3,5). Il est alors intéressant de remarquer que ces trois bassins avoisinent ou dépassent l'altitude moyenne de 1000 m et que l'altération sur ces bassins est probablement en partie limitée par des températures plus faibles liées à l'altitude élevée. Cette relation entre quantité de silice évacuée et altitude ou température a déjà été mise en évidence tant sur des petits bassins (MEYBECK, 1986 ; DREVER et ZOBRIST, 1992) qu'à l'échelle des grands bassins fluviaux (PROBST, 1992). Dès lors, pour les grands fleuves mondiaux, l'indice d'altération (Re) montre une relation positive (fig. 31) avec l'altitude moyenne des bassins, sauf pour le bassin de la Magdalena sur lequel l'altération chimique reste très avancée ($Re = 0,6$) malgré une altitude moyenne élevée (1200 m). Cette exception peut être expliquée par une température moyenne élevée ($24^{\circ}C$) malgré l'altitude, ainsi que par un drainage intense (859 mm/an).

Lorsqu'on compare Re avec la température moyenne du bassin (T) sur la figure 32, on observe une relation similaire. Cette évolution du rapport Re en fonction de la température (fig. 32) concorde tout à fait avec les résultats obtenus par TARDY (1969) sur la dynamique de la silice d'après des observations faites sur des petits bassins à substratum cristallin des régions tempérées, arides et tropicales. Ainsi, l'intensité de l'altération reste moyenne dans les régions tempérées ou froides où, malgré un fort drainage, la température ralentit l'évacuation de la silice. Puis Re augmente dans les régions arides et semi-arides où le faible drainage et les fortes températures concentrent les solutions et favorisent la formation de montmorillonite. Enfin, dans les régions tropicales, les fortes températures, alliées à un drainage intense, favorisent la monosiallitisatation et l'allitisation.

III – BILAN GLOBAL DE LA CONSOMMATION DE CO_2

A – MÉTHODE

Afin d'établir le bilan global du flux de CO_2 consommé par altération chimique, nous proposons d'extrapoler les résultats obtenus sur les 38 grands fleuves mondiaux à l'ensemble des surfaces continentales. La méthode d'extrapolation que nous proposons ici consiste à classer les fleuves par type climatique en fonction de leur valeurs moyennes annuelles de débit et de température. Ces types climatiques sont regroupés en cinq grandes zones définies dans le tableau 18 d'après MEYBECK (1979) : la zone arctique, la zone tempérée, la zone aride et semi-aride, la zone tropicale contrastée et la zone tropicale humide. On considère alors que les bassins appartenant à une zone climatique sont représentatifs de celle-ci. L'extrapolation de chaque flux (F_c) par les surfaces pour chacune des cinq zones climatiques (c) se fera selon l'équation suivante :

$$F_c = F_{obs} \times (S_c/S_{obs}) \quad (40)$$

Dans l'équation (40), F_{obs} (moles/an) est la somme des flux calculés sur chaque fleuve de la zone climatique (c), S_{obs} (km^2) est la somme des surfaces de chaque fleuve de la zone climatique (c) et S_c (km^2) est la surface totale de la zone climatique (c). On calcule alors le flux total pour l'ensemble des continents en faisant la somme des flux (F_c) de chaque zone climatique. L'extrapolation par les débits est réalisée en remplaçant S_{obs} par la somme des débits observés sur chaque fleuve (D_{obs} en km^3/an) et S_c par le drainage total (D_c en km^3/an) de la zone climatique :

$$F_c = F_{obs} \times (D_c/D_{obs}) \quad (41)$$

Fig.30 – Variabilité de l'indice d'altération Re sur les grands bassins fluviaux.

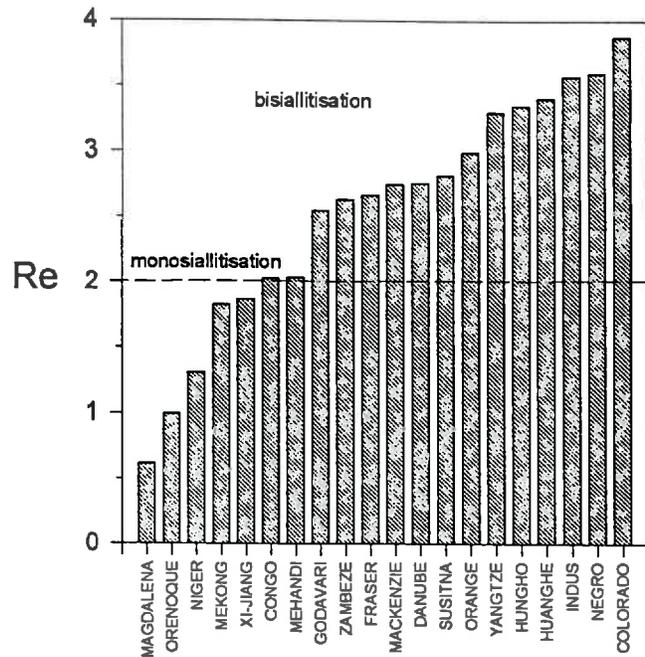


Fig.31 – Relation entre l'indice d'altération Re et l'altitude moyenne des grands bassins fluviaux.

Fig.32 – Relation entre l'indice d'altération Re et la température moyenne annuelle de l'air sur les grands bassins fluviaux.

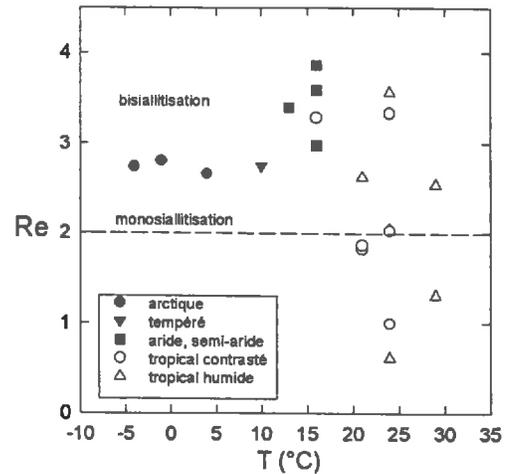
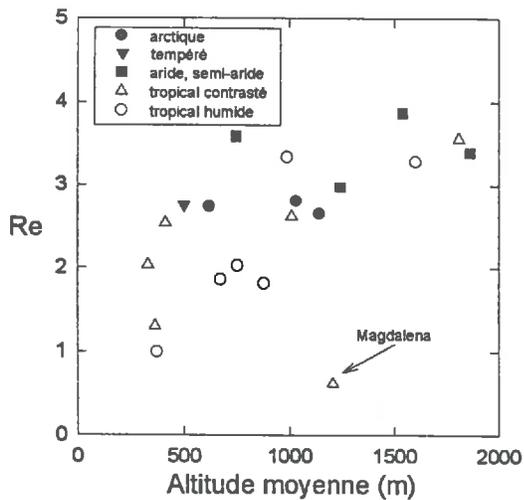


Tableau 18 – Caractéristiques des grandes zones climatiques (d'après MEYBECK, 1979) utilisées pour établir le bilan global des flux dissous continents-océans.

zone climatique	définition	surface exoréique totale (10^6 km^2)	débit exoréique total	
			km^3/an	mm/an
arctique (non glacé)	$T < 4^\circ\text{C}$	23,3	5497,8	236
tempérée	$4 \leq T < 15^\circ\text{C}$ $120 < Q < 630 \text{ mm}/\text{an}$	14,1	4151,4	294
semi-aride et aride	$15 \leq T < 20^\circ\text{C}$ $Q < 120 \text{ mm}/\text{an}$	20,5	635,8	31
tropical contrasté	$T \Rightarrow 20^\circ\text{C}$ $30 \leq Q < 280 \text{ mm}/\text{an}$	13,2	2187,9	166
tropical humide	$T > 20^\circ\text{C}$ $Q > 280 \text{ mm}/\text{an}$	28,5	24927,1	875
total surfaces exoréiques		99,6	37400	375

B - RÉSULTATS

Les flux de CO₂ consommé, ainsi que les flux d'éléments majeurs par minéraux, extrapolés par les surfaces et par les débits pour chaque grande zone climatique et pour la totalité des surfaces continentales exoréiques, sont présentés dans le tableau 20.

Lorsqu'on compare les résultats des deux méthodes d'extrapolation (tabl. 20), on remarque que les valeurs extrapolées par les débits sont semblables à celles extrapolées par les surfaces pour chaque zone climatique, sauf pour la zone tempérée et la zone tropicale humide où une différence importante apparaît. Ces différences se répercutent de façon sensible sur les résultats obtenus pour l'ensemble des zones climatiques. Pour l'ensemble du globe, la surface observée (47,4.10⁶ km²) et le drainage observé (17 428 km³/an), sur lesquels sont basées les extrapolations, représentent près de la moitié, respectivement de la surface totale (99,9.10⁶ km²) et du drainage total (37 400 km³/an) des zones continentales exoréiques. En ce qui concerne les zones climatiques, les surfaces observées des régions tropicales contrastées, arctiques et tropicales humides, sont représentatives avec respectivement 70 %, 58 % et 56 % de la surface totale de la zone climatique. Par contre, les régions tempérées et les régions arides à semi-arides sont nettement moins bien représentées car les surfaces observées ne font respectivement que 35 % et 18 % seulement de la surface totale de la zone climatique correspondante. Pour ces deux dernières zones, la surface observée risque de ne pas bien rendre compte de la lithologie moyenne de la zone climatique, et finalement de fausser quelque peu les résultats.

A l'échelle globale, le flux total de CO₂ consommé extrapolé par les surfaces est estimé à 21–22.10¹² moles/an, soit 0,25 à 0,26 GtC/an, ce qui est similaire à l'estimation du Temperate Stream Model (0,26 GtC/an) de MEYBECK (1987). Par contre, le flux de CO₂ consommé extrapolé par les débits est estimé à 24,5–25,5.10¹² moles/an, soit 0,29–0,30 GtC/an, ce qui est comparable aux estimations de BERNER *et al.* (1983) et de PROBST (1992) (respectivement 0,28 et 0,30 GtC/an). Le drainage étant le facteur principal qui contrôle les flux d'érosion chimique, nous accorderons plus de confiance aux extrapolations basées sur les débits. La contribution du flux de CO₂ consommé au flux total de bicarbonates est alors de 66,5 %, proportion presque identique à celle proposée par MEYBECK (1987). Les résultats rassemblés dans le tableau 19 montrent que la zone aride à semi-aride est logiquement la moins consommatrice de CO₂ (62.10³ moles/km².an), du fait de son faible drainage. Viennent ensuite les zones tropicales contrastées (144.10³ moles/km².an) et les zones arctiques (190.10³ moles/km².an).

La consommation de CO₂ est la plus intense dans les régions tempérées (435.10³ moles/km².an), suivies de près par les régions tropicales humides (379.10³ moles/km².an), alors que ces dernières ont un drainage nettement plus fort (875 mm/an) que les zones tempérées (294 mm/an). Ce paradoxe peut être expliqué par le fait que les zones tempérées ont un substratum composé de roches plus facilement altérables, comme les carbonates ou les shales par exemple, ce qui permet à l'altération chimique de consommer autant de CO₂ que dans les zones tropicales humides dont le drainage est presque deux fois plus fort. Pourtant, la contribution de la dissolution des carbonates au flux total de bicarbonates est plus faible pour la zone tempérée que pour la zone tropicale (tabl. 19), ce qui voudrait dire que la forte consommation de CO₂ de la zone tempérée

Tableau 19 – Flux moyens spécifiques annuels d'ions bicarbonates (F_{HCO_3}), de CO₂ consommé (F_{CO_2}) et de bicarbonates issus de la dissolution des minéraux carbonatés (F_{CaCO_3}) pour les différentes zones climatiques et pour l'ensemble des surfaces exoréiques (F_{CO_2} et F_{CaCO_3} sont calculés par la méthode du bilan géochimique direct).

zone climatique	S 10 ⁶ km ²	Q mm/an	F_{HCO_3} 10 ³ moles/km ² .an	F_{CO_2}	F_{CaCO_3}	F_{CO_2}/F_{HCO_3}	F_{CaCO_3}/F_{HCO_3} %
arctique (sans glace)	23,3	236	302	190	112	62,9	37,1
tempérée	14,1	294	638	435	203	68,2	31,8
semi-aride et aride	20,5	31	79	62	17	78,5	21,5
tropical contrasté	13,2	166	185	144	41	77,8	22,2
tropical humide	28,5	875	588	379	209	64,4	35,6
Total surf. exoréiques	99,6	375	370	246	124	66,5	33,5

Tableau 20 – Flux moyens totaux (10^9 moles/an) des éléments majeurs en solution issus de l'altération chimique des différents minéraux pour chaque zone climatique et pour l'ensemble des surfaces exorétiques.

ZONE CLIMATIQUE	S	Q	F _{CO2}	F _{CO2h}	F _{CaCO3}	Na		K		Ca			Mg		Cl		SO ₄	
						silicates	évap.	sil.	évap.	silicates	carb.	gypse	silicates	gypse	carb.	évap.	gypse	pyrite
arctique (11 bassins)	Obs (1)	3001.0	2411.6	2713.0	1425.2	373.5	582.1	78.6	146.3	274.8	1140.2	320.2	300.9	285.0	728.4	320.2	157.8	
	f(S) (2)		4163.6	4684.0	2460.6	644.9	1005.0	135.6	252.7	474.5	1968.5	552.9	519.4	492.1	1257.6	552.9	272.5	
	f(Q) (3)		4418.1	4970.2	2610.9	684.3	1066.4	143.9	268.1	503.5	2088.8	586.6	551.2	522.2	1334.5	586.6	289.2	
tempérée (5 bassins)	Obs (1)	1132.0	1673.3	1800.5	780.2	283.7	558.4	65.3	6.5	198.1	624.1	276.7	270.3	156.0	564.9	276.7	132.8	
	f(S) (2)		4848.5	5217.0	2260.6	822.1	1617.9	189.3	19.0	574.0	1808.5	801.6	783.2	452.1	1636.8	801.6	384.7	
	f(Q) (3)		6136.6	6602.9	2861.1	1040.6	2047.7	239.6	24.0	726.5	2288.9	1014.6	991.3	572.2	2071.7	1014.6	486.9	
aride et semi-aride (5 bassins)	Obs (1)	1111.0	223.6	264.6	61.3	92.9	215.9	6.7	3.2	2.6	49.0	71.0	75.5	12.3	219.1	71.0	26.2	
	f(S) (2)		1228.4	1453.4	336.6	510.3	1185.9	36.8	17.5	14.1	269.3	389.9	414.8	67.3	1203.4	389.9	144.0	
	f(Q) (3)		1280.8	1515.4	351.0	532.1	1236.5	38.4	18.2	14.7	280.8	406.5	432.5	70.2	1254.7	406.5	150.1	
tropicale contrastée (7 bassins)	Obs (1)	1326.0	1153.4	1088.2	325.9	291.5	303.6	82.6	147.0	147.0	260.7	41.8	146.1	65.2	303.6	41.8	99.0	
	f(S) (2)		1666.9	1572.7	471.0	421.3	438.8	119.3	212.4	212.4	376.8	60.5	211.1	94.2	438.8	60.5	143.0	
	f(Q) (3)		1903.1	1795.5	537.7	481.0	501.0	136.2	242.5	242.5	430.1	69.0	241.1	107.5	501.0	69.0	163.3	
tropical humide (10 bassins)	Obs (1)	11858.0	5142.4	5099.9	2840.6	614.1	746.3	366.5	2.8	470.6	2272.5	308.8	465.0	568.1	749.1	308.8	296.3	
	f(S) (2)		9110.2	9035.0	5032.4	1088.0	1322.2	649.3	5.0	833.8	4025.9	547.1	823.8	1006.5	1327.2	547.1	525.0	
	f(Q) (3)		10809.9	10720.6	5971.3	1290.9	1568.8	770.5	5.9	989.3	4777.0	649.2	977.5	1194.3	1574.8	649.2	622.9	
TOTAL SURFACES EXOREIQUES	Obs (1)	17428	10604.3	10966.2	5433.2	1655.7	2406.3	599.7	158.8	1093.1	4346.5	1018.5	1257.8	1086.6	2565.1	1018.5	712.1	
f(S) (2)	21017.6		21962.1	10561.2	3486.6	5569.8	1130.3	294.2	2108.8	8449.0	2352.0	2752.3	2112.2	5863.8	2352.0	1469.2		
f(Q) (3)	24548.5		25604.6	12332.0	4028.9	6420.4	1328.6	316.2	2476.5	9865.6	2725.9	3193.6	3193.6	6736.7	2725.9	1712.4		

(a) calculé à partir du flux total de bicarbonates (bilan géochimique direct)

(b) calculé d'après le bilan de la consommation de CO₂ par quantité de minéral altéré (bilan géochimique indirect)

(1) somme des valeurs observées sur les fleuves de la zone

(2) flux extrapolés par les surfaces (S en 10⁶ km²)

(3) flux extrapolés par les débits (Q en km³/an)

Tableau 21 - Origine minéralogique des produits de l'altération chimique en % du flux total de chaque élément ; comparaison avec d'autres estimations.

		ce travail	MEYBECK (1987)	WOLLAST et MACKENZIE (1983)	MEYBECK (1979)	HOLLAND (1978)
Ca ⁺⁺	silicates	17	26	18	5	18
	carbonates	65	67	68	82	68
	évaporites	18	7	14	13	14
Mg ⁺⁺	silicates	56	48	68	8	57
	carbonates	44	42	40	81	37
	évaporites	0	10	11	11	6
Na ⁺	silicates	39	46	43	44	48
	évaporites	63	54	57	56	52
K ⁺	silicates	81	95	100	100	83
	évaporites	19	5	0	0	17
Cl ⁻	évaporites	100	100	-	100	100
SO ₄ ²⁻	évaporites (sulfates)	61	60	72	72	50
	pyrite	39	40	28	28	50
HCO ₃ ⁻	carbonates	33	33	35	44	35
	atmosphère	67	67	56	56	65
	mat. org. fossile	-	-	9	-	-
Σ ⁺	silicates	34	35	45	14	14
	carbonates	37	51	38	68	
	évaporites	29	14	17	18	86

serait plutôt due à la présence abondante de shales, roches sensibles à l'altération chimique mais peu ou pas carbonatées, plutôt qu'à des carbonates.

Le tableau 21 montre l'origine minéralogique des flux, exprimée en pourcents de la totalité du flux de chaque élément chimique majeur. On remarque ainsi que le flux de calcium est essentiellement dû à la dissolution des carbonates (65%), les flux de magnésium et de potassium à la dissolution des silicates (56% et 81% respectivement) et le flux de sodium à la dissolution des évaporites (63%). Ainsi, 37% des flux de cations sont produits par l'altération des carbonates, 34% par l'altération des silicates et 29% par la dissolution des évaporites. Lorsqu'on compare ces résultats à ceux obtenus antérieurement par d'autres auteurs (tabl. 21), on remarque que la contribution des évaporites aux flux de cations que nous avons calculés est pratiquement le double de celle estimée par d'autres auteurs. La contribution des évaporites est essentiellement déterminée par les flux d'ions SO₄²⁻ et Cl⁻. Or l'intensité de ces flux est très sensible aux activités anthropiques et aux pollutions, dont les contributions sont difficilement estimables.

IV - MODÉLISATION

PROBST (1992) et PROBST *et al.* (1992a) déterminent par régression multiple les relations entre les flux d'éléments majeurs en solution et les paramètres hydroclimatiques, biologiques et géologiques pour les grands bassins fluviaux. Le flux de bicarbonates transportés par les grands fleuves mondiaux (F_{HCO₃}), en 10³ moles/km².an, s'exprime alors en fonction du drainage (D) en mm/an, de l'intensité culturale (Ic) en % et de la pente moyenne des terrains (Pt) en %, comme suit :

$$\ln(F_{HCO_3}) = 0,714 \ln(D) + 0,047Pt + 0,022Ic - 1,933 \quad (42)$$

Nous proposons ici de déterminer un modèle multivarié similaire pour les flux spécifiques de CO₂ consommé.

A - MÉTHODE DE CALCUL

Le flux de CO₂ consommé par érosion chimique est contrôlé par différents facteurs environnementaux tels que le drainage et la lithologie. Nous avons vu que ces deux paramètres ne pouvaient expliquer à eux seuls la variabilité de la consommation de CO₂ sur les grands bassins fluviaux. Nous proposons maintenant de mettre en relation la consommation de CO₂ avec les principaux facteurs environnementaux que nous avons définis au début de ce chapitre (tabl. 9 et 10), et de définir parmi eux ceux qui la contrôlent de façon significative. Pour cela, nous avons utilisé les procédures de régression multiple du logiciel de traitement de données SAS (SAS Institute Inc., 1985). Ces procédures introduisent une à une les variables explicatives indépendantes dans un modèle à p variables, en retenant à chaque pas le modèle à p+1 variables ayant le meilleur coefficient de corrélation. Ensuite, la sélection du modèle possédant le nombre optimal de variables est basée sur le calcul d'un paramètre statistique, le C(p) de MALLOW (1973), déterminé à chaque pas de la régression. Le C(p) correspond au carré de l'erreur totale pour un modèle à p variables et il est calculé comme suit :

$$C(p) = \left(\frac{SSE(p)}{MSE} \right) - (N - 2p) + 1 \quad (43)$$

où SSE(p) est la somme des carrés des erreurs pour le modèle à p variables, MSE est la moyenne des carrés des erreurs (variance), N est la taille de l'échantillon et p est le nombre de variables introduites dans le modèle. Lorsque C(p) > (p + 1), le modèle est incomplètement spécifié, c'est-à-dire qu'il ne contient pas assez de variables. Lorsque C(p) < (p + 1), le modèle est sur-spécifié, c'est-à-dire qu'il contient probablement trop de variables. Nous considérerons que le nombre optimal de variables dans le modèle est atteint dès que C(p) devient inférieur à p+1. De plus, nous ne retiendrons dans le modèle que les variables dont le seuil de signification est inférieur à 10 %.

B - RÉSULTATS

L'intensité de la consommation de CO₂ (F_{CO₂}) ainsi que le flux spécifique de bicarbonates transporté par les fleuves (F_{HCO₃}), tous deux exprimés en 10³ moles/km².an, sont introduits dans les procédures de régression multiple comme variable dépendante. Les différentes variables explicatives testées sont le drainage (D) en mm/an, l'altitude moyenne (H) en m, la pente moyenne des terrains (Pt) en %, l'indice de drainage des roches carbonatées (Icarb) en %, l'indice de drainage des shales (Ishal) en %, l'indice de végétation (Iv) variant de 0 à 6, l'intensité culturale (Ic) en % et l'indice de protection des sols (Ips) variant de 0 à 6. La pluviosité (P) en mm/an ainsi que la température de l'air (T) en °C n'ont pas été introduites dans le modèle car elles sont corrélées au drainage.

L'évolution de C(p) en fonction de (p+1) (fig. 33) permet de retenir un modèle à 5 variables, qui exprime le logarithme népérien de l'intensité de la consommation de CO₂ (F_{CO₂}) en fonction du drainage (D), de la pente des terrains (Pt), du coefficient d'intensité culturale (Ic) et des coefficients de drainage des roches carbonatées (Icarb) et détritiques argileuses (Ishal), selon l'équation suivante :

$$\ln(F_{CO_2}) = 0,527 \ln(D) + 0,037Pt + 0,012Ic + 0,014Icarb + 0,007Ishal + 1,42 \quad (44)$$

Le coefficient de corrélation est de 0,90 et le modèle est significatif à 0,01 %. En ce qui concerne le flux spécifique de bicarbonates (F_{HCO₃}), un modèle à 5 variables est également retenu (fig. 33) et l'équation correspondante est la suivante :

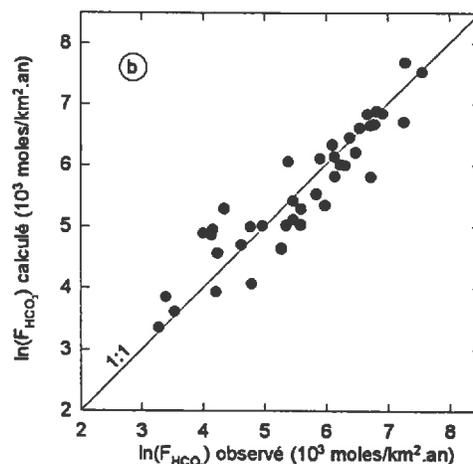
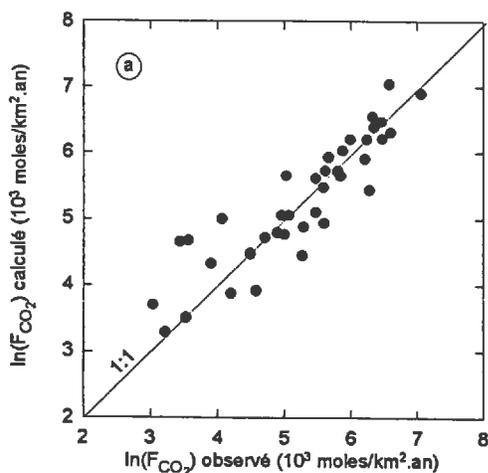
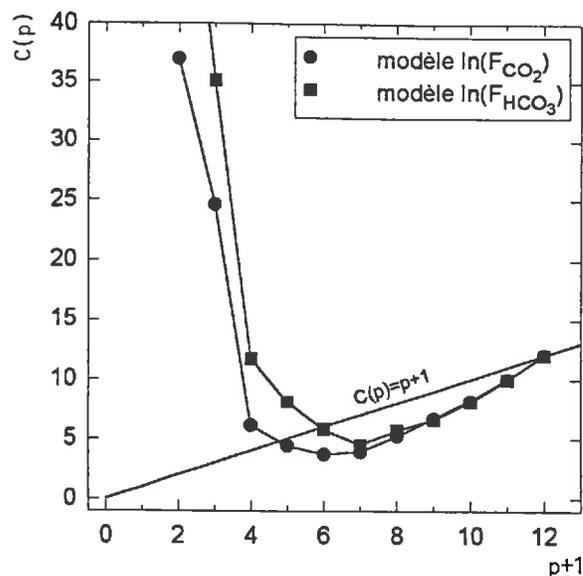
$$\ln(F_{HCO_3}) = 0,615 \ln(D) + 0,039Pt + 0,017Ic + 0,012Icarb + 0,008Ishal + 1,156 \quad (45)$$

Le coefficient de corrélation est de 0,92 et le modèle est significatif à 0,01 %.

Les modèles que nous avons définis (éq. 44 et 45) contiennent un plus grand nombre de variables que celui proposé par PROBST (1992) et PROBST *et al.* (1992 a) pour le flux de bicarbonates (éq. 42). Le logarithme népérien du drainage (D) est la première variable explicative introduite par la procédure, ce qui confirme

Fig.33 - Evolution du coefficient $C(p)$ de Mallow en fonction du nombre de variables introduites dans les modèles.

Fig.34 - Comparaison (a) des flux de CO_2 consommés et (b) des flux de bicarbonates exportés prédits par les modèles de régressions multiples avec ceux respectivement calculés et observés sur les grands bassins fluviaux.



la bonne corrélation entre le flux spécifique de CO_2 consommé et le drainage que nous avons observé plus haut (fig. 33).

Tout comme pour le modèle de PROBST (1992), nos deux modèles retiennent l'indice d'intensité culturelle (I_c) et la pente des terrains (P_t). PROBST (1992) expliquait la présence de ces deux paramètres dans son modèle par leur relation avec la distribution globale des surfaces carbonatées correspondant aux régions montagneuses et aux grandes régions cultivées de l'hémisphère Nord. Cette explication paraît moins satisfaisante aujourd'hui, car les intensités de drainage des roches carbonatées (I_{carb}) et des shales (I_{shal}), présentes dans nos modèles, auraient dû prendre la place de I_c et P_t . Le facteur pente (P_t) pourrait plutôt traduire la fracturation plus importante des roches et leur plus grande exposition à l'altération chimique dans les zones récemment affectées par des orogénèses. Ainsi, nous avons pu voir au chapitre II que le flux de CO_2 consommé est deux fois plus grand lors de l'altération des roches volcaniques acides que lors de l'altération des roches plutoniques, pourtant chimiquement très proches. Par contre, aucune autre explication que celle apportée par PROBST (1992) ne permet d'expliquer la présence de l'indice d'intensité culturelle (I_c) dans nos deux relations.

Enfin, les figures 34 a et 34 b montrent que les flux théoriques calculés pour chacun des 45 fleuves à l'aide des équations (44) et (45) sont relativement bien ajustés aux flux observés.

V – CONCLUSIONS

Le flux moyen annuel de CO₂ consommé par érosion chimique a été déterminé pour 38 grands bassins fluviaux à partir des flux de bicarbonates et d'éléments majeurs corrigés des apports atmosphériques et exportés par les fleuves. Pour déterminer ces flux de CO₂ consommé, nous avons développé une méthode (modèle MEGA, "Major Elements Geochemical Approach") qui permet de reconstituer l'origine minéralogique de chacun des flux d'éléments majeurs issus de l'érosion chimique des roches. Le flux de CO₂ consommé peut alors être estimé de deux manières : (i) directement à partir des flux de bicarbonates auxquels on retranche la part provenant des minéraux carbonatés (bilan géochimique direct), (ii) indirectement en faisant le bilan de la consommation de CO₂ par minéral dissous (bilan géochimique indirect).

La variabilité des flux moyens annuels spécifiques de CO₂ ainsi calculés est très forte. C'est sur le petit bassin du Pô que la consommation de CO₂ est la plus intense, avec un flux de près de 1200.10³ moles/km².an. Par contre, cette consommation peut être également très faible comme sur le bassin du Murray où elle n'atteint que 20.10³ moles/km².an, soit 60 fois moins que sur le bassin du Pô.

Les deux principaux facteurs de la variabilité du flux de CO₂ consommé d'un fleuve à l'autre sont l'intensité du drainage et la lithologie. Ainsi, plus le débit augmente, plus la consommation de CO₂ est intense. Cependant, pour certains fleuves, à drainage équivalent le flux de CO₂ consommé est plus faible que celui observé pour l'ensemble des fleuves. Les bassins qui s'écartent ainsi de la tendance générale (les bassins de l'Amazone, de l'Orénoque, du Parana, du Congo, du Niger et du Zambèze) sont tous recouverts, en partie ou en totalité, d'épais profils latéritiques, qui sont très pauvres en minéraux altérables et dont l'altération chimique limitée consomme peu de CO₂.

L'influence de la lithologie apparaît également à travers deux paramètres, Icarb et Ishal, qui représentent la contribution relative, respectivement du drainage des roches carbonatées et du drainage des roches détritiques argileuses au drainage total. En effet, plus Icarb et Ishal augmentent, plus le flux de CO₂ a tendance à augmenter. Cependant, cette relation n'est pas très nette, ce qui laisse penser que d'autres types de roches et/ou d'autres facteurs tels que la température moyenne de l'air sont à prendre en compte. On a alors pu mettre en évidence une relation entre le flux de CO₂ consommé et la contribution moyenne (Icarb + Ishal) du drainage des roches les plus consommatrices de CO₂ (les roches carbonatées et les roches détritiques argileuses) au drainage total du bassin.

Nous avons alors utilisé une procédure de régression multiple pour déterminer une relation entre le flux de CO₂ consommé et les principaux paramètres hydroclimatiques, biologiques et géologiques des bassins. La modélisation par régression multiple met en évidence l'influence positive de cinq paramètres qui sont, par ordre d'importance : le drainage, la pente des terrains, la proportion de surfaces cultivées, la contribution du drainage des roches carbonatées et des roches détritiques argileuses au drainage total. La présence du facteur "pente" parmi les cinq variables retenues pourrait s'expliquer par l'exposition plus importante des roches à l'érosion chimique dans les zones soumises à des orogénèses récentes. Par contre, le rôle des cultures dans l'intensité de la consommation de CO₂ paraît plus difficile à expliquer, sinon que l'indice d'intensité culturale pourrait traduire l'influence d'un autre facteur qui n'est pas pris en compte dans la procédure de régression multiple.

Grâce au modèle de décomposition des flux d'éléments majeurs (MEGA), l'origine minéralogique de chaque flux a été reconstituée dans chaque bassin. Nous avons pu alors effectuer une rapide étude de la dynamique de la silice sur les grands bassins fluviaux. Deux grands ensembles de bassins se sont alors individualisés : (i) les bassins des régions tropicales, où l'évacuation de la silice est importante et où l'altération chimique très poussée tend vers la monosiallisation et l'allitisation ; (ii) les bassins des régions arides, tempérées et arctiques, où l'évacuation de la silice est plus modérée et où l'altération est plutôt de type monosiallitique. Nos résultats rejoignent les conclusions de TARDY (1969) sur la dynamique de la silice dans des petits bassins versants sous climats tropicaux-équatoriaux, arides et tempérés. Ceci confirme en partie la validité de la méthode du bilan géochimique utilisée pour reconstituer l'origine minéralogique des flux

d'éléments majeurs ainsi que le flux de CO₂ consommé. Cela montre en outre que la méthode peut être utilisée pour étudier la dynamique de l'érosion chimique sur les grands bassins versants.

Pour finir, nous avons extrapolé à l'ensemble des surfaces continentales les flux de CO₂ consommé ainsi que les flux d'éléments majeurs, décomposés par minéraux d'origine, déterminés pour chaque bassin. Le flux moyen de CO₂ consommé par érosion chimique des continents est ainsi estimé à 0,29 GtC/an ($24,5 \cdot 10^{12}$ moles/an). Cette estimation est légèrement supérieure à celle de MEYBECK (1987), mais comparable à celles de BERNER *et al.* (1983) et PROBST (1992).

Chapitre IV

VARIATIONS SAISONNIÈRES ET INTERANNUELLES DE LA CONSOMMATION DE CO₂. CAS DES BASSINS DE LA GARONNE ET DU CONGO

Nous avons observé jusqu'à maintenant les variations spatiales de la consommation de CO₂ et des facteurs tels que la lithologie et le drainage qui la contrôlent. Il s'agit maintenant d'étudier les fluctuations temporelles de cette consommation de CO₂. L'étude de ces fluctuations, en relation avec les paramètres hydroclimatiques, devrait nous permettre de mieux connaître les mécanismes qui régissent la consommation de CO₂ à l'échelle d'un grand bassin versant.

Pour cela nous étudierons en détail deux bassins versants : (i) le bassin de la Garonne, en climat tempéré, pour lesquels nous avons rassemblé les données moyennes mensuelles de température de l'air et de débit pour la période 1948–1989 ainsi que les données de concentration en éléments majeurs dissous pour la période 1971–1992 ; (ii) les bassins du Congo et de l'Oubangui (affluent du Congo), en climat tropical humide, pour lequel nous disposons des données mensuelles de débit et de concentration en éléments majeurs dissous depuis 1987. Pour chacun de ces bassins, nous déterminerons les variations saisonnières du flux de CO₂ consommé par érosion chimique à l'aide du modèle de bilan géochimique développé dans le chapitre précédent, puis nous déterminerons l'influence du débit et de la température sur ces fluctuations.

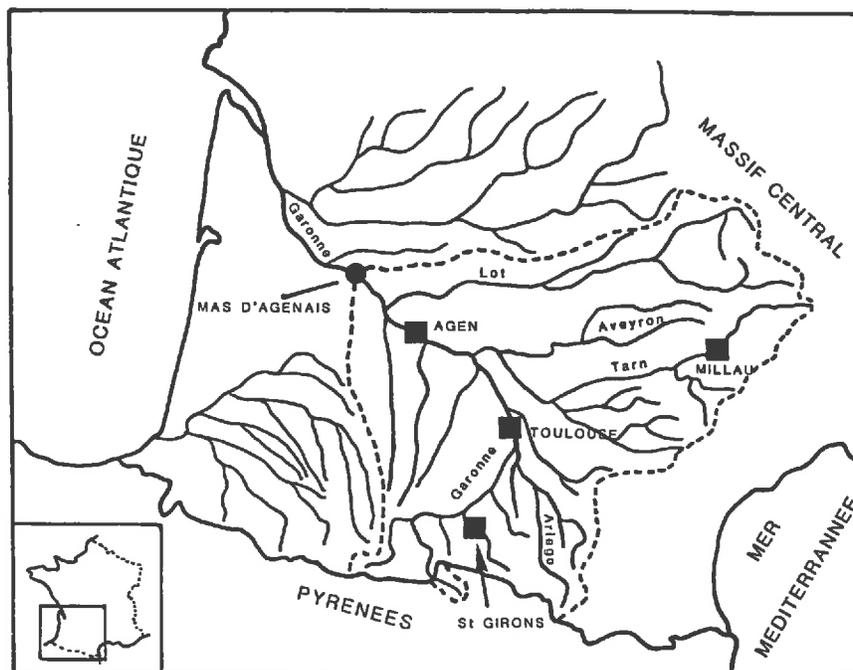
I – BASSIN DE LA GARONNE

A – MATÉRIEL

1. Présentation du bassin

Le bassin de la Garonne (fig. 35) est l'un des principaux bassins versants français, avec une superficie de 52 000 km² et un débit moyen annuel de 684 m³/s à la station de jaugeage du Mas d'Agenais pour la période 1971–1984 (ETCHANCHU et PROBST, 1988). Les caractéristiques hydrogéochimiques du bassin sont bien connues, notamment à travers le suivi de qualité des eaux effectué par l'Agence de Bassin Adour–Garonne (AFBAG) et les travaux de PROBST (1983) et ETCHANCHU (1988).

Le bassin est divisé en trois grandes structures géologiques : (i) la partie Sud-Ouest du Massif Central, constituée essentiellement de formations plutoniques et métamorphiques du socle hercynien, couvertes au Sud par des formations carbonatées mésozoïques et au Nord par des formations volcaniques tertiaires ; (ii) la chaîne des Pyrénées, composée de formations plutoniques et métamorphiques, recouverte au Nord par des formations carbonatées d'âge secondaire et tertiaire ; (iii) le bassin sédimentaire Aquitain, où affleurent essentiellement des molasses oligocènes non carbonatées sur la rive gauche de la Garonne et des molasses miocènes carbonatées sur la rive droite de la Garonne. Ainsi, le substratum du bassin de la Garonne est



● exutoire du bassin, □ stations des mesures de la température de l'air utilisées dans cette étude

Fig.35 – Carte de situation du bassin de la Garonne.

composé de 30 % de roches plutoniques et métamorphiques, 23 % de roches carbonatées, 16 % de molasses non carbonatées, 15 % de molasses carbonatées, 13 % d'alluvions récentes et de 3 % de formations volcaniques (calculé d'après la carte géologique de France au 1/1 500 000 ; BRGM, 1980).

2. Les données

Les valeurs moyennes mensuelles de la température de l'air nous ont été fournies par l'Agence de Bassin Adour-Garonne (AFBAG) pour les stations d'Agen, de Toulouse, de Millau et de Saint-Girons (fig. 35), de 1949 à 1989. L'AFBAG nous a également fourni les débits moyens mensuels de la Garonne au Mas d'Agenais pour la même période de temps. Les données de concentrations en éléments majeurs dissous, pour la période 1971-1989, ainsi que les débits instantanés correspondants, publiés annuellement par le Ministère de l'Environnement (1971-1989), proviennent également de la banque de données de l'AFBAG. L'échantillonnage est effectué une fois par mois environ, à la station de Couthures, située à 12 km en aval du Mas d'Agenais. De 1989 à 1991, les données de concentrations en éléments majeurs et les débits correspondants ont été acquis au cours du programme ONT Garonne ("Observatoire National de Terrain Garonne") de DBT ("Dynamique et Bilan de la Terre") à la station de La Réole (30 km en aval du Mas d'Agenais), avec un échantillonnage hebdomadaire.

Dans un premier temps, nous examinerons les fluctuations saisonnières et interannuelles des débits et de la température de l'air sur les 40 dernières années, et nous tenterons de dégager les principales relations liant ces deux paramètres. Ensuite, nous examinerons l'évolution de la consommation de CO₂ au cours des 20 dernières années, et nous tenterons de déterminer l'influence des fluctuations hydroclimatiques sur celle-ci.

B - FLUCTUATIONS DES DÉBITS ET DE LA TEMPÉRATURE DE L'AIR DEPUIS 1950

Dans le premier chapitre de cette étude, nous avons pu voir que la température était un facteur potentiel important de l'érosion chimique. En effet, la température influence la solubilité ainsi que la vitesse de dissolution des différents minéraux. En outre, la température contrôle aussi la vitesse de minéralisation de la matière organique dans les sols : plus il fait chaud, et à condition que le sol soit suffisamment humide, plus la dégradation de la matière organique est intense et plus la $p\text{CO}_2$ des sols est élevée, ce qui aura pour conséquence d'accroître l'agressivité des eaux percolant dans ces sols.

Un autre facteur potentiel de l'érosion chimique, et donc de la consommation de CO_2 , est l'intensité du drainage. En effet, plus l'humidité des sols est forte, plus la dégradation de la matière organique et la production d'acide carbonique sont élevées et plus la dissolution des minéraux est intense. En outre, l'intensité du drainage rend compte à la fois du renouvellement des solutions altérantes en contact avec les minéraux et de l'intensité du transfert des éléments en solution, depuis les fronts d'altération jusqu'aux océans.

Sur le bassin de la Garonne, les fluctuations de la consommation de CO_2 par érosion chimique devraient ainsi pouvoir être reliées aux variations du drainage et de la température. Nous proposons dans un premier temps d'examiner les fluctuations saisonnières et interannuelles des débits de la Garonne au Mas d'Agenais et de la température de l'air du bassin.

L'étude du régime hydrologique de la Garonne a déjà fait l'objet de nombreuses études parmi lesquelles on peut citer celles de PARDE (1956), LAMBERT (1975) et PROBST et TARDY (1985). Ces derniers, dans une étude hydroclimatique détaillée du bassin de la Garonne et de ses affluents, ont montré que les variations de débit à l'exutoire du bassin sont tout à fait représentatives des fluctuations climatiques moyennes qui ont affecté l'ensemble du bassin. Au cours des 80 dernières années, trois grandes périodes hydroclimatiques sont mises en évidence : une période humide de 1914 à 1941, une période sèche de 1942 à 1958, et enfin une période moyennement humide, dite "normale", de 1959 à 1978.

Nous proposons dans ce travail de comparer l'évolution des débits de la Garonne à l'exutoire du bassin avec celle de la température de l'air, de 1949 à 1989.

1. Choix des données de température

L'AFBAG nous a fourni des valeurs moyennes mensuelles de la température de l'air pour quatre stations réparties sur le bassin de la Garonne (fig. 35). Ces stations sont Agen sur le cours inférieur de la Garonne, Toulouse au centre du bassin, Saint-Girons dans les Pyrénées et enfin Millau sur le cours supérieur du Tarn dans le Massif Central.

La détermination d'une température moyenne de l'air précise représentative du bassin à partir de quatre stations seulement, même judicieusement réparties, apparaît difficile. Nous proposons donc de choisir la station la plus représentative des variations de température de l'air sur le bassin. Celle de Toulouse, située au centre du bassin, entre Massif Central et Pyrénées, et soumise aux diverses influences climatiques, apparaît toute désignée. De plus, les valeurs moyennes mensuelles de la température de l'air à Toulouse sont celles qui sont le mieux corrélées ($r = 0,97$) aux valeurs moyennes mensuelles de la température de l'eau mesurée au Mas d'Agenais, à l'exutoire du bassin (fig. 36).

2. Variations saisonnières des débits et de la température de l'air

Le débit de la Garonne au Mas d'Agenais peut être assimilé au drainage moyen du bassin versant, lequel correspond à la différence entre le volume d'eau précipitée et le volume d'eau évapotranspirée. Ce dernier est en partie fonction de la température. Dès lors, on devrait observer une relation négative entre le débit et la température.

La figure 37 représente les variations saisonnières interannuelles du débit de la Garonne au Mas d'Agenais et de la température de l'air à Toulouse pour la période 1949-1989. La température est à son minimum en

Fig.36 – Relation entre la température de l'air à Toulouse (T_{air}) et la température des eaux de la Garonne (T_{eau}) à l'exutoire du bassin (Mas d'Agenais) pour la période 1971–1989 (T_{air} : moyennes mensuelles, T_{eau} : échant. mensuels).

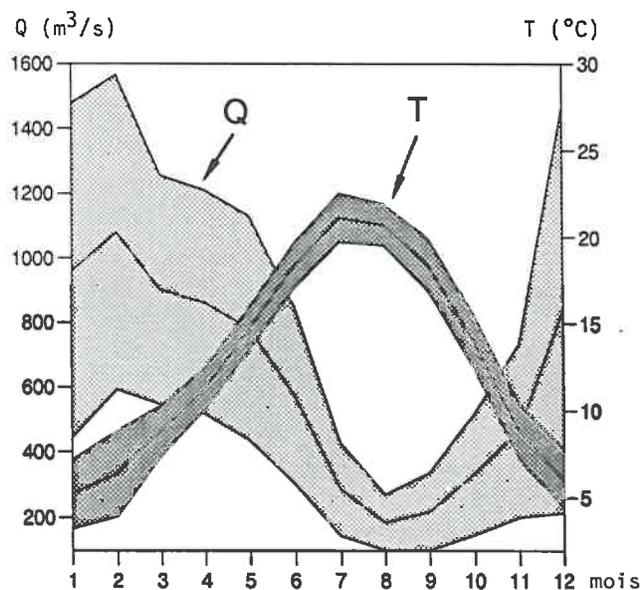
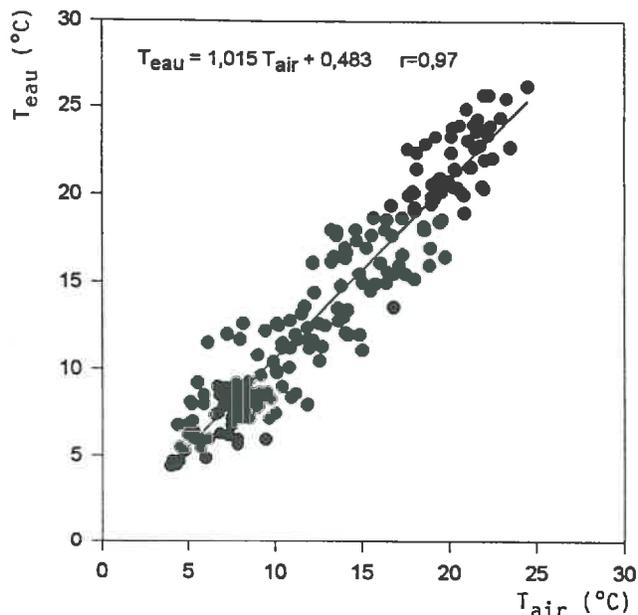


Fig.37 – Variations saisonnières de la température de l'air à Toulouse (T en $^{\circ}C$) et du débit de la Garonne au Mas d'Agenais (Q en m^3/s). Les moyennes mensuelles interannuelles et les intervalles de variation sont calculés pour la période 1949–1989.

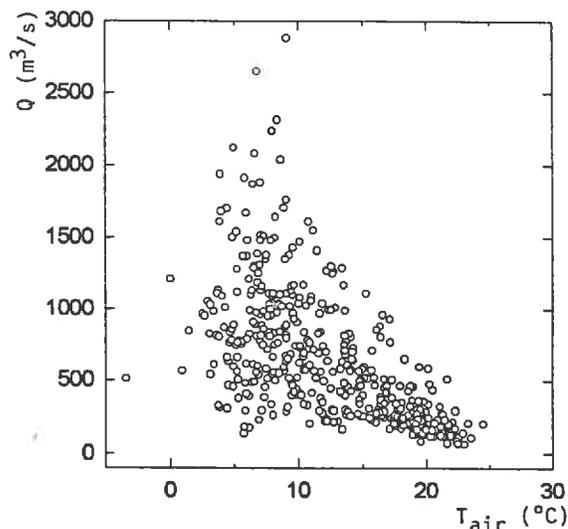


Fig.38 – Relation entre la température moyenne mensuelle de l'air à Toulouse (T) et le débit moyen mensuel de la Garonne au Mas d'Agenais (Q) pour la période 1949–1989.

janvier, puis remonte dès le mois de février pour atteindre son maximum au mois de juillet. On distingue deux périodes dans le régime hydrologique de la Garonne : une période de hautes eaux, de novembre à mai, et une période de basses eaux, de juin à octobre. Le débit est maximum en février, puis il décroît et atteint son minimum en août. Il marque cependant un palier de mars à mai, en raison de la fonte des neiges. Les variations de débit s'opposent donc à celles de la température, avec un déphasage d'un mois environ. C'est pourquoi nous avons décalé le débit moyen mensuel d'un mois avant de le mettre en relation avec la température de l'air. Le débit apparaît alors comme une fonction inverse de la température (fig. 38), mais avec une variabilité importante pour les faibles et les moyennes températures. Examinons maintenant l'évolution de ces deux paramètres d'une année sur l'autre.

3. Variations interannuelles des débits et de la température de l'air

Les moyennes interannuelles de température de l'air à Toulouse et de débit au Mas d'Agenais pour la période 1949–1989 sont respectivement de $12,8^{\circ}\text{C}$ et de $610\text{ m}^3/\text{s}$ ($370\text{ mm}/\text{an}$). L'évolution des moyennes mobiles sur cinq ans du débit et de la température de l'air de 1949 à 1989 est présentée sur la figure 39. On remarque en premier lieu l'alternance des périodes de faibles débits (périodes sèches) avec des périodes plus humides de forts débits, l'intervalle de temps entre deux périodes sèches étant de 3 à 4 ans en moyenne. Il en est de même pour la température de l'air, avec cependant des périodes généralement plus longues (de 5 à 6 ans). Ainsi, deux périodes froides, le plus souvent courtes, sont séparées par une période de 5 à 6 ans comportant 2 maxima brièvement entrecoupés d'une période légèrement plus fraîche.

On remarque ensuite que la température de l'air et le débit évoluent en opposition de phase à l'échelle des 40 dernières années, tout comme à l'échelle des saisons (fig. 39). En effet, les périodes humides, comme de 1967 à 1974 ou de 1975 à 1981, sont plutôt des périodes froides, et inversement, les périodes sèches sont généralement chaudes.

Si température et débit évoluent en sens opposé à l'échelle de quelques années, on observe par contre une tendance à l'accroissement de ces deux paramètres climatiques au cours des quarante dernières années. Ainsi, depuis 1950, le climat du bassin de la Garonne est devenu plus humide mais également plus chaud. On reconnaît là le mode climatique normal chaud-humide/froid-sec défini par TARDY (1986) par opposition au mode climatique anormal chaud-sec et froid-humide. En outre, cette tendance à l'augmentation du débit avec la température de l'air depuis 40 ans sur le bassin de la Garonne rejoint les conclusions de PROBST et TARDY (1989), qui montrent qu'au cours du dernier siècle et à l'échelle globale les fluctuations du drainage suivent une tendance à l'augmentation, en même temps que les variations de la température de l'air.

Pour chaque année, on définit le mode climatique par rapport à la moyenne interannuelle du débit ($610\text{ m}^3/\text{s}$) et de la température ($12,8^{\circ}\text{C}$). Pour les 40 dernières années, le mode climatique annuel dominant

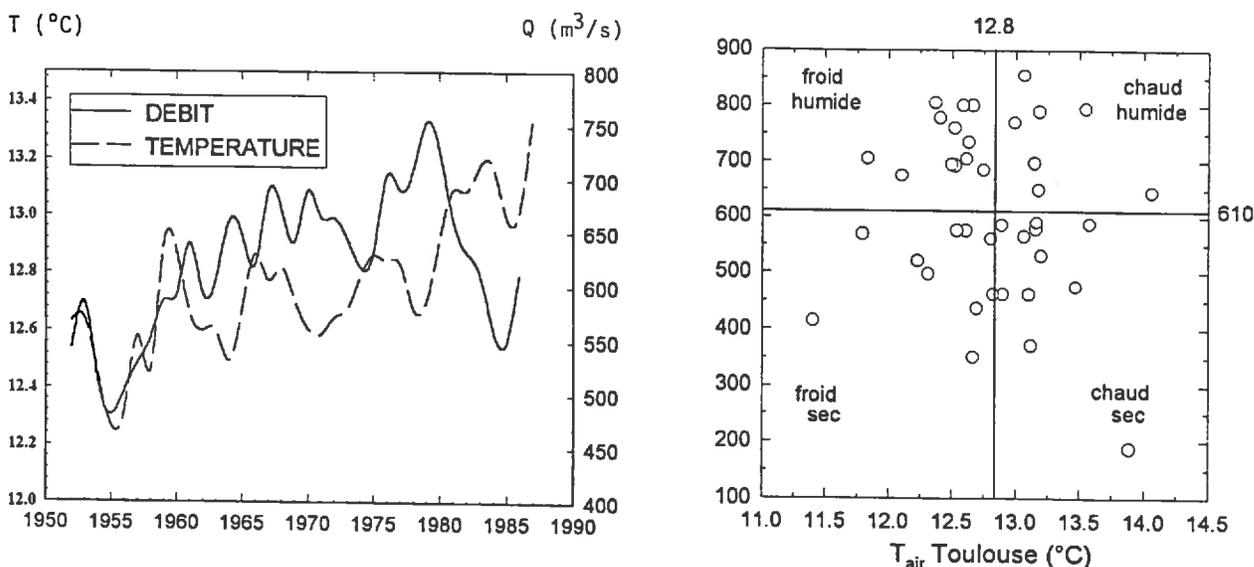


Fig.39 – Evolution de la température moyenne de l'air à Toulouse (T) et du débit moyen de la Garonne au Mas d'Agenais (Q) de 1952 à 1987. Les valeurs de température et de débit sont des moyennes mobiles sur 5 ans.

Fig.40 – Répartition des années selon les principaux modes climatiques (froid-humide, chaud-humide, froid-sec et chaud-sec). Les modes climatiques sont définis par rapport aux moyennes interannuelles de température de l'air à Toulouse ($12,8^{\circ}\text{C}$) et de débit au Mas d'Agenais ($610\text{ m}^3/\text{s}$) pour la période 1949–1989.

n'apparaît pas clairement, comme le montre la figure 40 représentant la distribution des moyennes annuelles dans un diagramme débit/température. Ainsi, 12 années sont de type froid-humide, 11 années de type chaud-sec, 10 années de type froid-sec et 7 années de type chaud-humide. La répartition est donc dispersée entre les différents modes climatiques, et la relation négative observée entre le débit et la température à l'échelle des variations saisonnières n'apparaît plus à l'échelle des variations interannuelles. Cependant, le mode climatique anormal (froid-humide et chaud-sec), au sens de TARDY (1986), est le plus représenté avec 23 années contre 17 pour le mode normal.

En résumé, les relations débit-température de l'air sur le bassin de la Garonne varient selon l'échelle de temps à laquelle on les observe. Ainsi, le débit est une fonction négative de la température à l'échelle des variations saisonnières, comme à l'échelle d'une année ou de 4 à 5 ans. Par contre, la tendance est à l'accroissement conjoint du débit et de la température de l'air sur les 40 dernières années.

C – FLUCTUATIONS DE LA CONSOMMATION DE CO₂ SUR LE BASSIN DE LA GARONNE DE 1971 A 1991

1. Variations saisonnières de la concentration en HCO₃⁻

On peut observer deux tendances dans les variations saisonnières de la concentration en bicarbonates des eaux de la Garonne à l'exutoire du bassin : les périodes de forts débits montrent généralement les plus fortes concentrations en bicarbonates alors que les concentrations en HCO₃⁻ les plus faibles s'observent le plus souvent lorsque les débits sont peu importants (fig. 41). Cette relation positive est également observée pour le calcium et le magnésium par ETCHANCHU (1988) à l'exutoire du bassin et par PROBST et BAZERBACHI (1986) sur la Garonne amont. Elle serait liée à la température plus basse qui favoriserait la mise en solution de la calcite en hiver. En outre, PROBST et BAZERBACHI (1986) observent que, pour chaque période hydrologique (période de hautes eaux de décembre à juillet et période de basses eaux d'août à novembre), la concentration en HCO₃⁻ est reliée négativement au débit, ce qui correspond à un phénomène de dilution. Cette relation à l'intérieur de chaque période hydrologique n'est pas observée sur la Garonne aval, probablement parce que les concentrations, très hétérogènes, résultent de l'apport de nombreux affluents drainant des zones hydroclimatiques différentes.

La concentration moyenne interannuelle en bicarbonates des eaux de la Garonne au Mas d'Agenais de 1971 à 1991 est de 137 mg/l. Les variations interannuelles montrent une tendance à l'accroissement de 1971 à 1984 (fig. 42) comme l'avaient déjà observé ETCHANCHU et PROBST (1988), mais semblent décroître depuis le maximum de 1987, notamment avec les faibles concentrations de 1989 et 1990. ETCHANCHU et PROBST (1988) attribuaient cette augmentation (d'environ 5%) entre 1971 et 1984 à l'accroissement des épandages d'engrais qui acidifient les sols par oxydation des composés azotés et contribuent à la dissolution des carbonates.

L'information apportée par les bicarbonates sur les processus d'altération chimique sur le bassin de la Garonne est très hétérogène et difficile à décoder. En effet, la concentration en bicarbonates résulte à la fois de la dissolution des roches carbonatées et de celle des roches silicatées, lesquelles sont réparties sur l'ensemble du bassin versant de la Garonne climatiquement hétérogène. L'estimation de la part de CO₂ atmosphérique dans la concentration en HCO₃⁻ devrait permettre de mieux apprécier les mécanismes contrôlant les variations de cette concentration.

2. Détermination du flux de CO₂ consommé par érosion chimique

Pour estimer le flux de CO₂ consommé par érosion chimique sur le bassin de la Garonne, nous utiliserons la méthode géochimique développée dans les chapitres II et III de ce mémoire. Cette méthode sera appliquée aux flux instantanés d'éléments majeurs en solution issus de l'érosion. Ces flux résultent du produit de la concentration mesurée au temps t, et corrigée des apports atmosphériques, par le débit correspondant.

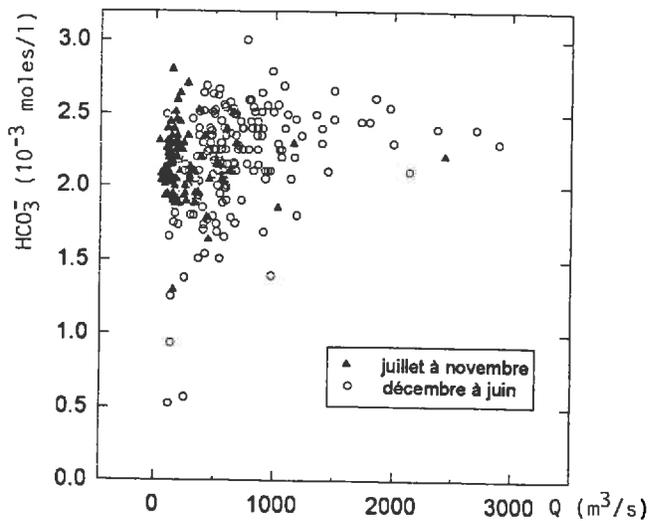
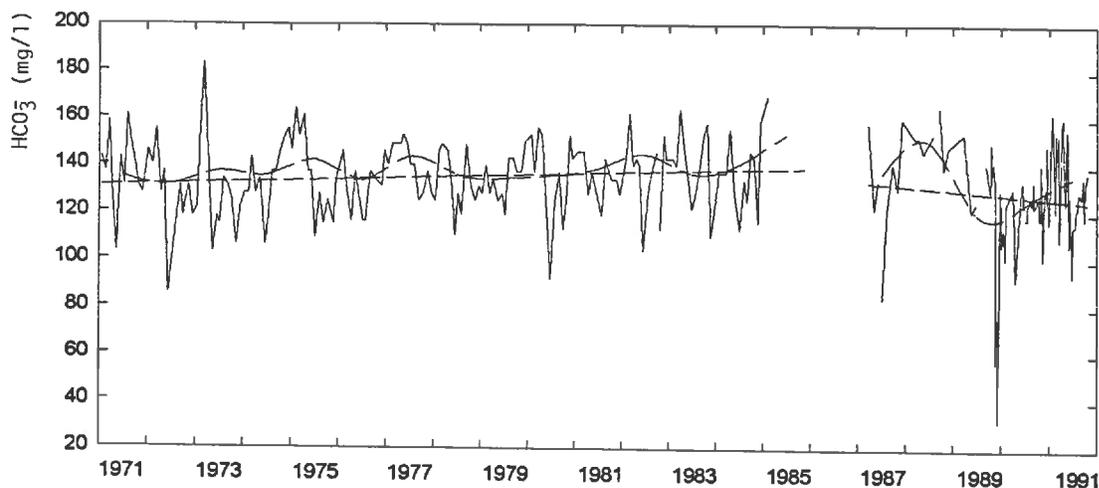


Fig.41 - Relations entre la concentration instantanée en HCO_3^- et le débit instantané (Q) au Mas d'Agenais pour la période 1971-1991.

Fig.42 - Evolution de la concentration en HCO_3^- dans les eaux de la Garonne de 1971 à 1991.



a) *Validité des données publiées par le Ministère de l'Environnement (1971-1989)*

Avant de procéder à l'estimation de la consommation de CO_2 sur la base des flux molaires d'éléments majeurs, nous avons examiné la qualité des analyses utilisées en vérifiant notamment l'électroneutralité. Pour cela nous avons calculé pour chaque échantillon l'erreur sur la balance ionique des solutions :

$$\text{erreur} = [(\Sigma\text{cations} - \Sigma\text{anions}) / (\Sigma\text{cations} + \Sigma\text{anions})] \times 200 \quad (46)$$

L'erreur généralement admise est de l'ordre de 5 à 6 %. Pour 20 % des analyses, l'erreur sur la balance ionique dépasse 10 % et correspond dans pratiquement tous les cas à un déficit cationique. ETCHANCHU (1988), qui a utilisé des données ayant la même source, attribue ce déficit à un dosage tardif du calcium. En effet, les eaux de la Garonne sont proches de la saturation vis-à-vis de la calcite, laquelle a pu précipiter, dans certains cas, avant que le calcium ne soit dosé. Nous avons donc corrigé les concentrations en calcium, de façon à rétablir l'équilibre de la balance ionique à chaque fois qu'un déficit de cations était observé.

b) Correction des apports atmosphériques

Comme pour l'ensemble des grands fleuves mondiaux, on considèrera que les rejets anthropiques modifient peu les flux d'éléments majeurs (Ca, Mg, Na, K, HCO_3^- , SO_4 , Cl et SiO_2) transportés par la Garonne. Le flux d'un élément majeur donné issu de l'altération chimique (Fec) est alors égal à la différence entre le flux transporté par la Garonne (Ft) et le flux apporté par les précipitations (Fatm).

$$F_{ec} = F_t - F_{atm} \quad (47)$$

Pour estimer les apports atmosphériques, nous avons utilisé les concentrations moyennes des éléments majeurs dissous dans les eaux de pluie du bassin de la Garonne (tabl. 22), déterminées par ETCHANCHU (1988). La concentration moyenne en Cl^- est calculée pour l'ensemble du bassin en utilisant les gradients de concentration en chlorures dans les eaux de pluie françaises en fonction de la distance à l'océan définis par MEYBECK (1986).

Tableau 22 – Concentrations moyennes en éléments majeurs dans les eaux de pluie du bassin de la Garonne d'après ETCHANCHU (1988).

	Ca^{++}	Mg^{++}	Na^+	K^+	Cl^-	SO_4^{--}	NO_3^-
mg/l	0,78	0,25	0,46	0,14	1,28	1,96	0,55

Les concentrations moyennes des autres éléments ($C_{i\text{atm}}$) sont alors calculées sur la base des rapports ioniques $C_{i\text{atm}}/C_{\text{Clatm}}$ dans les précipitations (d'après MEYBECK, 1986). Dès lors, les flux ($F_{i\text{atm}}$) apportés par les pluies (P) sur le bassin sont calculés pour chaque élément majeur comme suit :

$$F_{i\text{atm}} = C_{i\text{atm}} \times P \quad (48)$$

L'intensité moyenne des précipitations (P, en mm/an) est calculée pour l'ensemble du bassin sur la base du débit (Q, en mm/an) de la Garonne, en utilisant la relation empirique $P = f(Q)$ définie par ETCHANCHU (1988) :

$$P = (Q + 615)/1,07 \quad (49)$$

Pour chaque élément de concentration $C_{i\text{atm}}$ dans les eaux de pluie et C_{it} dans les eaux de la Garonne, on peut calculer le flux d'érosion chimique (Fec) d'après les équations (47), (48) et (49) :

$$F_{ec} = (C_{it} \times Q) - C_{i\text{atm}}[(Q + 615)/1,07] \quad (50)$$

c) Décomposition des flux d'éléments majeurs dissous

Le modèle géochimique déjà utilisé pour le calcul du flux de CO_2 consommé sur les grands bassins fluviaux du monde (chapitre III) nous permet ici aussi de faire le bilan de l'altération par grande catégorie minéralogique. Ainsi, la consommation de CO_2 peut être estimée de deux façons : (i) directement, en soustrayant le flux molaire de Ca+Mg provenant de l'altération des carbonates du flux total de HCO_3^- , (ii) indirectement, en faisant le bilan de la consommation de CO_2 par minéral altéré. Ce modèle géochimique a dû être adapté au cas du bassin de la Garonne, car une partie importante de sa superficie est soumise à une intense activité agricole. Il est apparu en effet nécessaire de tenir compte des effets directs et indirects des épandages d'engrais sur les surfaces agricoles.

Détermination des rapports R_{sil} et R_{pyr}

Le rapport $R_{\text{sil}} = (\text{Na} + \text{K})/(\text{Ca} + \text{Mg})$ des eaux drainant les roches silicatées du bassin de la Garonne est estimé à 1,24, en faisant la moyenne des rapports de chaque type de roche silicatée affleurant sur le bassin de la Garonne, pondérée par le drainage moyen de chacun de ces types de roches (tabl. 23). Le rapport (R_{sil})

moyen par type de roche est le même que celui déjà utilisé pour le calcul du flux de CO₂ sur les grands bassins fluviaux mondiaux (chapitre III). Il a été calculé en utilisant les données de MEYBECK (1986) sur les concentrations en éléments majeurs de ruisseaux drainant des petits bassins versants monolithologiques. Pour chaque type de roche, l'intensité moyenne du drainage est déterminée d'après la carte de France du drainage moyen interannuel de la période 1946-1976 (BRGM, 1983) et d'après les cartes géologiques de la France (BRGM, 1980) et du Bassin Aquitain (BRGM, ELF/RE, ESSO/REP, SNPA, 1979). Le rapport $R_{pyr} = SO_4 / (Na + K + Ca + Mg)$ des eaux drainant les roches silicatées est calculé sur la base des mêmes données que celles utilisées pour le calcul de R_{sil} (tabl. 23).

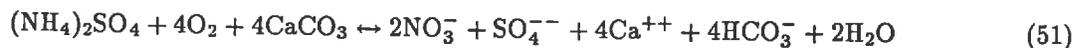
Tableau 23 – *Rapports moyens R_{sil} et R_{pyr} déterminés pour les eaux drainant les différents types de roches affleurant sur le bassin de la Garonne.*

	Q_r/Q_t^*	R_{sil}	R_{pyr}
roches plutoniques et métamorphiques	0,7	1,5	0,15
roches volcaniques acides	0,003	1,2	0,02
basaltes	0,04	0,5	0,02
molasses non carbonatées et alluvions	0,19	0,5	0,19
sables et grès	0,06	1,3	0,24

Influence des épandages de fertilisants

Le bassin de la Garonne, notamment la cuvette centrale, est le lieu d'une intense exploitation agricole. Ainsi 56 % de la surface du bassin est occupée par des sols agricoles et les apports d'engrais ont doublé entre 1965 et 1980 sans que cette surface n'augmente (PROBST, 1985). ETCHANCHU et PROBST (1988) ont montré que les apports d'engrais potassiques, azotés et phosphorés ont augmenté respectivement de 77 %, 71 % et 17 % de 1971 à 1984. En ce qui concerne les concentrations en éléments dissous dans les eaux de la Garonne, cette pollution diffuse par épandage d'engrais se traduisait essentiellement par une augmentation de 78 % des teneurs en nitrates de 1971 à 1984 (ETCHANCHU et PROBST, 1988). Par contre, les teneurs en phosphates n'ont montré aucune tendance à l'augmentation, car le phosphore est un élément peu mobile et essentiellement exporté sous forme particulaire. De même, les concentrations en potassium ont peu augmenté (+16 % seulement), car cet élément est facilement adsorbé par les colloïdes des sols et les sédiments.

Dans le bilan par minéral des apports de l'érosion chimique, les flux provenant directement de l'épandage d'engrais devraient être retirés des flux transportés, tout comme on retire les apports par les pluies. Cependant, pour les éléments majeurs concernés (K, Cl, Na et SO₄), les apports par les engrais sont difficiles à quantifier. Les nitrates, par contre, sont essentiellement issus, après correction des apports atmosphériques, des épandages d'engrais azotés (nitrate d'ammonium, sulfate d'ammonium). En outre, ces derniers jouent un rôle important dans l'acidification des sols et la dissolution des minéraux carbonatés (DURAND, 1976, 1978 ; FAURIE, 1977). En effet, la nitrification des composés azotés libère des ions H⁺ qui participent ensuite à la dissolution des minéraux carbonatés, comme lors de la nitrification du sulfate d'ammonium (NH₄)₂SO₄ :



Ainsi, d'après l'équation (51), une mole de NO₃⁻ libérée en solution correspond à 2 moles de HCO₃⁻, 2 moles de Ca⁺⁺ et $\frac{1}{2}$ mole de SO₄²⁻. On remarquera aussi que le rapport molaire HCO₃⁻/Ca⁺⁺ n'est plus de 2 comme pour une dissolution classique par l'acide carbonique, mais de 1 seulement. Par ailleurs, dans ce cas, la mise en solution des minéraux carbonatés ne consomme pas de CO₂ atmosphérique.

Ainsi, on peut s'attendre à ce que la contribution du CO₂ atmosphérique au flux total de bicarbonates dans des eaux de drainage d'un bassin versant à substratum carbonaté et soumis à une intense activité agricole soit inférieure à 50 %. Nous proposons de tenir compte de cette influence des épandages d'engrais azotés dans le modèle géochimique qui nous permet de calculer le flux de CO₂ consommé par altération chimique. Pour simplifier, nous ne nous baserons que sur les processus de nitrification du sulfate d'ammonium-dissolution de la calcite illustrés par l'équation (51). Deux corrections seront apportées au

modèle géochimique. D'une part, le flux molaire de SO_4^{--} issu de l'érosion chimique des roches sera diminué d'une quantité équivalente à $\frac{1}{2}\text{NO}_3^-$ moles :

$$F_{\text{SO}_4, \text{érosion}} = F_{\text{SO}_4, \text{total}} - \frac{1}{2}F_{\text{NO}_3} \quad (52)$$

D'autre part, la quantité de CO_2 consommée par la dissolution des roches carbonatées sera équivalente à la quantité d'ions bicarbonates provenant de la dissolution des carbonates diminuée de deux fois le flux de nitrates :

$$F_{\text{CO}_2, \text{carb}} = F_{\text{HCO}_3, \text{CaCO}_3} - 2F_{\text{NO}_3} \quad (53)$$

3. Variations saisonnières de la consommation de CO_2

a) Influence du débit sur la contribution du CO_2 atmosphérique au flux total de HCO_3^-

- Le modèle géochimique proposé nous permet, pour chaque échantillon prélevé, de calculer (en moles) :
- le flux de CO_2 consommé par l'altération chimique de l'ensemble des roches du bassin (F_{CO_2}) et la concentration correspondante (C_{CO_2}) ;
 - le flux de CO_2 consommé par l'altération des roches carbonatées ($F_{\text{CO}_2, \text{carb}}$) et la concentration en HCO_3^- correspondante ($C_{\text{CO}_2, \text{carb}}$) ;
 - le flux de CO_2 consommé par l'altération des roches silicatées ($F_{\text{CO}_2, \text{sil}}$) et la concentration correspondante ($C_{\text{CO}_2, \text{sil}}$) ;
 - le flux de bicarbonates provenant de la dissolution des minéraux carbonatés (F_{CaCO_3}) et la concentration correspondante (C_{CaCO_3}).

Les contributions respectives des différents flux de CO_2 consommés ($\% \text{CO}_2$, $\% \text{CO}_2, \text{carb}$ et $\% \text{CO}_2, \text{sil}$) au flux total de bicarbonates exporté par la Garonne (F_{HCO_3}) sont équivalentes aux rapports des flux $F_{\text{CO}_2}/F_{\text{HCO}_3}$, $F_{\text{CO}_2, \text{carb}}/F_{\text{HCO}_3}$, $F_{\text{CO}_2, \text{sil}}/F_{\text{HCO}_3}$ exprimés en %.

Influence du débit (Q_i) sur la concentration en HCO_3^- issue de l'altération des roches silicatées

La figure 43 met en évidence une relation décroissante entre la concentration en HCO_3^- issue de l'altération des silicates ($C_{\text{CO}_2, \text{sil}}$, en mmoles/l) et le débit instantané (Q_i), en m^3/s . La concentration ($C_{\text{CO}_2, \text{sil}}$) est maximum pour les faibles débits, puis décroît rapidement avec l'augmentation du débit. L'équation du modèle ajusté à cette relation (tabl. 24) montre que la concentration est une fonction inverse du débit. C'est une fonction caractéristique de dilution des concentrations décrite et observée par de nombreux auteurs (LEDBETTER et GLOYNA, 1964 ; HART *et al.*, 1964 ; INESON et DOWNING, 1964 ; GUNNERSON, 1967 ; STEELE, 1968 ; PROBST, 1983 ; ETCHANCHU, 1988 ; KATTAN, 1989 ; ORANGE, 1992 ; PROBST *et al.*, 1992).

Ainsi, la consommation de CO_2 par l'altération des roches silicatées semble constante, l'augmentation du débit ne faisant que diluer la quantité initiale de CO_2 consommé. PROBST *et al.* (1994) ainsi que ORANGE (1992) observent un comportement similaire pour les concentrations en HCO_3^- des eaux des bassins du Congo et du Sénégal respectivement, dont le substratum est principalement composé de roches non carbonatées.

Influence du débit (Q_i) sur la concentration en HCO_3^- issue de l'altération des roches carbonatées

L'influence du débit (Q_i) sur la concentration en HCO_3^- issue de l'altération des carbonates ($C_{\text{HCO}_3, \text{carb}} = C_{\text{CO}_2, \text{carb}} + C_{\text{CaCO}_3}$) est inverse de celle observée pour l'altération des silicates (fig. 44). L'équation du modèle ajusté à cette relation (tabl. 24) montre que la concentration ($C_{\text{HCO}_3, \text{carb}}$) augmente très rapidement avec le débit, puis tend vers un maximum de l'ordre de 2,27 mmoles/l pour les forts débits. Ce maximum correspond à la concentration en HCO_3^- d'une eau pure en équilibre avec la calcite (CaCO_3) à 25°C et à la pression partielle de CO_2 (p_{CO_2}) de $10^{-2,4}$ atm. environ (SIGG *et al.*, 1992), qui est une p_{CO_2} moyenne couramment observée dans les grands fleuves (KEMPE, 1982) et notamment dans les eaux de la Garonne

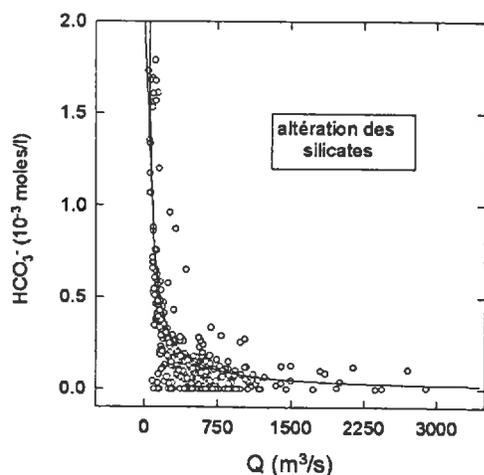


Fig.43 – Relation entre la concentration instantanée en HCO_3^- issue de l'altération des roches silicatées et le débit instantané (Q) au Mas d'Agenais.

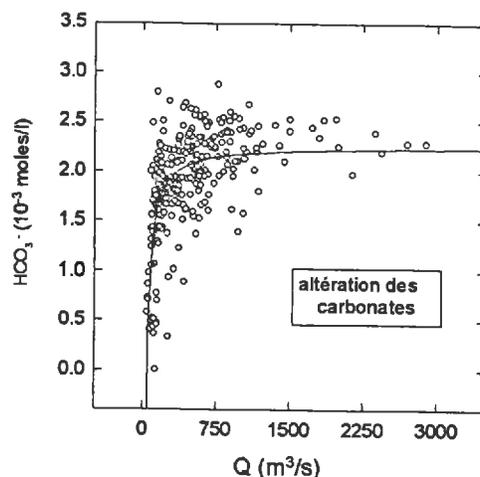


Fig.44 – Relation entre la concentration instantanée en HCO_3^- issue de l'altération des roches carbonatées et le débit instantané (Q) au Mas d'Agenais.

(ETCHANCHU et PROBST, 1988). En outre, la dissolution des minéraux carbonatés pourrait être favorisée par la baisse de la température en même temps que le débit s'accroît. Ainsi, la consommation de CO_2 par altération des roches carbonatées est limitée par l'équilibre géochimique des carbonates dans les eaux du fleuve ou de la nappe.

Tableau 24 – Equations des modèles ajustés aux relations concentrations en HCO_3^- issues de l'altération des carbonates ($C_{\text{HCO}_3, \text{carb}}$), concentrations en HCO_3^- issues de l'altération des silicates ($C_{\text{CO}_2, \text{sil}}$) et contribution $\% \text{CO}_2$ en fonction du débit de la Garonne (Q).

	équation	unités des variables	coeff. de corrélation	seuil de signification (%)
altération des carbonates	$C_{\text{HCO}_3, \text{carb}} = -92,75/Q + 2,27$	C_{CO_3} en mmoles/l Q en m^3/s	0,65	0,01
altération des silicates	$C_{\text{CO}_2, \text{sil}} = 76,76/Q$	$C_{\text{CO}_2(c)}$ en mmoles/l Q en m^3/s	0,78	0,01
contrib. du CO_2 atm. au flux de HCO_3^-	$\% \text{CO}_2 = 2177,47/Q + 43,8$	$\% \text{CO}_2$ en % Q en m^3/s	0,75	0,01

Influence du débit (Q_i) sur la contribution du CO_2 au flux total de bicarbonates

La contribution du CO_2 atmosphérique consommé au flux total de HCO_3^- ($\% \text{CO}_2$) des eaux de la Garonne permet d'apprécier la contribution relative de l'altération des silicates par rapport à celle de la dissolution des carbonates. $\% \text{CO}_2$ est le rapport entre le flux de CO_2 consommé et le flux total de HCO_3^- . L'influence du débit sur $\% \text{CO}_2$ est similaire à celle observée à propos de la concentration en HCO_3^- produite par altération des silicates ($C_{\text{CO}_2, \text{sil}}$). En effet, la contribution maximum peut aller jusqu'à près de 90 % pour des débits très faibles, mais elle décroît très rapidement avec l'augmentation de débit (fig. 45). Le modèle ajusté à cette relation (tabl. 24) montre que cette contribution tend vers 44 % quand le débit tend vers l'infini, ce qui est inférieur à la contribution théorique de la dissolution des carbonates (50 %). Cette différence peut être mise en relation avec l'effet indirect de l'épandage d'engrais azotés dont la nitrification libère des ions H^+ qui participent à la dissolution de la calcite. Ainsi, la libération d'une partie des ions HCO_3^- correspond uniquement à la dissolution de CaCO_3 sans consommation de CO_2 .

Fig.45 – Relation entre la contribution du flux de CO_2 au flux total de bicarbonates ($\% \text{CO}_2$) et le débit instantané au Mas d'Agenais (Q).

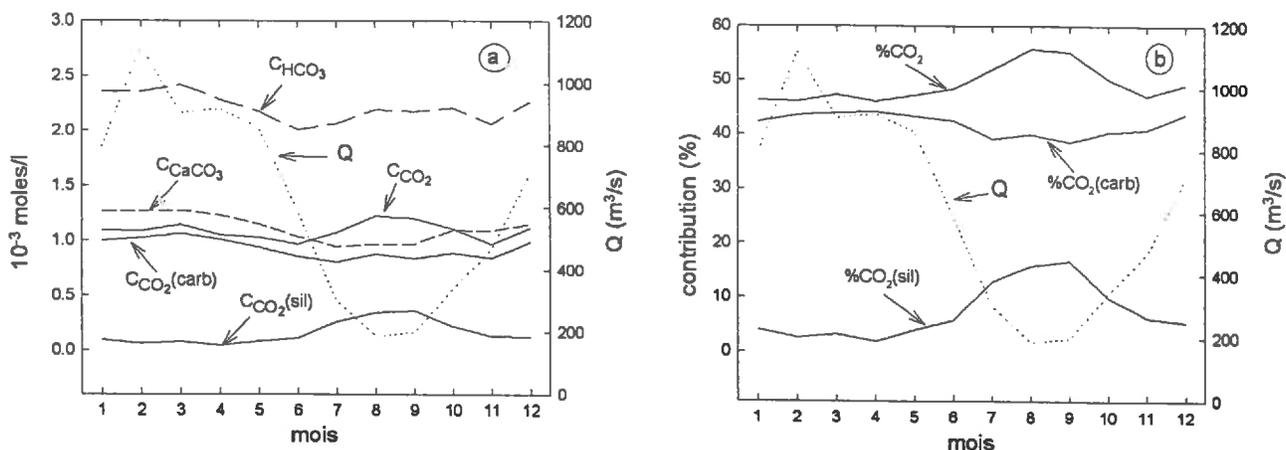
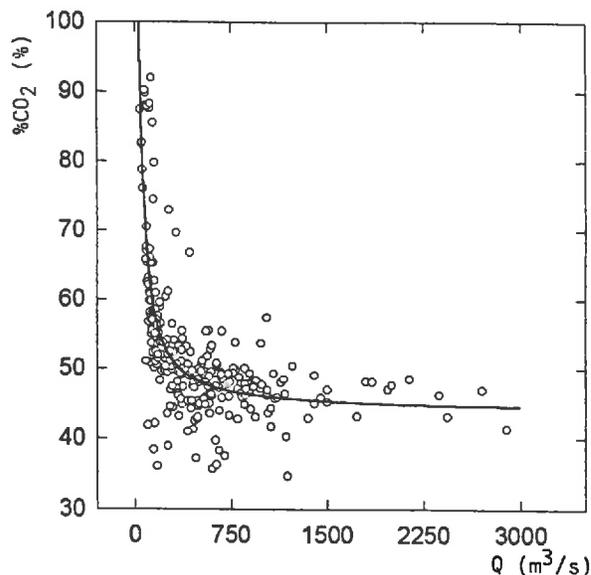


Fig.46 – Variations saisonnières moyennes de la consommation de CO_2 sur le bassin de la Garonne.

(a) Variations des concentrations en HCO_3^- totaux ($C_{\text{HCO}_3^-}$), en HCO_3^- issus de la dissolution des minéraux carbonatés (C_{CaCO_3}), en HCO_3^- issus de la consommation de CO_2 par altération chimique des roches carbonatées ($C_{\text{CO}_2\text{carb}}$), des roches silicatées ($C_{\text{CO}_2\text{sil}}$) et de la totalité des roches (C_{CO_2}).

(b) Variations des contributions des concentrations en HCO_3^- de différentes origines à la concentration totale en HCO_3^- : $\% \text{CO}_2\text{carb} = C_{\text{CO}_2\text{carb}}/C_{\text{HCO}_3^-}$, $\% \text{CO}_2\text{sil} = C_{\text{CO}_2\text{sil}}/C_{\text{HCO}_3^-}$, $\% \text{CO}_2 = C_{\text{CO}_2}/C_{\text{HCO}_3^-}$.

b) Variations saisonnières interannuelles des concentrations en HCO_3^-

L'analyse de l'évolution saisonnière interannuelle des concentrations en HCO_3^- issues du CO_2 atmosphérique via l'altération des roches silicatées ($C_{\text{CO}_2\text{sil}}$) et des roches carbonatées ($C_{\text{CO}_2\text{carb}}$) confirme les observations du paragraphe précédent (fig. 46). $C_{\text{CO}_2\text{sil}}$ est faible en hiver avec un minimum de 0,06 mmoles/l atteint au mois d'avril, puis la concentration remonte jusqu'à 0,25 mmoles/l environ d'août à octobre (fig. 46 a). Les eaux drainant les roches silicatées sont très diluées par les fortes précipitations d'hiver et la fonte des neiges. Par contre, en période de basses eaux, les eaux fluviales sont en grande partie issues des nappes où l'eau a pu être en contact prolongé avec les minéraux des roches.

En ce qui concerne les eaux drainant les roches carbonatées, la concentration en HCO_3^- équivalente au CO_2 consommé ($C_{\text{CO}_2\text{carb}}$) est maximum en mars, puis elle est diluée d'avril à juin, probablement

par les eaux de fonte des neiges. La concentration ne remonte réellement qu'à partir de novembre, pour atteindre son maximum au mois de mars de l'année suivante (fig. 46 a). Les concentrations élevées de la période de hautes eaux ne correspondent pas aux schémas classiques qui veulent que les concentrations soient maximum en périodes de basses eaux, durant lesquelles ce sont les réservoirs profonds fortement minéralisés qui contribuent à l'écoulement du fleuve, et minimum en périodes de hautes eaux, au cours desquelles ce sont les eaux superficielles peu minéralisées qui contribuent au débit du fleuve.

Pour expliquer les plus fortes teneurs en bicarbonates des eaux drainant les roches carbonatées, il faut invoquer la contribution d'un réservoir intermédiaire entre le réservoir superficiel et le réservoir profond, que l'on pourrait nommer "réservoir karstique". En effet, la contribution de ce type de réservoir au débit des rivières n'est pas limitée à la période de basses eaux. Ainsi, pendant les mois d'hiver, LEPILLER (1980) observe de fortes teneurs en bicarbonates dans les eaux drainant des réseaux karstiques de moyenne montagne de la région d'Annecy. LEPILLER (1980) donne plusieurs explications à ces fortes teneurs en HCO_3^- . Tout d'abord, l'augmentation du volume d'eau transitant par les réseaux karstiques au début de la période froide réamorcent certaines parties du réseau karstique, remettant alors dans le circuit des eaux ayant résidé longtemps au contact de la roche. Les débuts de crues de fonte des neiges jouent le même rôle de chasse d'eau. Ensuite, la pCO_2 dans les sols reste assez élevée pendant une partie de l'hiver malgré la baisse de température, le manteau neigeux empêchant son dégazage vers l'atmosphère. D'autre part, comme nous l'avons déjà évoqué, la baisse de la température favorise la mise en solution de la calcite. La fréquence de l'échantillonnage à l'exutoire du bassin de la Garonne (un échantillon par mois), ainsi que le fait que le bassin ne soit pas composé uniquement de roches carbonatées, ne nous permet pas de confirmer ces hypothèses. En période de basses eaux, les teneurs en HCO_3^- sont un peu moins fortes (fig. 46 a).

En résumé, la concentration en bicarbonates tirerait son origine de deux réservoirs en alternance au cours du cycle hydrologique : un réservoir profond de type nappe en période de basses eaux et un réservoir intermédiaire de type karstique en période de hautes eaux. La contribution moyenne du CO_2 consommé par altération des roches carbonatées au flux total de bicarbonates ($\% \text{CO}_2 \text{ carb}$) varie d'environ 43 % en hiver à 39-40 % environ en été (fig. 46 b). Le CO_2 consommé par l'altération chimique des roches silicatées contribue pour une part beaucoup moins importante au flux total de bicarbonates. Cette contribution est inférieure ou égale à 5 % de décembre à avril, puis augmente régulièrement pour dépasser 15 % pendant les mois d'août à octobre. La contribution moyenne du CO_2 atmosphérique au flux total de bicarbonates est inférieure à 50 % pendant les mois d'hiver, car une partie des minéraux carbonatés est altérée sans consommation de CO_2 . La limite des 50 % n'est franchie que pendant les mois d'été, de juillet à octobre.

4. Variations interannuelles de la consommation de CO_2 de 1971 à 1991

Le flux moyen annuel de CO_2 consommé sur le bassin de la Garonne est équivalent à la somme des flux moyens mensuels (F_m). Ces derniers sont déterminés sur la base des flux instantanés (F_i) comme suit :

$$F_m = \frac{\sum_{i=1}^n F_i}{\sum_{i=1}^n Q_i} \times Q_m \quad (54)$$

où Q_i et Q_m sont respectivement le débit instantané et le débit moyen mensuel. Les moyennes annuelles n'ont pas été calculées pour les années 1977 et 1984 à 1989, pour lesquelles les données manquantes étaient trop nombreuses.

a) Bilan de l'altération chimique

Le flux moyen interannuel de CO_2 consommé par érosion chimique sur le bassin de la Garonne entre 1971 et 1991 est de 411.10^3 moles/ km^2 .an, soit 48,6 % du flux total de bicarbonates (tabl. 25), pour un drainage moyen de $620 \text{ m}^3/\text{s}$. Ce résultat est tout à fait comparable à celui de ETCHANCHU (1988), qui détermine pour la période 1971-1984 un flux moyen de CO_2 consommé de 441.10^3 moles/ km^2 .an, soit 55 % du flux total de bicarbonates, pour un débit moyen $684 \text{ m}^3/\text{s}$. La méthode utilisée par ETCHANCHU (1988) est basée

Tableau 25 – Flux moyens annuels de bicarbonates issus du CO₂ atmosphérique (F_{CO₂}) et de la dissolution des minéraux carbonatés (F_{CaCO₃}).

	HCO ₃ ⁻ (10 ³ moles/km ² .an)			F _{CO₂} /F _{HCO₃} (%)
	F _{CO₂} (atmosphère)	F _{CaCO₃} (minéraux)	F _{HCO₃} total	
altération des carbonates	364	434	798	45,6
altération des silicates	47	-	47	100
total	411	434	845	48,6

Tableau 26 – Bilan des flux d'éléments majeurs du flux de CO₂ consommé par minéral dissous (flux en 10³ moles/km².an).

type de roche altérée	Ca ⁺⁺		Mg ⁺⁺		Na ⁺		K ⁺		Cl ⁻	SO ₄ ⁻⁻	bilan CO ₂ cons.
	quant. lib.	CO ₂ cons.	quant. lib.	CO ₂ cons.	quant. lib.	CO ₂ cons.	quant. lib.	CO ₂ cons.	quant. lib.	quant. lib.	
carbonates :											
par acide carbonique (1)	291	291	73	73	0	0	0	0	0	0	364
par oxydation NH ₄ ⁺ (2)	56	0	14	0	0	0	0	0	0	0	0
silicates :											
par acide carbonique (1)	24	48	2	4	15	15	7	7	0	0	74
par acide sulfurique (3)	4	0	<1	0	5	0	3	0	0	8	0
évaporites	31	0	0	0	80	0	4	0	84	31	0
total	406	339	90	77	100	15	11	7	84	39	438

(1) formé par dissolution du CO₂ d'origine atmosphérique ; (2) formé par dénitrification des engrais azotés ; (3) formé par oxydation des minéraux sulfurés (pyrite) ; pour chaque cation X, la proportion issue de l'altération par H₂SO₄ est calculée selon le rapport X/somme des cations issus de l'altération des silicates.

sur le bilan de l'altération chimique par type de roche (voir chapitre II) à partir des concentrations moyennes en HCO₃⁻ déterminées pour chaque type de roches. La contribution du CO₂ atmosphérique au flux total de bicarbonates que nous avons calculé (48,6 %) est inférieure à la valeur déterminée par ETCHANHU (1988). Ce dernier n'a pas pris en compte dans ses calculs l'influence de la nitrification des engrais azotés, et il a considéré que le flux de CO₂ consommé par altération des roches carbonatées était équivalent à la moitié du flux total de bicarbonates.

Dès lors, la contribution estimée par ETCHANHU (1988) (55 %) correspond à l'altération chimique des roches en "conditions naturelles". En faisant la différence entre le flux de CO₂ consommé par l'altération des carbonates (F_{CO₂} carb) et le flux d'ions bicarbonates issus des minéraux carbonatés (F_{CaCO₃}), on détermine que la quantité de carbonate de calcium et de magnésium mise en solution par l'action de l'acide nitrique (ions ammonium oxydés) est de 70.10³ moles/km².an (tabl. 25) (soit 16 % de la quantité totale de carbonates de calcium et magnésium mise en solution). On peut alors calculer que, dans des conditions dites "naturelles" (lorsque l'acide carbonique est le seul à altérer les carbonates), la contribution du flux de CO₂ au flux total d'ions bicarbonates est de 53 %. Remarquons enfin que 88 % du CO₂ est consommé par l'altération des roches carbonatées.

Le flux de CO₂ consommé peut également être estimé en faisant le bilan de la consommation par minéral dissous, d'après les résultats donnés par le modèle géochimique (tabl. 26). Le flux de CO₂ ainsi calculé (438.10³ moles/km².an) est très proche de celui estimé directement à partir du flux de bicarbonates (tabl. 25), ce qui signifie que notre bilan prend en compte les principaux acides susceptibles d'altérer les minéraux sur le bassin de la Garonne. Ainsi, la nitrification des engrais azotés libère en solution 16 % des cations provenant de l'altération des roches carbonatées ; l'acide sulfurique, produit par oxydation des minéraux sulfurés (pyrite), libère en solution 21 % des cations provenant de l'altération des silicates.

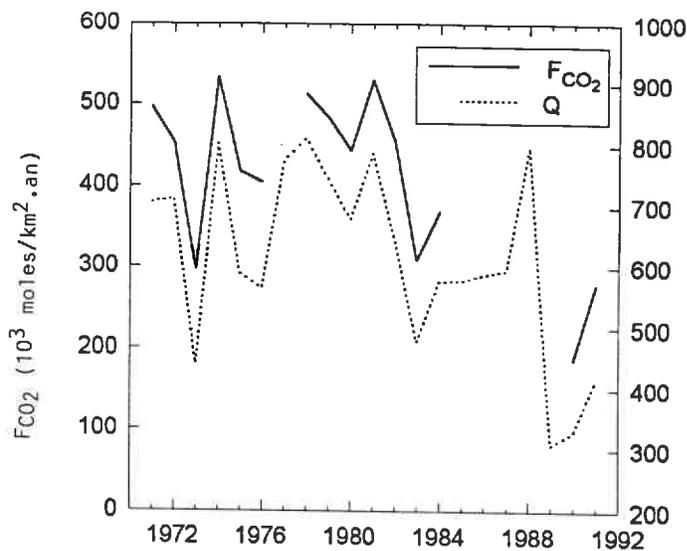
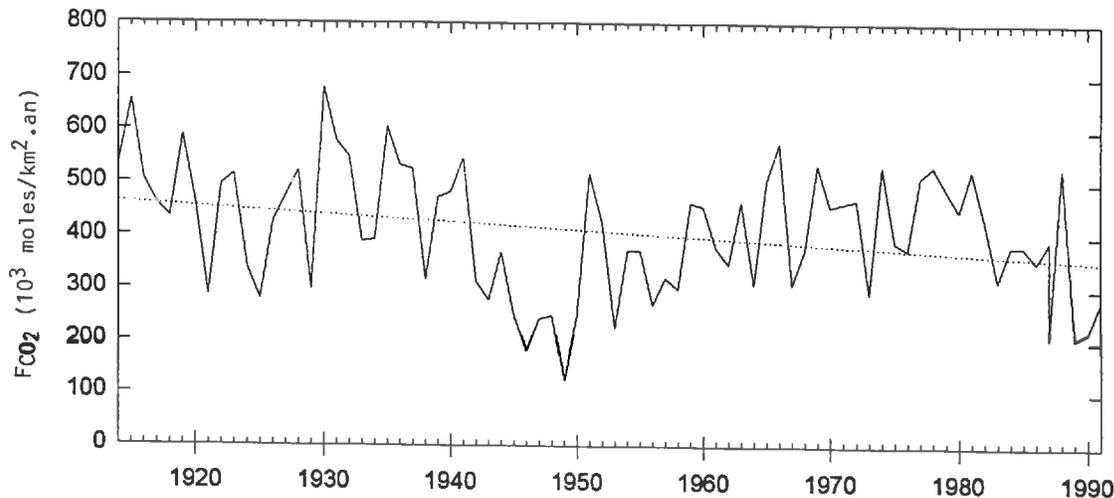


Fig.47 – Fluctuations du flux moyen annuel de CO_2 consommé par altération chimique des roches (F_{CO_2}) sur le bassin de la Garonne.

Fig.48 – Fluctuations de la consommation de CO_2 par érosion chimique (F_{CO_2}) sur le bassin de la Garonne au cours des 80 dernières années.



Le flux moyen spécifique de CO_2 consommé sur le bassin de la Garonne (411.10^3 moles/ $km^2.an$) est plus de deux fois plus fort que la moyenne annuelle calculée pour l'ensemble des surfaces continentales (246.10^3 moles/ $km^2.an$, chapitre III, tabl. 17), mais reste inférieur aux flux moyens consommés sur d'autres bassins des régions tempérées (chapitre III, tabl. 13) comme le Danube (650.10^3 moles/ $km^2.an$), le Rhône (725.10^3 moles/ $km^2.an$) et le Pô (1170.10^3 moles/ $km^2.an$).

b) Fluctuations de la consommation de CO_2 de 1971 à 1991

Fort logiquement, les fluctuations du flux de CO_2 consommé annuellement par érosion chimique sont en phase avec celles du débit (fig. 47), ce qui montre une nouvelle fois que la consommation de CO_2 (F_{CO_2} , en 10^3 moles/ $km^2.an$) est essentiellement contrôlée par le débit (Q , en m^3/s). L'équation du modèle ajusté à la relation $F_{CO_2} = f(Q)$ est la suivante :

$$F_{CO_2} = 0,66Q \quad (55)$$

avec un coefficient de corrélation de 0,98 et un seuil de signification de 0,01 %.

Les fluctuations de la consommation de CO_2 sur le bassin de la Garonne sont représentées sur la figure 47. Le flux moyen annuel de CO_2 consommé le plus faible est observé en 1990, avec 187.10^3 moles/ $km^2.an$ seulement. La consommation de CO_2 est également très faible pour les années 1973, 1983 et 1991. Le

flux moyen maximum est observé en 1974 avec 535.10^3 moles/km².an, et les années 1971, 1978 et 1981 montrent un flux de CO₂ dépassant 500.10^3 moles/km².an. On observe donc une importante variabilité de la consommation de CO₂ d'une année sur l'autre, avec une différence d'un facteur 3.

c) Fluctuations de la consommation de CO₂ sur le bassin de la Garonne au cours des 80 dernières années

Nous proposons maintenant de reconstituer les variations de la consommation de CO₂ sur le bassin de la Garonne au cours des 80 dernières années à partir des variations annuelles du débit de la Garonne.

Comme nous avons pu le voir tout au long de ce chapitre, le facteur fondamental de la consommation de CO₂ est le débit. L'équation (53), illustrant la relation $F_{CO_2} = f(Q)$, permet de calculer le flux moyen annuel si l'on connaît le débit moyen. Les variations reconstituées de la consommation de CO₂ de 1914 à 1991 sont présentées sur la figure 48. La moyenne interannuelle 1914–1991 est de 360.10^3 moles/km².an, soit légèrement inférieure à la moyenne 1971–1991 (390.10^3 moles/km².an).

On observe une légère tendance à la diminution de la consommation de CO₂ au cours des 80 dernières années :

$$F_{CO_2} = -1,4t + 3215 \quad (56)$$

où t est la date de l'année (1914 à 1991). Le coefficient de corrélation de l'équation 54 est de 0,27 et le seuil de signification est de 9,2 %. Cette équation permet de calculer une diminution moyenne de la consommation de CO₂ de l'ordre de 27 % depuis 1914. Le flux de CO₂ maximum est observé en 1930 avec pratiquement 700.10^3 moles/km².an ; le flux minimum est observé en 1949 avec un peu plus de 100.10^3 moles/km².an, soit 7 fois moins que le flux maximum de 1930.

II – BASSINS DE L'OUBANGUI ET DU CONGO

Les mécanismes de consommation de CO₂ par l'altération chimique sont contrôlés par les caractéristiques lithologiques, hydroclimatiques et les influences anthropiques du bassin. Après avoir étudié ces mécanismes sur le bassin de la Garonne en climat tempéré, il est intéressant de les étudier sur des bassins dont les caractéristiques sont assez différentes. C'est le cas des bassins du Congo et de l'Oubangui, l'un des principaux affluents du Congo, qui sont situés en climat tropical-équatorial, dont le substratum est composé essentiellement de roches non carbonatées, et où l'influence des actions anthropiques reste encore limitée.

A – INTRODUCTION

1. Présentation des bassins du Congo et de l'Oubangui

Le bassin du Congo est l'un des plus grands bassins fluviaux du monde. Avec une superficie totale de $3,7$ km², il draine une bonne partie de l'Afrique centrale. Son débit moyen interannuel est de $41\,000$ m³/s à Brazzaville, pour une superficie de $3,475$ millions de km² (PROBST et TARDY, 1987). Il est situé en région tropicale-équatoriale, à cheval sur les deux hémisphères, drainant des zones aussi diverses que les forêts humides, les prairies à arbustes ou les savanes. Son substratum est essentiellement composé de roches plutoniques et métamorphiques (42 % de la surface totale du bassin) et de roches gréseuses et sableuses (49 %), les roches carbonatées (9 %) n'étant localisées que dans la partie est et sud-est du bassin (NKOUNKOU et PROBST, 1987).

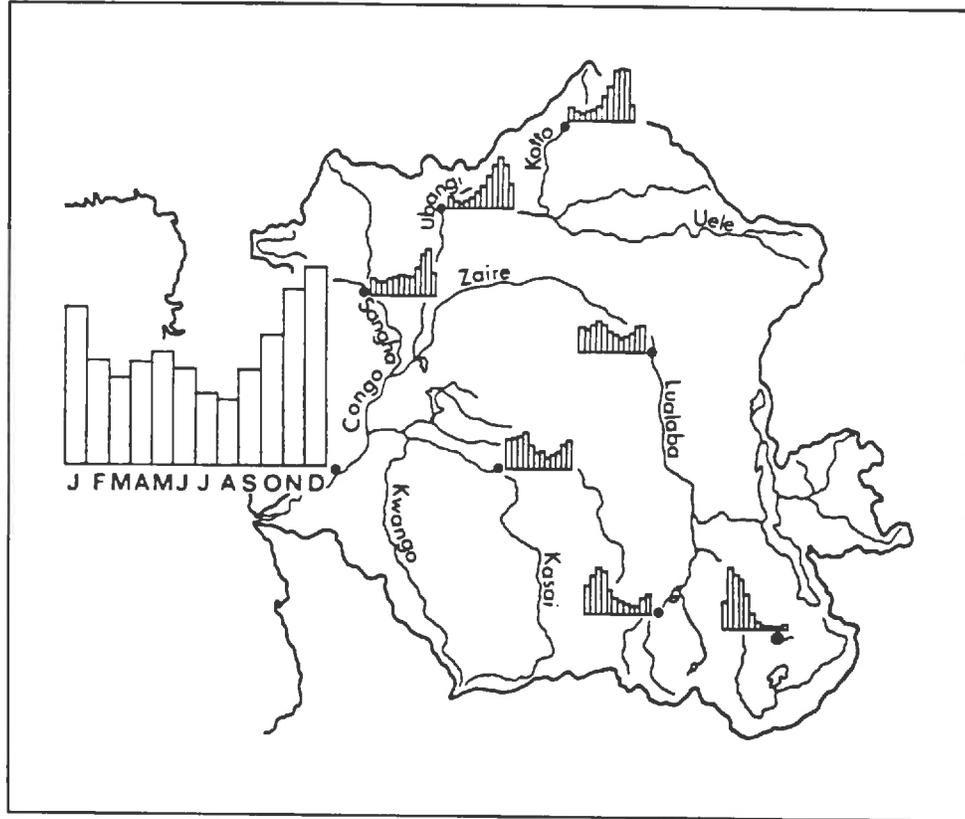


Fig.49 – Régimes hydrologiques du Congo et de ses principaux affluents (d'après UNESCO, 1977), repris par NKOUNKOU, 1989).

Le bassin de l'Oubangui est l'un des principaux affluents de l'hémisphère Nord du Congo. Son débit moyen interannuel est de 4300 m³/s à Bangui, pour une superficie de 0,5 millions de km² (PROBST *et al.*, 1992). Sa surface est essentiellement couverte par des forêts claires et des savanes. Son substratum est avant tout composé de roches plutoniques et métamorphiques. Cependant, BOULVERT et SALOMON (1988) signalent l'existence de paléocryptokarsts d'âge protérozoïque sur le bassin de l'Oubangui.

Le régime hydrologique du bassin du Congo (fig. 49) est caractérisé par deux périodes de basses eaux : l'une, en juillet-août, correspond aux basses eaux des affluents équatoriaux et à la décrue des affluents du Sud du bassin, l'autre, en février-mars, est moins importante et correspond aux basses eaux des affluents de l'hémisphère Nord (NKOUNKOU, 1989). Ces deux périodes sèches sont séparées par une période de hautes eaux, dont le point culminant est observé en novembre-décembre et correspond à la fois à la crue des affluents de l'hémisphère Nord et à la montée des eaux dans le Sud du bassin (NKOUNKOU, 1989). Une deuxième période de hautes eaux est observée en mai-juin, rendant compte de la saison humide dans le Sud du bassin. Le régime hydrologique de l'Oubangui est un régime tropical unimodal type, avec un débit maximum observé en octobre et un étiage en février-mars (NKOUNKOU, 1989).

2. Les données

Ce n'est que depuis quelques années seulement que les caractéristiques hydrogéochimiques du fleuve Congo sont étudiées sur une période de temps suffisamment longue pour couvrir plusieurs cycles hydrologiques. Ceci a pu se réaliser dans le cadre du programme PIRAT-GBF (Programme Interdisciplinaire de Recherche sur les Environnements Intertropicaux Péri-Atlantique – opération Grand Bassins Fluviaux, INSU-

CNRS/ORSTOM) de 1987 à 1990, puis du programme PEGI (Programme sur l'Environnement Global Intertropical) depuis 1991. Les échantillons sont prélevés chaque mois depuis 1987, à la station de Bangui sur l'Oubangui et à 40 km en amont de Brazzaville sur le Congo (PROBST *et al.*, 1992). Nous utiliserons dans cette étude une série de données allant de janvier 1987 à mai 1990 pour le Congo et d'octobre 1987 à mai 1990 pour l'Oubangui. Ces données concernent principalement les concentrations en éléments majeurs dissous et les débits.

PROBST *et al.* (1992) ont remarqué que les balances ioniques des solutions analysées présentaient un déficit de charges anioniques non négligeable (22 % en moyenne pour les eaux du Congo et 9,7 % pour celles de l'Oubangui). Ces déficits anioniques seraient à mettre en relation avec la présence d'importantes quantités d'anions organiques dans les eaux du Congo, anions qui ne peuvent être dosés par la mesure de l'alcalinité car ils ne sont pas dissociés aux valeurs de pH des eaux du Congo (pH moyen de 6,9) et de l'Oubangui (pH moyen de 7,3).

B – CONSOMMATION DE CO₂ SUR LES BASSINS DU CONGO ET DE L'OUBANGUI DE 1987 A 1990

1. Les études précédentes

Les flux moyens annuels de CO₂ consommé sur les bassins du Congo et de l'Oubangui ont été estimés de différentes façons par NKOUNKOU et PROBST (1987) et PROBST *et al.* (1994). Les premiers ont estimé le flux de CO₂ consommé sur le bassin du Congo sur la base d'un bilan de l'altération chimique des roches affleurant sur le bassin. En effet, ils ont déterminé la composition chimique moyenne des eaux drainant les trois principaux types de roches (cristallines, gréseuses-sableuses et carbonatées) d'après des données de concentration en éléments majeurs sur des petits bassins versants monolithologiques du bassin du Congo. Le drainage correspondant à chacun des types de roches a également été estimé. NKOUNKOU et PROBST (1987) ont alors déterminé les flux d'éléments majeurs en solution provenant de l'érosion chimique de ces trois types de roches et ont fait le bilan du CO₂ consommé en estimant que la totalité des ions bicarbonates sont d'origine atmosphérique dans les eaux drainant les roches non carbonatées, alors que la moitié seulement sont d'origine atmosphérique dans les eaux drainant les roches carbonatées. De cette manière, le flux de CO₂ consommé par érosion chimique sur le bassin du Congo est estimé en moyenne à 115.10⁹ moles/an, soit 76 % du flux total de bicarbonates exportés par le Congo.

PROBST *et al.* (1994) proposent une nouvelle estimation du flux de CO₂ consommé sur les bassins du Congo et de l'Oubangui, en déterminant la part d'ions bicarbonates provenant de l'altération des carbonates, sur la base d'un modèle de bilan géochimique proche de celui proposé dans ce travail (chapitres II et III). Ils estiment alors le flux de CO₂ consommé sur les bassins de l'Oubangui et du Congo à 37 et 208.10⁹ moles/an respectivement, soit 75,2 % et 74,7 % du flux total de bicarbonates. Pour le bassin de l'Oubangui, cette contribution de 75,2 % confirme l'existence de roches carbonatées et leur contribution au flux total de bicarbonates.

Les trois quarts des ions bicarbonates sont donc d'origine atmosphérique. Dès lors, le comportement des concentrations mesurées en HCO₃⁻ vis-à-vis du débit est proche de celui des concentrations estimées en HCO₃⁻ d'origine atmosphérique. PROBST *et al.* (1992, 1994) ont étudié en détail l'influence du débit sur les concentrations en bicarbonates (fig. 50). Ainsi, les concentrations en HCO₃⁻ suivent une loi bilogarithmique décroissante en fonction du débit, tant pour l'Oubangui que pour le Congo. Ces relations sont caractéristiques d'une dilution des eaux de nappe concentrées par des eaux de ruissellement moins minéralisées. On remarquera cependant que la dilution est plus forte pour les eaux du Congo que pour celles de l'Oubangui (fig. 50). Les concentrations en HCO₃⁻ varient ainsi d'un facteur 3 environ dans les eaux du Congo et d'un facteur 2 environ dans les eaux de l'Oubangui.

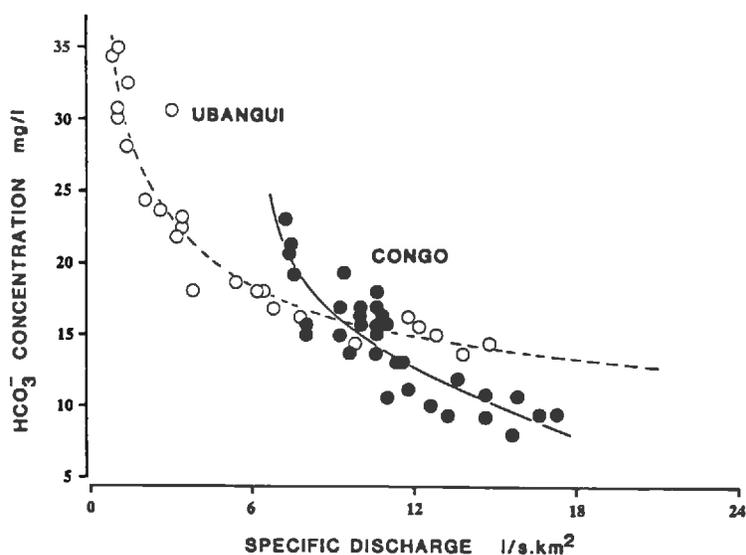


Fig.50 - Relation concentration en HCO_3^- -débit (Q) dans les eaux du Congo et de l'Oubangui (PROBST et al., 1994).

2. Détermination du flux de CO_2 consommé

Nous utiliserons ici le même modèle géochimique que celui que nous avons développé dans les chapitres II et III de ce travail. Il doit nous permettre, après correction des apports atmosphériques, de déterminer la quantité de CO_2 consommée sur les bassins de l'Oubangui et du Congo de deux manières différentes : soit directement en soustrayant le flux molaire d'ions Ca^{++} et Mg^{++} issus de la dissolution des roches carbonatées du flux total d'ions bicarbonates, soit indirectement en faisant le bilan de la consommation de CO_2 par grande catégorie de minéraux altérés.

a) Correction des apports atmosphériques

La correction des apports atmosphériques est effectuée d'après les rapports C_{iatm}/C_{Clatm} donnés par MEYBECK (1984) pour les eaux de pluie des régions tropicales (tabl. 27). Ensuite, considérant qu'il n'y pas d'évaporites sur le bassin du Congo, le rapport C_{iatm}/C_{Clatm} des eaux de pluie est conservé dans les eaux du fleuve et la totalité des chlorures mesurés dans les eaux du fleuve (C_{Clt}) sont d'origine atmosphérique.

Tableau 27 - Rapports C_i/C_{Cl} , en eq/eq, pour chaque élément majeur (i) dans les eaux de pluie des bassins du Congo et de l'Oubangui (d'après MEYBECK, 1984).

	Ca^{++}/Cl^-	Mg^{++}/Cl^-	Na^+/Cl^-	K^+/Cl^-	SO_4^{--}/Cl^-
CONGO (tropical humide)	0,3	0,3	0,8	0,1	0,9
OUBANGUI (tropical contrasté)	1,3	0,8	1,5	0,5	1,1

Pour chaque élément de concentration C_{it} dans les eaux du fleuve, et connaissant le débit Q du fleuve, on peut calculer le flux d'un élément (i) issu de l'érosion chimique F_{iec} de la manière suivante :

$$F_{iec} = [C_{it} - (C_{iatm}/C_{Clatm}) \cdot C_{Clt}] \cdot Q \quad (57)$$

b) Procédure de calcul du flux de CO_2 consommé

Le rapport $R_{sil} = (Na+K)/(Ca+Mg)$ dans les eaux drainant les roches silicatées est calculé par PROBST et al. (1994) sur la base de la composition chimique des eaux de petits bassins monolithologiques appartenant

au bassin du Congo ou drainant des types de roches appartenant aux mêmes formations géologiques que celles du bassin. Les rapports moyens par type de roche sont ensuite pondérés par le débit moyen drainant chaque type de roche. PROBST *et al.* (1994) déterminent alors des rapports R_{sil} de 1,7 pour le bassin du Congo et de 1,4 pour le bassin de l'Oubangui. Le rapport $R_{pyr} = SO_4 / (Ca + Mg + Na + K)$ dans les eaux drainant les roches silicatées ne sera pas déterminé ici, car après correction des apports atmosphériques le flux de SO_4^{--} est nul.

Pour différencier la part de Ca^{++} de celle de Mg^{++} dans le flux de $Ca + Mg$ issu de l'altération des roches carbonatées, nous avons utilisé dans les chapitres précédents un rapport moyen $Mg^{++} / (Ca^{++} + Mg^{++})$ dans les eaux drainant les roches carbonatées égal à 0,2. Pour le bassin du Congo, nous avons recalculé ce rapport à partir de la composition chimique moyenne des eaux drainant les roches carbonatées du bassin déterminée par NKOUNKOU et PROBST (1987) d'après la composition chimique de six petits bassins versants monolithologiques (SYMOENS, 1968). Le rapport $Mg^{++} / (Ca^{++} + Mg^{++})$ est alors égal à 0,4 pour le bassin du Congo. Nous utiliserons également ce même rapport pour le bassin de l'Oubangui. En effet, les seules roches carbonatées semblent être les cryptokarsts d'âge protérozoïque. Or, selon GARRELS et MACKENZIE (1971), les roches carbonatées datant du Protérozoïque sont plus riches en magnésium que les roches plus jeunes et ont un rapport $Mg^{++} / (Ca^{++} + Mg^{++})$ d'environ 0,4.

3. Bilan moyen annuel de la consommation du CO_2

Comme pour le bassin de la Garonne, nous avons calculé le flux moyen mensuel de CO_2 consommé à partir des concentrations instantanées et des débits moyens mensuels. Le flux moyen interannuel de CO_2 consommé est alors la moyenne arithmétique des flux moyens mensuels en 10^3 moles/ km^2 .an. Nous avons ensuite reconstitué l'origine minéralogique de chaque flux d'élément majeur issu de l'érosion chimique. On peut alors déterminer le flux de CO_2 consommé par érosion chimique de deux façons, soit directement en soustrayant le flux de $Ca + Mg$ issu de l'altération des roches carbonatées au flux de bicarbonates (tabl. 28), soit en faisant le bilan de la consommation de CO_2 par catégorie de minéraux dissous (tabl. 29).

Nos résultats (tabl. 28) sont similaires à ceux obtenus par PROBST *et al.* (1994) et montrent que le flux de bicarbonates est composé à près de 78 % de CO_2 d'origine atmosphérique. Pour le bassin de l'Oubangui, le bilan de la consommation de CO_2 par types de minéraux dissous (tabl. 29) est similaire au flux de CO_2 déterminé directement à partir du flux de bicarbonates, montrant que l'altération chimique est presque uniquement le fait de l'acide carbonique. Par contre, pour le bassin du Congo, le bilan de la consommation de CO_2 par type de minéraux dissous (tabl. 29) est nettement supérieur au flux de CO_2 déterminé directement à partir du flux de bicarbonates. Cette différence non négligeable (environ $25 \cdot 10^3$ moles/ km^2 .an, soit une augmentation de 45 %) est à mettre en relation avec le déficit de charges anioniques des solutions (20 à 30 %), observé par PROBST *et al.* (1992) dans les eaux du Congo et qui serait attribué à des anions organiques. PROBST *et al.* (1992) signalent en effet que la matière organique en solution représente 30 à 40 % de la

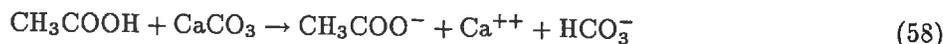
Tableau 28 – Bilan de la consommation de CO_2 sur les bassins du Congo (moyenne annuelle pour la période 1987–1989) et de l'Oubangui (moyenne annuelle pour la période 1988–1989).

		HCO_3^- (10^3 moles/ km^2 .an)			F_{CO_2}/F_{CO_3} (%)
		F_{CO_2} (atmosphère)	F_{CaCO_3} (minéraux)	HCO_3^- total	
CONGO	altération des carbonates	17,1	17,1	34,2	50
	altération des silicates	42,9	0	42,9	100
	total	60,0	17,1	77,1	77,8
	total PROBST <i>et al.</i> (1994)	56,2	18,9	75,1	74,8
OUBANGUI	altération des carbonates	12,1	12,1	24,2	50
	altération des silicates	24,3	0	24,3	100
	total	36,4	12,1	48,5	75,1
	total PROBST <i>et al.</i> (1994)	37,0	12,0	49,0	75,5

Tableau 29 – Bilan des flux d'éléments majeurs libérés par l'altération des principaux types de minéraux et bilan du CO₂ consommé (modèle géochimique indirect).

minéral source	minéral dissous (10 ³ moles/km ² .an)		CO ₂ consommé (10 ³ moles/km ² .an)	
	CONGO	OUBANGUI	CONGO	OUBANGUI
Na-silicates	19,2	5,8	19,2	5,8
K-silicates	11,2	3,7	11,2	3,7
Ca-silicates	7,4	3,5	14,8	7,0
Mg-silicates	10,4	3,3	20,8	6,6
total silicates			66,0	23,1
Ca-carbonates	11,2	7,3	11,2	7,3
Mg-carbonates	7,5	4,9	7,5	4,9
total carbonates			18,7	12,2
total altération			84,7	35,3

charge totale dissoute dans les eaux du Congo. On peut alors penser que les acides organiques, qui sont mis en solution au niveau des sols, dans les eaux qui percolent, participent ensuite à l'altération des minéraux, comme dans l'équation schématique suivante (MCMAHON *et al.*, 1991) :



4. Fluctuations saisonnières de la consommation de CO₂

a) Bassin de l'Oubangui

La contribution du flux de CO₂ consommé par érosion chimique au flux total de bicarbonates (%CO₂) est un paramètre intéressant dans l'étude des mécanismes de la consommation de CO₂, car il permet de distinguer les contributions respectives de l'altération des carbonates et des silicates. Ainsi, lorsque %CO₂ tend vers 50 %, le CO₂ est essentiellement consommé par l'altération des roches carbonatées. Par contre, lorsque %CO₂ tend vers 100 %, le CO₂ est principalement consommé par l'altération des silicates.

La figure 51 montre les variations de %CO₂ sur le bassin de l'Oubangui d'octobre 1987 à mai 1990. %CO₂ est plus ou moins en phase avec le débit. Les périodes d'étiage (mars à avril), pendant lesquelles les eaux proviennent essentiellement des nappes, sont toujours marquées par une contribution (%CO₂) minimum d'environ 70 %, indiquant que durant ces périodes la contribution des carbonates est plus forte. C'est une nouvelle fois la confirmation de l'existence de paléocryptokarsts signalée par BOULVERT et SALOMON (1988), dont l'altération contribue à la composition chimique du fleuve, notamment en période de basses eaux. Les périodes de hautes eaux sont plutôt marquées par une contribution (%CO₂) maximum de 75 à 80 %, montrant que le CO₂ est consommé par l'altération des silicates.

Les contributions %CO₂ minimum restent cependant relativement élevées, marquant la prépondérance de l'altération des silicates sur celle des carbonates. Dès lors, le flux de CO₂ est en grande partie contrôlé par la contribution des eaux drainant les roches silicatées. La contribution des eaux drainant les carbonates ne peut compenser la forte baisse du débit, et le flux de CO₂ consommé est complètement en phase avec le débit (fig. 52). Il est alors logique d'observer une décroissance du flux de CO₂ consommé avec l'augmentation de la contribution de l'altération des carbonates (%CO₃) (fig. 53). Ce comportement est radicalement différent de celui que nous avons observé sur le bassin de la Garonne.

b) Bassin du Congo

Sur le bassin du Congo, les variations saisonnières du flux de CO₂ consommé sont inverses de celles que nous avons pu observer sur le bassin de l'Oubangui. En effet, les flux de CO₂ évoluent en opposition de phase par rapport au débit (fig. 54), ce qui va également à l'encontre de ce que nous avons observé sur le

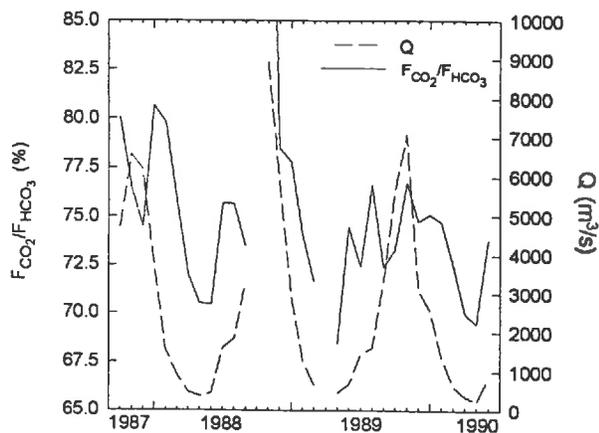


Fig.51 – Variations saisonnières de la contribution du flux de CO_2 consommé (F_{CO_2}) au flux total de bicarbonates (F_{HCO_3}) exportés par l'Oubangui.

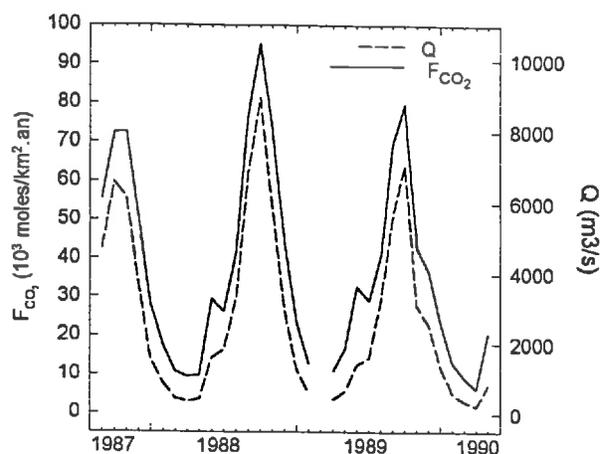
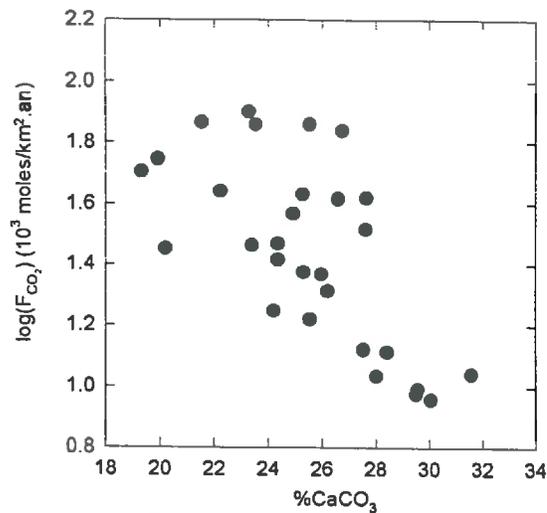


Fig.52 – Variations saisonnières du flux de CO_2 consommé sur le bassin de l'Oubangui (F_{CO_2}).

Fig.53 – Relation entre le flux de CO_2 consommé sur le bassin de l'Oubangui (F_{CO_2}) et la contribution de la dissolution des minéraux carbonatés (% $CaCO_3$) au flux total de bicarbonates.



bassin de la Garonne (ce chapitre). Il faut imaginer alors que la dilution des concentrations est telle (voir la dilution des concentrations en HCO_3^- sur la figure 50) que l'augmentation du débit n'arrive pas à compenser la perte de concentration. Ainsi, les concentrations totales en bicarbonates, qui sont relativement faibles, peuvent varier d'un facteur 3 alors que les débits ne varient que d'un facteur 2. C'est pourquoi les variations du flux de CO_2 consommé sont plutôt contrôlées par les variations de la concentration que par les débits. Dès lors, on note sur la figure 54 que, pour chaque cycle hydrologique, le flux maximum correspond à la période de basses eaux des mois de mars à août.

Pendant la crue principale de fin d'année (d'octobre à janvier), qui correspond à la saison humide des zones de l'hémisphère Nord, l'évolution des flux de CO_2 est plus complexe. On observe ainsi un creux maximum en cours de crue (en fin de crue en 1987, en début de crue en 1988 et en maximum de hautes eaux en 1989) qui correspond à la contribution % CO_2 minimum (fig. 55). Dès lors, il n'est pas surprenant d'observer, comme sur l'Oubangui, une diminution du flux de CO_2 consommé lorsque la contribution des carbonates au flux total de bicarbonates (% $CaCO_3$) augmente (fig. 56).

Les variations de la contribution % CO_2 en fonction du débit (fig. 55) sont beaucoup plus complexes que celles observées sur le bassin de l'Oubangui. En effet, % CO_2 est, dans l'ensemble, en nette opposition de phase par rapport au débit. % CO_2 est ainsi minimum durant les périodes de hautes eaux de décembre à janvier. Ce minimum, qui varie entre 65 et 70 % mais qui descend jusqu'à moins de 55 % en janvier 1988, peut être attribué à la contribution dominante de l'altération des carbonates du Sud-Est du bassin où la saison humide débute. En outre, cette contribution de l'altération des carbonates est probablement mise en relief par la faiblesse des flux de CO_2 issus de l'altération des silicates. Ensuite % CO_2 remonte rapidement, pour atteindre un maximum de février à mars, au début de la période de basses eaux des affluents de l'hémisphère

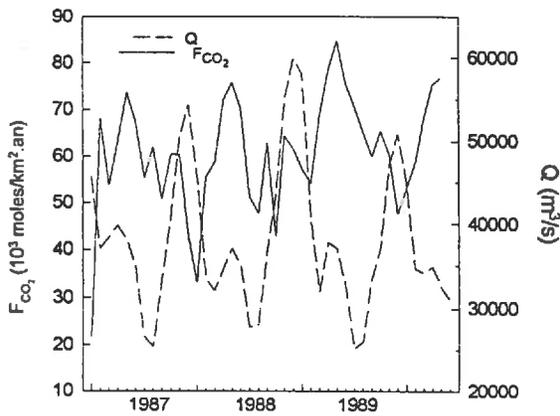


Fig.54 - Variations saisonnières du flux de CO_2 (F_{CO_2}) consommé sur le bassin du Congo.

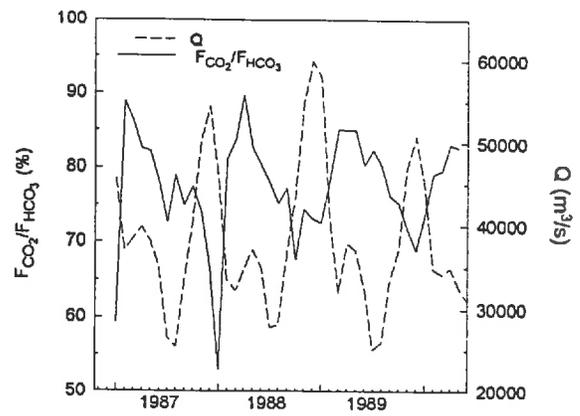


Fig.55 - Variations saisonnières de la contribution du flux de CO_2 consommé (F_{CO_2}) au flux total de bicarbonates (F_{HCO_3}) exportés par le Congo.

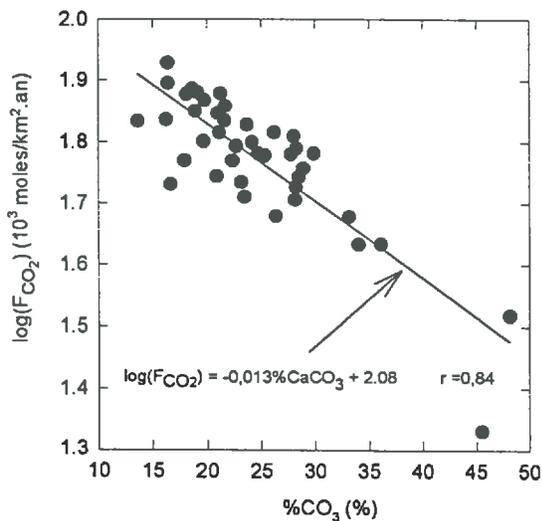


Fig.56 - Relation entre le flux de CO_2 consommé sur le bassin du Congo (F_{CO_2}) et la contribution de la dissolution des minéraux carbonatés ($\%CaCO_3$) au flux total de bicarbonates.

Nord. Il semble donc que durant cette période l'intensité de l'altération des silicates soit beaucoup plus forte que celle des carbonates et $\%CO_2$ atteint près de 90 %.

Les fluctuations de la contribution de CO_2 au flux total de bicarbonates traduisent bien, à l'image du régime hydrologique, la complexité du bassin du Congo. Cette contribution est toujours relativement forte (près de 78 % en moyenne de 1987 à 1989) et ses variations semblent plutôt contrôlées par les fluctuations de la contribution des silicates aux flux de bicarbonates.

III - CONCLUSIONS

L'analyse des variations saisonnières et interannuelles de la consommation de CO_2 sur les bassins de la Garonne, de l'Oubangui et du Congo ont permis de mieux cerner les mécanismes qui contrôlent cette consommation.

Sur le bassin de la Garonne, la contribution de la dissolution des roches carbonatées au flux total de bicarbonates est pratiquement de 100 % en période de hautes eaux (hiver), alors que les roches carbonatées couvrent moins de 50 % de la superficie du bassin. Cependant, en période de basses eaux, la contribution de l'altération des silicates remonte un peu et participe à hauteur de 15 à 20 % au flux total de bicarbonates. Ces variations peuvent être interprétées en termes de vidange de deux réservoirs distincts : (i) un réservoir profond

de type nappe dont la vidange intervient en période de basses eaux, (ii) un réservoir dit "intermédiaire", situé dans les roches carbonatées et dont la vidange interviendrait essentiellement en période de hautes eaux. Au total, la contribution du CO₂ atmosphérique au flux total de bicarbonates varie de 47 % en hiver à 57 % en été. Par ailleurs, plus la proportion de minéraux carbonatés dissous est grande, plus le flux de CO₂ consommé est intense.

Sur le bassin de l'Oubangui, dont le substratum est essentiellement carbonaté, l'évolution de la contribution du CO₂ atmosphérique au flux total de bicarbonates est complètement différente de celle observée sur le bassin de la Garonne. En effet, cette contribution est plus faible en période de basses eaux (environ 70 %) qu'en période de hautes eaux (environ 80 %). Ce constat traduirait la présence d'un réservoir profond de type nappe constitué de roches carbonatées et qui contribuerait au débit de l'Oubangui essentiellement en période de basses eaux. Le débit reste le principal facteur qui contrôle le flux de CO₂ consommé sur le bassin de l'Oubangui : les mois de basses eaux sont des mois de faible consommation de CO₂, alors que le flux de CO₂ est maximum en période de crue.

En ce qui concerne le bassin du Congo, les mécanismes réglant la consommation de CO₂ semblent plus complexes, à l'image du régime hydrologique du fleuve. La première particularité est que les flux de CO₂ évoluent en opposition de phase par rapport aux débits. En effet, les flux de CO₂ suivent les mêmes variations que les concentrations en HCO₃⁻, car ces dernières, qui sont relativement faibles, varient d'un facteur 3 au cours d'un cycle hydrologique alors que le débit n'a varié que d'un facteur 2. La contribution du CO₂ atmosphérique au flux de bicarbonates transporté par le Congo varie elle aussi à l'opposé des fluctuations du débit. La contribution de l'altération des carbonates est ainsi plus forte en période de hautes eaux qu'en période de basses eaux.

Les variations interannuelles de la consommation de CO₂ ont été étudiées sur le bassin de la Garonne au cours de la période 1971–1991. Ces fluctuations interannuelles apparaissent comme une fonction linéaire positive du débit du fleuve. Le flux de CO₂ le plus faible est observé en 1990 (187.10³ moles/km².an) et le plus fort est observé en 1974 (535.10³ moles/km².an), soit une différence d'un facteur 3. La reconstitution des variations de la consommation moyenne annuelle de CO₂ depuis le début du siècle montre que cette consommation a diminué en moyenne de 27 % depuis 1914.

La comparaison des flux de CO₂ consommés sur les bassins de la Garonne, de l'Oubangui et du Congo démontre l'importance de la nature du substratum altéré dans la consommation de CO₂. En effet, le flux moyen annuel de CO₂ consommé est de 411.10³ moles/km².an pour un drainage de 376 mm/an sur le bassin de la Garonne, contre 60.10³ moles/km².an pour un drainage de 370 mm/an sur le bassin du Congo et 36.10³ moles/km².an pour un drainage de 270 mm/an sur le bassin de l'Oubangui. Ainsi, la consommation de CO₂ sur le bassin de la Garonne, qui est essentiellement due à l'altération des roches carbonatées, est près de 7 fois supérieure à celle observée sur le bassin du Congo pour une intensité de drainage identique.

Sur le bassin de la Garonne, nous avons pu remarquer que l'altération chimique des carbonates était perturbée par les activités humaines. En effet, la contribution du CO₂ atmosphérique au flux total de bicarbonates tend vers la valeur de 44 % lorsque le débit tend vers l'infini, ce qui met en évidence l'influence de la nitrification des engrais azotés sur la dissolution des minéraux carbonatés. On calcule ainsi que 16 % en moyenne de la dissolution des minéraux carbonatés est provoquée par l'attaque des minéraux par les acides issus de la nitrification des engrais azotés.

L'altération chimique sur le bassin du Congo est également influencée par l'apport d'autres acides que l'acide carbonique. On calcule en effet que les acides organiques, très présents dans le bassin du Congo, provoqueraient une diminution de 45 % (en moles) de la consommation de CO₂ atmosphérique par érosion chimique.

Chapitre V

UN MODÈLE GLOBAL POUR LA CONSOMMATION DE CO₂ PAR ÉROSION CHIMIQUE DES ROCHES CONTINENTALES

Les bilans globaux des transferts de matières dissoutes continents-océans sont le plus souvent établis sur la base des flux moyens annuels de matières transportées par les grands fleuves du monde (LIVINGSTONE, 1963 ; HOLLAND, 1978 ; MEYBECK, 1979 ; WOLLAST et MACKENZIE, 1983 ; PROBST, 1992). De la même manière, nous avons déjà présenté dans ce travail (chapitre III) un premier bilan de la consommation de CO₂ par érosion chimique des roches continentales, basé sur les flux de carbone minéral transporté par les grands fleuves mondiaux.

Dans ce chapitre, nous proposons de faire le bilan détaillé des transferts de carbone minéral continents-océans selon une approche différente, basée sur la modélisation de la consommation de CO₂ à l'échelle des petits bassins versants monolithologiques (AMIOTTE SUCHET et PROBST, 1993 a, b). Dans son "Temperate Stream Model", MEYBECK (1987) a établi un bilan des apports en solution aux océans issus de l'érosion chimique des principaux types de roches. Ce modèle permet d'estimer la contribution relative de la dissolution des principales catégories minéralogiques au flux total de chaque élément majeur transporté par les fleuves vers les océans. De cette façon, MEYBECK (1987) a pu estimer la proportion de CO₂ atmosphérique dans le flux total de bicarbonates pour l'ensemble des continents. Cependant, le flux global de bicarbonates est toujours dérivé du bilan établi antérieurement (MEYBECK, 1979) sur la base des flux de HCO₃⁻ transporté par les fleuves et extrapolé à l'échelle globale. D'autre part, le "Temperate Stream Model" ne tient compte ni de la distribution spatiale des différents types de roches affleurant à la surface des continents, ni de l'influence des variations du drainage sur les flux d'éléments en solution. Or, comme nous avons pu le voir dans la première partie de ce travail, ces deux facteurs sont très importants.

A l'inverse du "Temperate Stream Model", le modèle présenté dans ce chapitre (AMIOTTE SUCHET et PROBST, 1993 b et AMIOTTE SUCHET et PROBST, 1995) permet de réaliser une cartographie globale relativement précise des flux de CO₂ consommé par érosion chimique, en prenant en compte les distributions spatiales du drainage et des affleurements des principaux types de roche. Ainsi notre modèle détermine la proportion de CO₂ dans le flux total de bicarbonates, mais il estime aussi la valeur du flux de CO₂ consommé en tout point des surfaces continentales. Il devient alors possible de faire le bilan de cette consommation de CO₂ pour un bassin versant, une région, par continents ou pour l'ensemble du globe.

Le modèle présenté dans ce chapitre aura pour nom de code GEM-CO₂, c'est-à-dire "Modèle Global d'Erosion", ou "Global Erosion Model" en anglais, ayant pour but de simuler les flux de CO₂ consommé par érosion chimique à l'échelle globale.

I - LES BASES DE LA MODÉLISATION

A - LES LOIS DE BASE

Le drainage et la lithologie étant les facteurs essentiels de la consommation de CO_2 par érosion chimique des roches, notre modèle est basé sur un ensemble de relations empiriques entre flux de CO_2 consommé (F_{CO_2}) et drainage (D) par type de roches. Nous utiliserons les relations déterminées dans le cadre du chapitre II (tabl. 7) sur la base de la composition chimique des eaux de petits bassins versants monolithologiques (AMIOTTE SUCHET et PROBST, 1993 a). Les relations $F_{\text{CO}_2} = f(D)$ sont déterminées pour les sept types de roches suivants : les roches plutoniques et métamorphiques, les roches volcaniques acides, les basaltes, les sables et les grès, les roches détritiques argileuses, les roches carbonatées et enfin les formations évaporitiques.

B - FONCTIONNEMENT DU MODÈLE GEM- CO_2

Le principe de la modélisation est illustré par la figure 57. L'ensemble des relations $F_{\text{CO}_2} = f(D)$ permet de calculer le flux de CO_2 (F_{CO_2}) consommé par altération chimique d'un type de roche donné à partir du volume d'eau (D) percolant dans ces roches. Pour un bassin versant dont le substratum est composé de différents types de roches, le flux de CO_2 consommé sera la somme des flux élémentaires consommés par type de roche. Pour cela, la surface du bassin versant est divisée en petites cellules élémentaires pour lesquelles on détermine le type de roche dominant à partir de cartes lithologiques, et un drainage moyen à partir de cartes de drainage. Le flux de CO_2 est alors calculé pour chaque cellule élémentaire et le flux total pour l'ensemble du bassin est la somme des flux élémentaires. Le modèle est alors basé sur les conditions suivantes :

- les cellules élémentaires sont indépendantes les unes des autres et la solution altérante résultant de la percolation de l'eau n'est active qu'au niveau de la cellule élémentaire correspondante ;

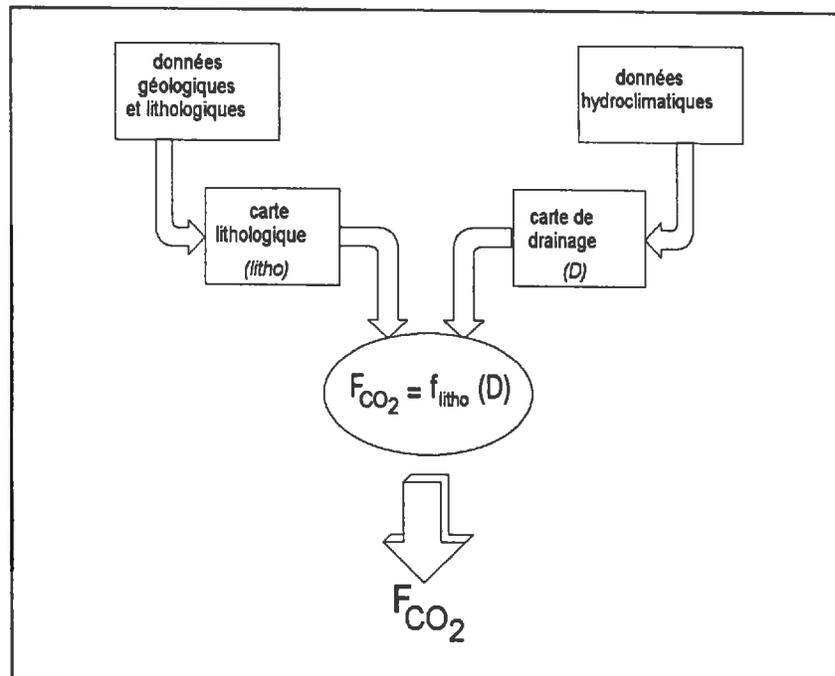


Fig.57 - Principales étapes de la modélisation.

- la formation géologique affleurant à la surface d'une cellule élémentaire est supposée être suffisamment épaisse pour être la seule roche soumise à l'altération chimique ;
- il y a conservation des flux de bicarbonates libérés par l'altération pendant le transport entre une cellule élémentaire et l'exutoire du bassin.

II – VALIDATION DU MODÈLE SUR LES BASSINS DE LA GARONNE, DU CONGO ET DE L'AMAZONE

Dans un premier temps, notre modèle est appliqué à trois grands bassins versants différents par leur climat et leur géologie. Les flux moyens annuels de CO₂ consommé calculés par le modèle seront alors comparés à ceux directement obtenus à partir des flux moyens annuels de bicarbonates transportés par le fleuve à l'exutoire du bassin et mesurés dans le cadre des différents programmes de recherche déjà cités dans les chapitres III et IV.

A – APPLICATION AU BASSIN DE LA GARONNE

Le bassin de la Garonne est un bassin de petite taille (52 000 km² à la station de La Réole), situé en région tempérée et dont le substratum est composé de près de 40 % de roches carbonatées. Le bassin est divisé en cellules élémentaires de 2,5 km de côté. Une carte lithologique est construite, puis numérisée (fig. 58), d'après la carte géologique de la France au 1/1 500 000 (BRGM, 1980) et d'après la carte géologique du Bassin d'Aquitaine (BRGM, ELF/RE, ESSO/REP, SNPA, 1979).

La carte de l'intensité du drainage (fig. 59) est directement numérisée d'après la carte de France des précipitations efficaces moyennes annuelles au 1/1 500 000 (BRGM, 1983). Les pluies efficaces moyennes sont calculées pour la période 1946–1976 et correspondent à l'écoulement potentiel moyen annuel, c'est-à-dire à la différence entre les précipitations et l'évapotranspiration potentielle, calculée sur la base de la formule de Turc. Le drainage moyen annuel pour la période 1946–1976 est alors de 345 mm/an, ce qui est remarquablement proche du débit moyen annuel de la Garonne mesuré à l'exutoire du bassin, qui est de 340 mm/an pour la même période (calculé d'après les données de l'Agence de Bassin Adour-Garonne).

Pour chaque cellule élémentaire du bassin, le flux de CO₂ consommé est calculé en appliquant le modèle correspondant à la lithologie dominante de la cellule. On réalise ainsi une cartographie de la consommation de CO₂ sur le bassin de la Garonne (fig. 60). Le flux spécifique moyen annuel varie de 13.10³ moles/km².an à 2400.10³ moles/km².an et le flux moyen annuel pour l'ensemble du bassin est de 224.10³ moles/km².an pour un drainage moyen de 345 mm/an (tabl. 30). Ce flux est plus faible que celui que nous avons estimé au chapitre IV en utilisant le modèle géochimique, mais pour une période plus humide (411.10³ moles/km².an pour 376 mm/an, période 1971–1991). Il est également plus faible que celui estimé par ETCHANCHU (1988), toujours pour une période humide (441,5.10³ moles/km².an pour 415 mm/an, période 1971–1984). Néanmoins, la méthode utilisée par ETCHANCHU (1988), basée sur les relations concentrations/débit, surestime le flux de HCO₃⁻ exporté hors du bassin, donc le flux de CO₂ consommé, notamment pour les forts débits. Au contraire, notre estimation est plus forte que celle récemment calculée par SEMHI (1993) pour une période plus sèche (151,4.10³ moles/km².an pour 156 mm/an, période 1989–1990). Par contre, la contribution du flux de CO₂ consommé au flux total de bicarbonates déduite du modèle (57 %) est proche de celles (53 % et 55 %) déterminées sur la base des flux de HCO₃⁻ exportés par la Garonne (tabl. 30).

Il semble cependant que le flux de CO₂ consommé déterminé par notre modèle soit quelque peu sous-estimé, probablement parce que certaines formations, telles que les molasses qui couvrent 31 % de la surface du bassin, sont géologiquement et lithologiquement très hétérogènes (REVEL, 1982), notamment en ce qui concerne leur teneur en minéraux carbonatés. Ainsi, les molasses d'âge miocène situées en rive gauche de

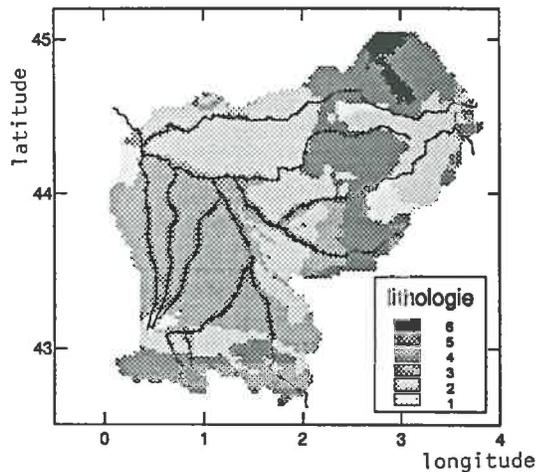
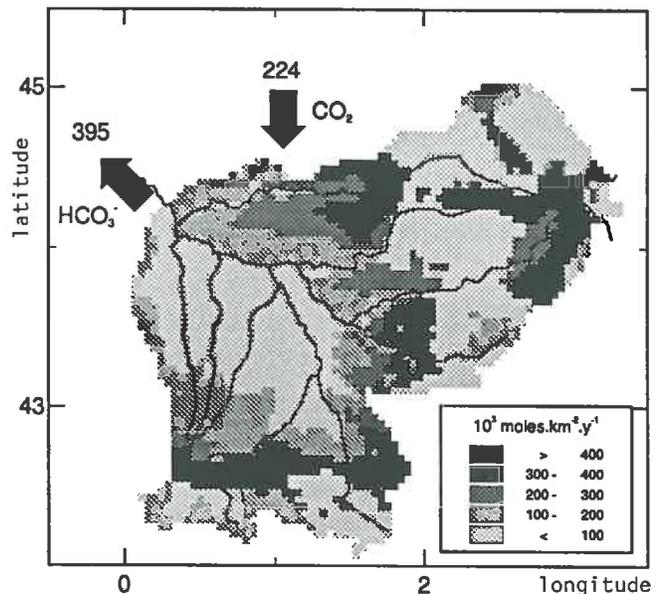
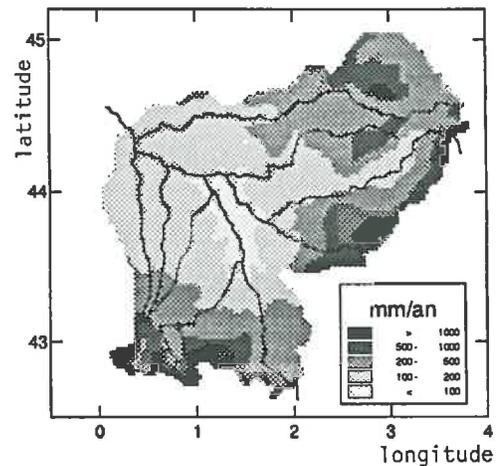


Fig.58 – Carte simplifiée des principaux types de roches affleurant à la surface du bassin de la Garonne (BRGM, 1980 et BRGM, ELF/RE, ESSO/REP, SNPA, 1979).

1 : sables et grès ; 2 : roches carbonatées ; 3 : roches détritiques argileuses ; 4 : roches plutoniques et métamorphiques ; 5 : roches volcaniques acides ; 6 : basaltes

Fig.59 – Carte de distribution de l'intensité moyenne du drainage sur le bassin de la Garonne (d'après BRGM, 1983).

Fig.60 – Distribution spatiale de la consommation de CO₂ par érosion chimique sur le bassin de la Garonne (tous les flux sont en.10³ moles/km².an).



la Garonne sont essentiellement non carbonatées ; mais REVEL (1982) observe parfois dans ces molasses des bancs de calcaire qui ne sont pas pris en compte dans le modèle. Cette sous-évaluation des formations carbonatées conduit à sous-estimer le flux de CO₂ consommé et à surestimer la contribution du flux de CO₂ au flux total de bicarbonates.

B – APPLICATION AU BASSIN DU CONGO

Le bassin du Congo est situé en région tropicale-équatoriale. Avec une superficie de 3,475 millions de km² à Brazzaville, il draine la plus grande partie de l'Afrique Centrale, depuis les grands lacs de l'Est-Africain jusqu'à l'océan Atlantique. Par sa superficie et par son débit (41 000 m³/s, PROBST *et al.*, 1992), il occupe la deuxième place après l'Amazonie dans la hiérarchie des grands fleuves mondiaux. Mais 10 % seulement environ de la superficie totale du bassin est occupée par des roches carbonatées.

Le bassin est divisé en cellules élémentaires de 50 km de côté. La carte lithologique numérisée (fig. 61) est basée sur la carte géologique simplifiée du bassin du Congo proposée par NKOUNKOU (1989).

Tableau 30 – Comparaison des flux de CO₂ simulés par GEM-CO₂ pour chaque bassin avec différentes estimations basées sur des mesures de terrain.

bassin versant	drainage (mm/an)	affleur. des roches carbonatées		F _{CO₂}		réf.
		S %	D %	10 ³ moles/km ² .an	%CO ₂	
Garonne	345	37,8	31,2	224	57	(1)
	376			411	53*	(2)
	415			441	55	(3)
Congo	370	10,6	2,5	65	79,8	(1)
	351			59	75,9	(4)
	355			53	74,7	(5)
Amazone	1125	9,2	7,0	271	67,8	(1)
	1066			333	72,1	(4)
	1080			310	67,4	(5)

* contribution calculée pour des "conditions naturelles", sans influence des épandages d'engrais azotés. (1) ce modèle (GEM-CO₂) ; (2) ce travail, tableau 23 chapitre IV, modèle géochimique MEGA basé sur les flux de bicarbonates et d'ions majeurs transportés par le fleuve ; (3) ETCHANCHU (1988), basé sur un bilan d'altération par type de roche et sur le flux moyen de bicarbonates transportés par la Garonne ; (4) ce travail, tableau 13 chapitre III, modèle géochimique MEGA basé sur les flux de bicarbonates et d'ions majeurs transportés par le fleuve ; (5) PROBST *et al.* (1994), modèle géochimique basé sur les flux de bicarbonates et d'ions majeurs transportés par le fleuve.

La carte de l'intensité du drainage (fig. 61) est numérisée à partir de la carte de drainage du continent africain au 1/20 000 000 (UNESCO, 1977), qui est basée sur le drainage moyen mesuré de plus de 2000 stations réparties sur les cours d'eau africains. Le drainage moyen que nous avons calculé par type de roche est similaire à celui déterminé par NKOUNKOU et PROBST (1987) à partir des mesures de débit effectuées par SAVAT (1973) sur 92 cours d'eau du bassin du Congo, excepté pour les surfaces occupées par les roches carbonatées. Pour ces dernières, les valeurs de drainage de la carte de la figure 61 sont ajustées à la valeur moyenne du drainage des roches carbonatées (73 mm/an) déterminée par NKOUNKOU et PROBST (1987).

Le flux de CO₂ consommé par altération chimique des roches est calculé pour chaque cellule élémentaire en appliquant le modèle (F_{CO₂} = f(D)) correspondant à la lithologie dominante de la cellule. On obtient alors une cartographie de la consommation de CO₂ sur le bassin du Congo (fig. 62). Le flux de CO₂ consommé estimé par le modèle varie de 14.10³ moles/km².an à 400.10³ moles/km².an. La consommation moyenne annuelle sur l'ensemble du bassin est de 64,9.10³ moles/km².an pour un drainage moyen de 370 mm/an. Ce flux est comparable à ceux (58,8.10³ moles/km².an, chapitre III, tabl. 13 et 56,2.10³ moles/km².an d'après PROBST *et al.* 1994) estimés à partir du flux moyen annuel de HCO₃⁻ transporté par le Congo (tabl. 30). L'estimation du modèle est cependant légèrement plus forte que celles déterminées à partir des flux de bicarbonates transportés par le Congo, car le modèle ne tient pas compte des formations latéritiques épaisses couvrant une surface importante du bassin et très pauvres en minéraux altérables. La consommation de CO₂ est donc plus faible au niveau de ces formations qu'au niveau de la roche mère dont elles sont issues par altération chimique. Par conséquent, la contribution du flux de CO₂ au flux total de bicarbonates est plus élevée que celle calculée sur la base du modèle géochimique (tabl. 30).

C – APPLICATION AU BASSIN DE L'AMAZONE

L'Amazone, avec un bassin versant de 4,6.10⁶ km² à Obidos et un débit moyen annuel de 156 000 m³/s (NKOUNKOU, 1989), est le plus grand fleuve du monde. Il est situé en région tropicale-équatoriale.

Comme pour le bassin du Congo, la surface du bassin de l'Amazone est divisée en cellules élémentaires de 50 km de côté. La carte lithologique (fig. 63) est numérisée d'après la carte géologique simplifiée du bassin de l'Amazone proposée par STALLARD et EDMOND (1983). La carte de l'intensité du drainage (fig. 64) est numérisée d'après la carte de drainage de l'Amérique du Sud au 1/20 000 000 (UNESCO, 1977).

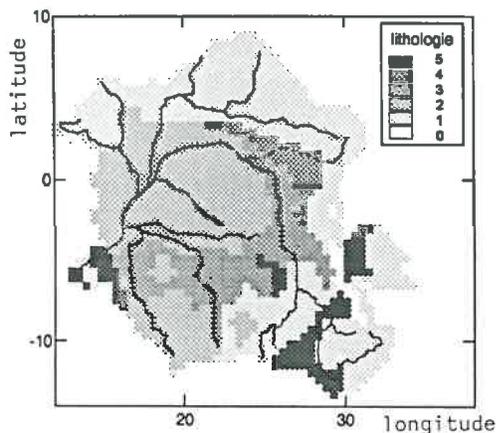


Fig.61 - Carte simplifiée des principaux types de roches affleurant à la surface du bassin du Congo (d'après NKOUNKOU, 1989).

0 : lacs ; 1 : roches plutoniques et métamorphiques ; 2, 3 et 5 : sables et grès ; 4 : roches carbonatées.

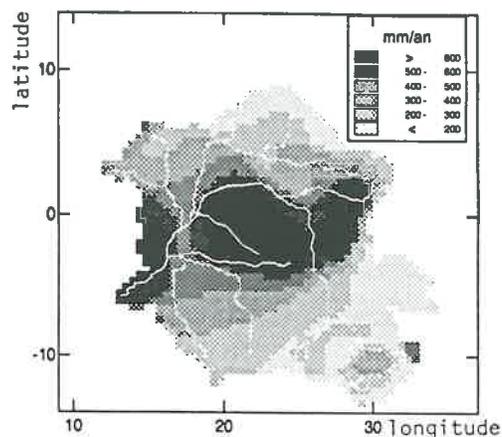
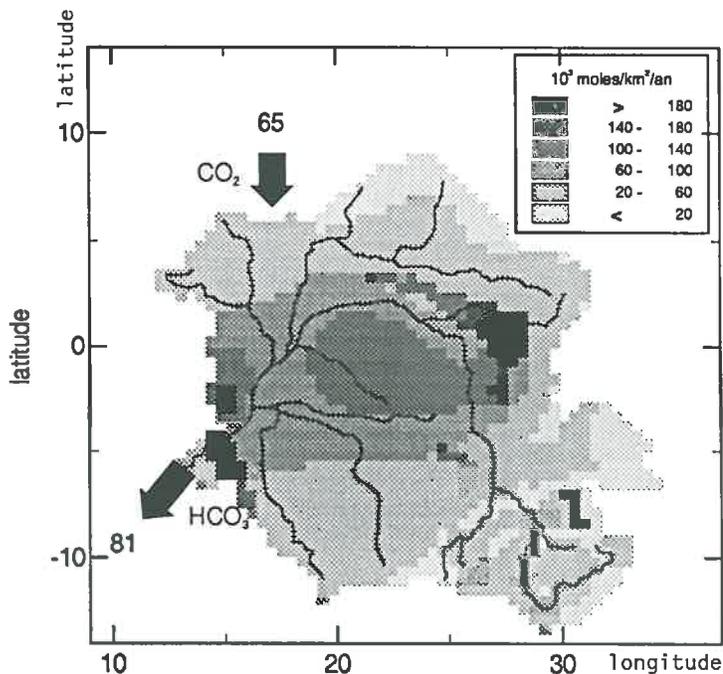


Fig.62 - Carte de distribution de l'intensité moyenne du drainage sur le bassin du Congo (d'après UNESCO, 1977).

Fig.63 - Distribution spatiale de la consommation de CO_2 par érosion chimique sur le bassin du Congo (tous les flux sont en 10^3 moles/ km^2 .an).



Les résultats obtenus par le modèle montrent que le flux de CO_2 consommé sur le bassin de l'Amazone (fig. 65) varie de 14.10^3 moles/ km^2 .an à 3570.10^3 moles/ km^2 .an. Le flux moyen annuel consommé sur l'ensemble du bassin est de $270,6.10^3$ moles/ km^2 .an pour un débit moyen annuel de 1125 mm/an, ce qui est inférieur aux valeurs estimées à partir du flux moyen annuel de HCO_3^- transporté par l'Amazone pour un débit pourtant plus faible (tabl. 30). Là encore, cette différence peut être expliquée par les simplifications de la carte géologique que nous avons utilisée. Ainsi, les sédiments paléozoïques, par exemple, sont essentiellement des roches détritiques non carbonatées (argiles, grès), mais ils contiennent également des roches carbonatées (STALLARD et EDMOND, 1983) qui n'ont pas pu être prises en considération dans la modélisation.

D - CONCLUSION

Les résultats du tableau 30 montrent que notre modèle de consommation de CO_2 par érosion chimique des roches peut être appliqué à des grands bassins fluviaux, aussi bien sous un climat tropical-équatorial que sous un climat tempéré. En effet, les estimations du modèle sont du même ordre de grandeur que

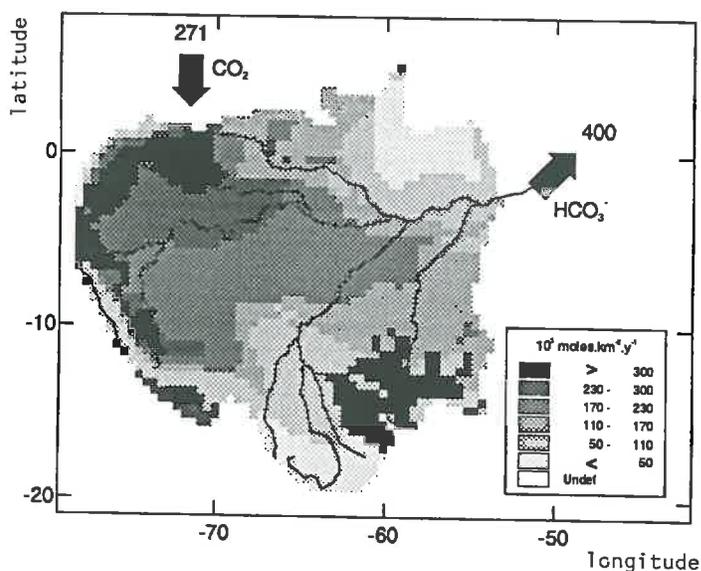
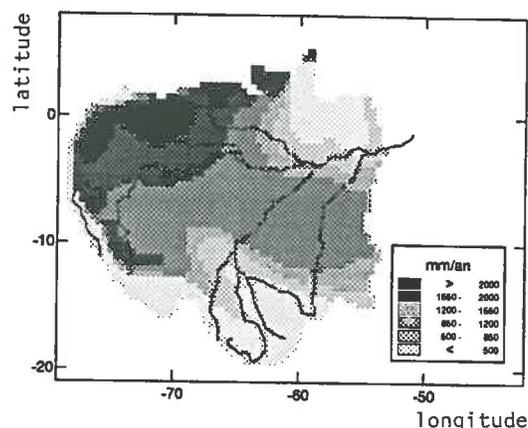
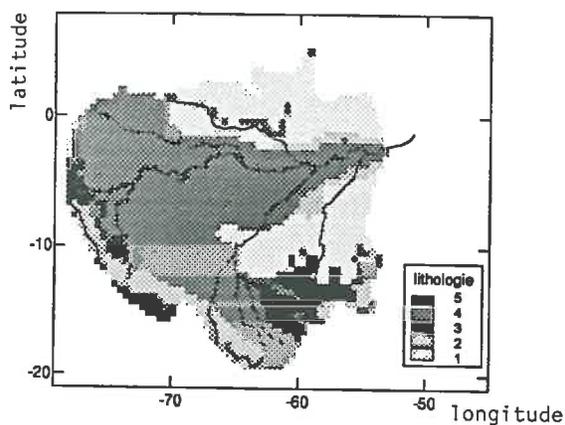


Fig.64 – Carte simplifiée des principaux types de roches affleurant à la surface du bassin de l'Amazonie (d'après STALLARD et EDMOND, 1983).

1 : roches plutoniques et métamorphiques ; 2 : roches siliceuses paléozoïques ; 3 : roches carbonatées du Mésozoïque ; 4 : roches détritiques argileuses (Tertiaire et Quaternaire) ; 5 : roches volcaniques acides.

Fig.65 – Carte de distribution de l'intensité moyenne du drainage sur le bassin de l'Amazonie (d'après UNESCO, 1977).

Fig.66 – Distribution spatiale de la consommation de CO_2 par érosion chimique sur le bassin de l'Amazonie.

les flux déterminés sur la base des flux de bicarbonates exportés par les fleuves. Les différences observées (tabl. 30) peuvent être expliquées par des débits différents : le flux de CO_2 consommé est plus faible pour une période sèche que pour une période plus humide. C'est le cas de la Garonne et du Congo. Certaines différences peuvent également être expliquées par l'introduction dans le modèle de types de roches très généraux (7 types de roches différents au maximum peuvent être introduits dans le modèle) qui ne tiennent pas compte de l'hétérogénéité des formations géologiques, notamment de la présence de minéraux carbonatés en plus ou moins grande quantité. D'autre part, les formations latéritiques, très épaisses sur le bassin du Congo, ne sont pas prises en compte par le modèle.

Les flux spécifiques de CO_2 consommé sont très différents d'un bassin à l'autre. Ces différences sont dues à la diversité hydroclimatique et lithologique des trois bassins. Ainsi, le flux de CO_2 consommé sur le bassin de l'Amazonie est 4 fois plus fort que celui consommé sur le bassin du Congo, essentiellement en raison de l'intensité du drainage qui est 3 fois plus élevée sur le bassin de l'Amazonie que sur celui du Congo. Par ailleurs, la présence de roches carbonatées est très importante pour la consommation de CO_2 . Ainsi, la consommation de CO_2 est 3,5 fois plus intense sur le bassin de la Garonne que sur le bassin du Congo, parce que sur le bassin de la Garonne les carbonates sont 3,5 fois plus abondants que sur le bassin du Congo, alors que l'intensité du drainage est similaire d'un bassin à l'autre.

L'application de la modélisation étant tout à fait satisfaisante à l'échelle des grands bassins fluviaux, elle peut maintenant être appliquée à l'échelle globale.

III – APPLICATION DU MODÈLE A L'ÉCHELLE GLOBALE

A – LES CARTES DE BASE

Les cartes de la lithologie et du drainage à l'échelle globale ont déjà été présentées dans le chapitre III de ce mémoire (fig. 18 et 21). Ces cartes sont de résolution $1^\circ \times 1^\circ$ et le flux de CO_2 consommé par érosion chimique pourra ainsi être estimé sur une grille globale de 360×180 points.

Rappelons que la carte de lithologie globale est construite et numérisée d'après les cartes lithologiques et géologiques simplifiées de chaque continent publiées par FAO-UNESCO (1971, 1975, 1976, 1978, 1979, 1981). Six types de roches différents y sont distingués (fig. 18, chapitre III) : (1) les sables et les grès, (2) les roches carbonatées, (3) les roches détritiques argileuses (shales), (4) les roches plutoniques et métamorphiques, (5) les roches volcaniques acides et (6) les basaltes.

La carte de l'intensité du drainage moyen annuel (fig. 21, chapitre III) est déterminée d'après les travaux de WILLMOTT *et al.* (1985) sur les valeurs moyennes mensuelles des précipitations et de l'évapotranspiration continentales. Ces données climatiques nous ont été fournies par le NCAR (National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, USA), déjà numérisées sur une grille globale de $1^\circ \times 1^\circ$. Le drainage résulte alors de la différence entre précipitation et évapotranspiration, et il est déterminé mensuellement et annuellement en chaque point de la grille 360×180 . Nous avons déjà pu voir que la distribution latitudinale du drainage moyen annuel calculé d'après WILLMOTT *et al.* (1985) était en accord avec celle du drainage ajusté aux débits observés des cours d'eau déterminé par BAUMGARTNER et REICHEL (1975) (fig. 20, chapitre III). Par contre, en ce qui concerne le drainage moyen mensuel déterminé d'après les données de WILLMOTT *et al.* (1985), aucune comparaison avec d'autres auteurs n'a été effectuée. Dès lors, il s'agira d'interpréter avec prudence les résultats obtenus à partir du drainage moyen mensuel, en attendant d'avoir validé ce dernier en le comparant à des données de terrain.

B – CARTOGRAPHIE DE LA CONSOMMATION DE CO_2 A L'ÉCHELLE GLOBALE

Les cartes de drainage moyen mensuel et annuel à l'échelle globale vont nous permettre, grâce à la modélisation, de simuler la consommation globale de CO_2 par érosion chimique, pour chaque mois de l'année et pour une année moyenne.

1. Flux de CO_2 moyens annuels

La figure 67 montre la répartition globale des flux de CO_2 consommé annuellement par érosion chimique. Ces flux sont nuls au niveau des déserts, où le drainage est inexistant, mais ils peuvent aller jusqu'à $7000 \cdot 10^3$ moles/ $\text{km}^2 \cdot \text{an}$ dans le Sud-Est asiatique par exemple. Les flux de CO_2 consommé sont intenses dans les régions plus humides, comme le Sud-Est de l'Asie ou le bassin de l'Amazone, mais aussi dans les régions tempérées de l'hémisphère Nord (Europe et moitié est des USA), où le substratum est composé essentiellement de carbonates et de shales dont l'altération consomme beaucoup de CO_2 . Par contre, la consommation de CO_2 est nettement moins active sur l'ensemble du continent africain, même au niveau des zones humides équatoriales, à cause d'importants affleurements de roches plutoniques et métamorphiques, de grès et de sables.

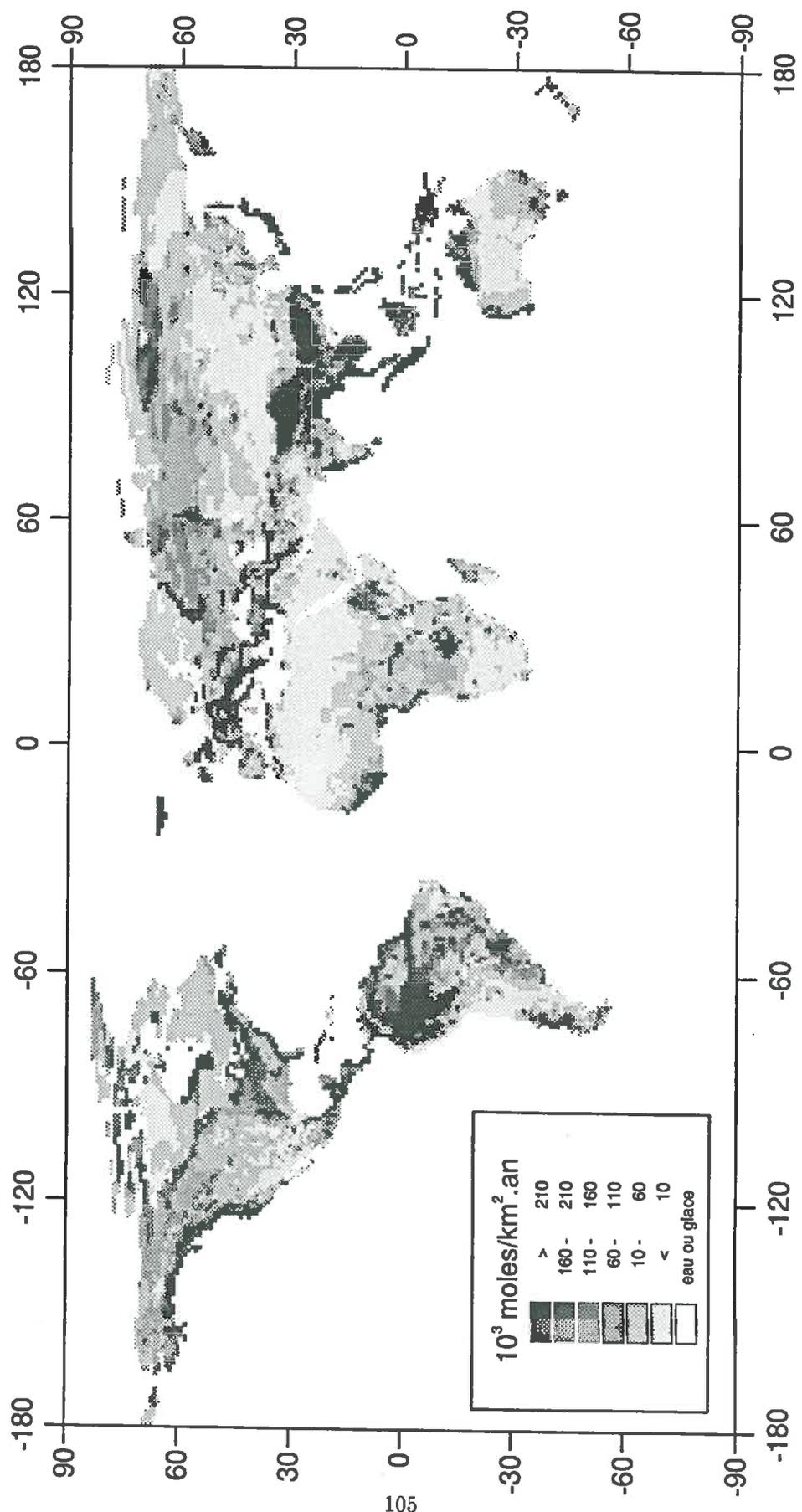


Fig.67 – Distribution globale de la consommation de CO₂ par érosion chimique des roches continentales simulée par GEM-CO₂ (résolution de la carte 1° x 1°).

La consommation moyenne annuelle de CO₂ sur l'ensemble des surfaces continentales résultant de la modélisation est estimée à 21,36.10¹² moles de CO₂, soit 0,256 GtC. Ce flux moyen annuel global est très proche du flux (21,13.10¹² moles/an) déterminé au chapitre III (tabl. 17) par extrapolation des flux exportés par les grands fleuves du monde. La simulation de la consommation de CO₂ à l'échelle globale donne également un résultat proche des estimations déjà fournies par d'autres auteurs (23,28.10¹² moles/an, BERNER *et al.* (1983) ; 21,33.10¹² moles/an, MEYBECK (1987) ; 25,30.10¹² moles/an, PROBST (1992)). Toutes ces estimations sont basées, en partie au moins, sur les flux de bicarbonates transportés par les grands fleuves. Il y a une assez bonne correspondance entre les résultats que nous avons obtenus à partir du modèle GEM-CO₂ et ceux obtenus par des méthodes totalement différentes, confirmant ainsi la validité de notre modèle.

2. Variabilité saisonnière

Douze cartes du drainage ont été construites à l'échelle globale avec une résolution de 1° × 1° d'après les données de WILLMOTT *et al.* (1985) pour les douze mois de l'année. Ceci nous permet de simuler les variations saisonnières du flux de CO₂ consommé par érosion chimique à l'échelle globale.

La figure 68 montre les variations saisonnières simulées du flux de CO₂ consommé par érosion chimique sur l'ensemble des continents. On observe deux minima, en mai et en octobre, avec respectivement 5,35.10⁵ moles/s et 5,51.10⁵ moles/s. Ces minima sont séparés par deux maxima en janvier et en juillet, avec respectivement 8,27.10⁵ moles/s et 8,83.10⁵ moles/s, soit près de 60 % d'augmentation par rapport aux flux les plus faibles. Ces derniers correspondent à des volumes d'eau écoulés très faibles et à une contribution du CO₂ au flux de bicarbonates de plus de 72 %, témoignant d'une altération préférentielle des roches silicatées. D'un autre côté, les flux de CO₂ les plus forts (janvier et juillet) correspondent aux écoulements les plus importants, mais seul le flux de juillet est accompagné d'une plus faible contribution du CO₂ au flux de HCO₃⁻ (63 %) induite par une altération préférentielle des roches carbonatées. Dès lors, si le flux de CO₂ consommé est pratiquement aussi important en janvier qu'en juillet, c'est grâce au volume d'eau écoulé, plus fort en janvier qu'en juillet. Enfin, la consommation de CO₂ décroît rapidement de 10 % entre juillet et août, alors que l'écoulement total reste constant. Cette anomalie traduit un déplacement du drainage des affleurements de roches carbonatées, consommatrices de CO₂, vers des affleurements de roches silicatées moins consommatrices de CO₂, ce que confirme l'augmentation de %CO₂ (fig. 68). On observe donc des variations importantes de la consommation de CO₂ au cours de l'année, qui témoignent d'une forte variabilité du drainage continental, mais également de l'hétérogénéité de la distribution spatiale des différents types de roche.

Le maximum du mois de janvier correspond à l'érosion chimique des roches des zones tempérées et septentrionales de l'hémisphère Nord et des zones tropicales de l'hémisphère Sud (fig. 69 a). Même si le drainage n'y est pas très intense en janvier, les régions septentrionales de l'hémisphère Nord possèdent un substratum composé essentiellement de roches carbonatées et de roches détritiques argileuses (shales) très favorables à la consommation de CO₂. Ainsi, pour ces régions, la répartition de l'intensité de la consommation de CO₂ (fig. 69 a) est similaire à celle des roches carbonatées et des shales (fig. 18, chapitre III).

Au mois de mai (fig. 69 b), les surfaces où la consommation de CO₂ est active sont nettement plus restreintes qu'au mois de janvier et sont essentiellement localisées dans le Sud-Est asiatique et dans les régions équatoriales. Dès lors, le flux de CO₂ globalement consommé est le plus faible flux de l'année.

Au mois de juillet (fig. 69 c), la consommation de CO₂ est à nouveau à son maximum et correspond au maximum d'intensité du drainage continental. Paradoxalement, les surfaces pour lesquelles la consommation de CO₂ est significative sont pratiquement aussi restreintes qu'au mois de mai (fig. 69 b), ce qui signifie que la consommation de CO₂ y est très intense, favorisée par le drainage intense des formations carbonatées du Sud-Est asiatique et de l'Amérique Centrale.

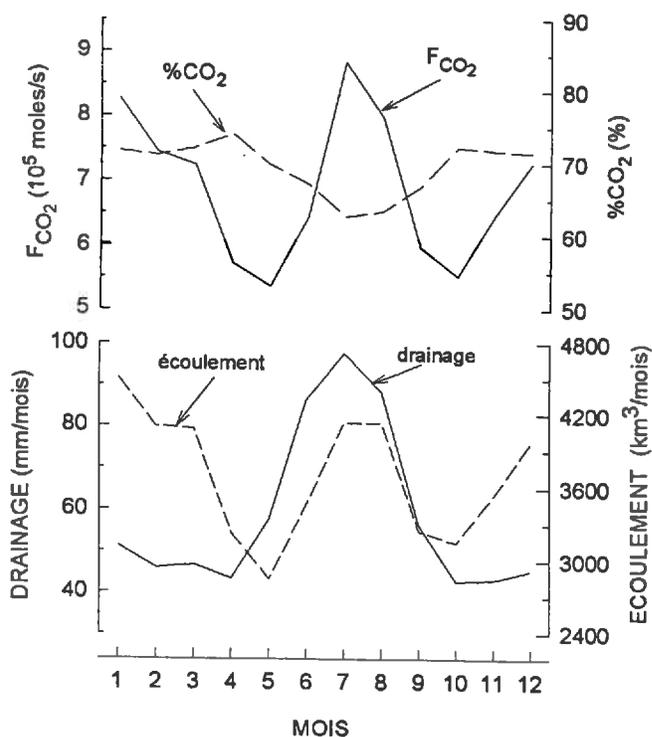


Fig.68 - Variations saisonnières de la consommation de CO₂ et du drainage continental à l'échelle globale.

F_{CO₂} : flux total de CO₂ consommé ;
%CO₂ : contribution de F_{CO₂} au flux total de bicarbonate transporté.

Un flux de CO₂ minimum est à nouveau enregistré au mois d'octobre. Il correspond à une intensité de drainage très faible également. La consommation de CO₂ est en grande partie localisée dans l'hémisphère Nord, sous les latitudes supérieures à 40° (fig. 69 d).

En résumé, la consommation de CO₂ par érosion chimique à l'échelle globale est contrôlée par l'extension géographique du drainage continental (janvier), mais aussi par la coïncidence entre les affleurements de roches consommatrices de CO₂ et l'intensité du drainage (juillet).

C - APPLICATION DU MODÈLE A L'ENSEMBLE DES GRANDS BASSINS FLUVIAUX

A partir des résultats de la modélisation globale, c'est-à-dire à partir de la carte des flux spécifiques moyens annuels de CO₂ consommé, d'une résolution de 1° × 1° (fig. 67), nous déterminons pour chacun des grands fleuves du monde le flux moyen annuel spécifique de CO₂ consommé. Ainsi, contrairement aux bassins de la Garonne, du Congo et de l'Amazone, nous n'avons pas développé, pour l'ensemble des grands bassins fluviaux, de cartes de lithologie et de drainage propres à chaque bassin, avec une résolution plus grande que celle des cartes globales. Dès lors, les flux estimés par le modèle GEM-CO₂ devraient être assez imprécis dans certains cas, notamment pour les bassins de faibles superficies.

Les flux moyens annuels spécifiques de CO₂ consommé, estimés par le modèle pour les grands fleuves, sont comparés sur la figure 70 à ceux déterminés dans le chapitre III de ce mémoire (tabl. 13). Cette comparaison montre que les résultats ne concordent pas pour un certain nombre de fleuves. Ainsi, les flux de CO₂ simulés sur le Pô, le Rhône et la Susitna sont très nettement inférieurs à ceux estimés à partir des flux d'ions bicarbonates transportés. Cette différence est à rapprocher de la faible surface occupée par ces bassins versants (moins de 100 000 km²) et de la complexité géologique de leur substratum, par rapport à la résolution des cartes de base du modèle (1° × 1°, soit une cellule élémentaire de 12 320 km² environ) et par rapport aux simplifications de la carte lithologique globale. Les différences entre flux simulés et flux observés peuvent également être attribuées aux périodes sur lesquelles sont moyennés les flux d'éléments

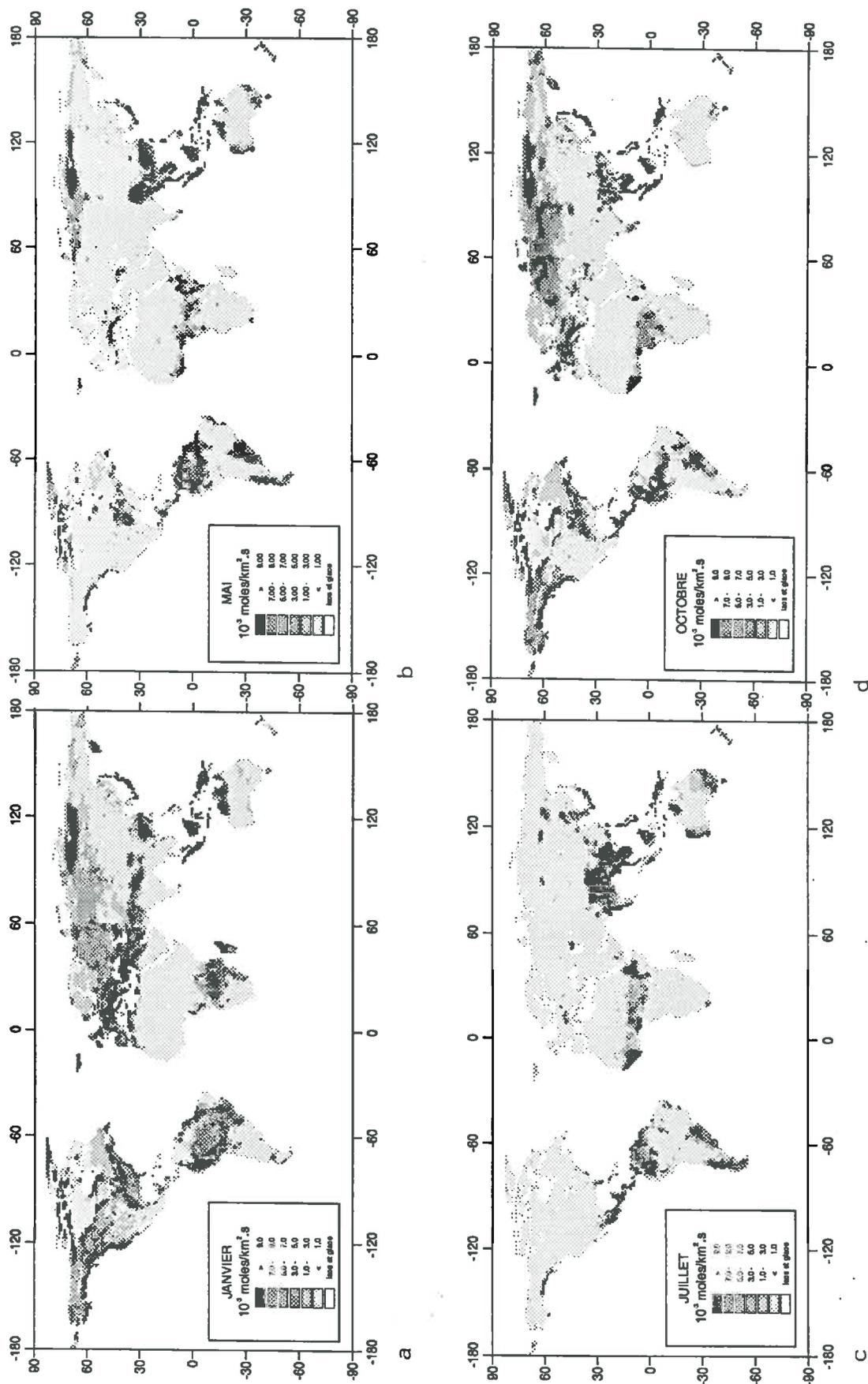


Fig.69 – Distribution globale de la consommation de CO₂ par érosion chimique des continents pour les mois de (a) janvier, (b) mai, (c) juillet et (d) octobre.

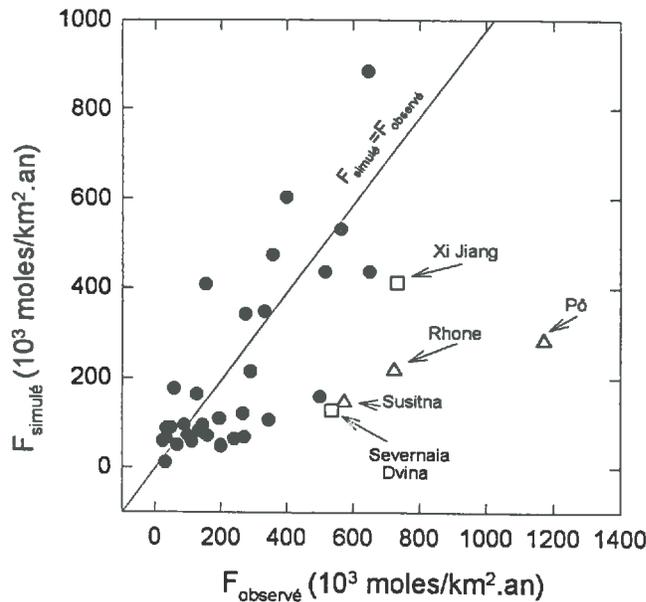


Fig.70 - Flux moyens annuels de CO_2 consommé sur les grands bassins fluviaux. Comparaison des flux simulés par le modèle GEM- CO_2 avec les estimations basées sur les données de terrain (chapitre III).

● bassins versants dont la superficie est supérieure à $100\,000\text{ km}^2$; Δ bassins versants dont la superficie est inférieure à $100\,000\text{ km}^2$; \square bassins versants dont le flux moyen observé est basé sur 2 ou 3 échantillons.

majeurs transportés en solution par les fleuves, qui ne correspondent pas toujours à celle sur laquelle est basé le bilan hydrologique global de WILLMOTT *et al.* (1985) duquel nous avons tiré la carte globale du drainage. D'autre part, les calculs des flux d'éléments majeurs transportés en solution reposent parfois sur 2 ou 3 échantillons seulement et ne peuvent donc être représentatifs de la composition chimique moyenne annuelle à long terme des eaux du fleuve. C'est le cas du Hungho, du Xi Jiang, de la Severnaia Dvina, de la Magdalena, et du Godavari (fig. 70).

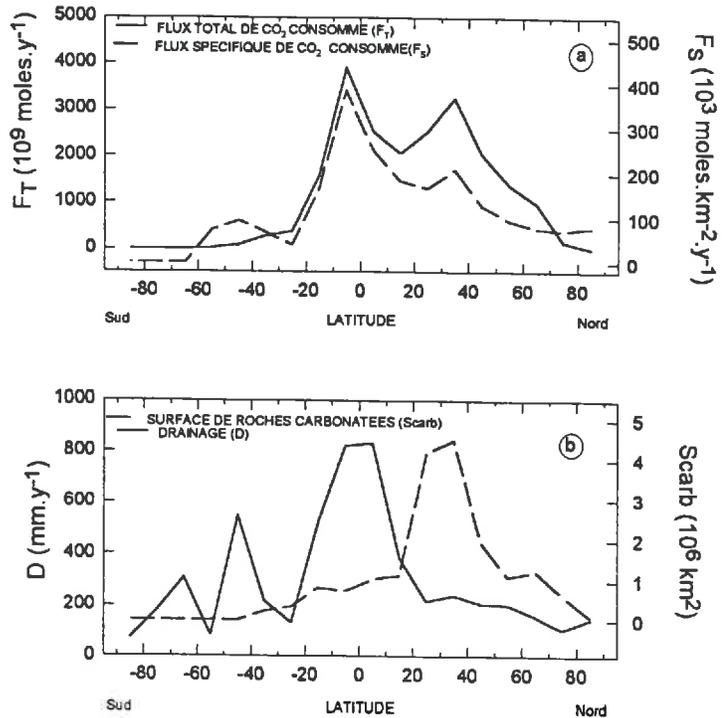
Cette comparaison fait apparaître les inconvénients des deux approches que nous proposons dans ce mémoire pour estimer la consommation de CO_2 par érosion chimique (chapitre III et ce chapitre). La première méthode, qui consiste à déterminer le flux de CO_2 consommé sur un bassin versant à partir du débit et de la composition chimique moyenne des eaux de drainage à l'exutoire du bassin (modèle MEGA), nécessite des données hydrogéochimiques abondantes de manière à se rapprocher le plus possible des valeurs moyennes annuelles réelles. La seconde méthode, qui consiste à utiliser le modèle décrit dans ce chapitre (GEM- CO_2), ne peut être appliquée qu'à des surfaces suffisamment grandes, si l'on utilise les cartes globales simplifiées du drainage et de la lithologie. Dans le cas d'une application à des bassins versants de faible surface et dont le substratum géologique est varié et complexe, il est préférable de développer des cartes de lithologie et de drainage adaptées au bassin, comme nous l'avons fait pour la Garonne (ce chapitre, paragraphe II-A).

D - BILAN DU CO_2 CONSOMMÉ POUR DIFFÉRENTES RÉGIONS DU GLOBE

1. Bilan par tranche de latitude

Sur la base des simulations des flux de CO_2 consommé par érosion chimique à l'échelle globale, mensuellement et annuellement, nous proposons ici de faire le bilan de la consommation de CO_2 et des flux de bicarbonates transportés par les eaux de surface, pour différentes régions du globe. Ces bilans sont présentés en détail en annexe.

Fig.71 - Distribution latitudinale des flux moyens annuels de CO_2 consommé (F_T et F_S), de l'intensité du drainage (D) et des affleurements de roches carbonatées (S_{carb}).



a) Bilan annuel

Le bilan du flux de CO_2 consommé par érosion chimique des roches continentales est effectué pour chaque tranche de 10° de latitude. La figure 71 représente les variations latitudinales de la consommation moyenne annuelle de CO_2 , ainsi que celles du drainage et des surfaces carbonatées.

Le flux spécifique de CO_2 consommé (en 10³ moles/km².an) montre trois maxima (fig. 71 a). Le premier, entre 40° et 60° de latitude Sud, correspond à la pointe de l'Amérique du Sud et concerne une faible surface continentale où le drainage est relativement intense. Le second pic est observé entre 0 et 10° de latitude Sud. C'est sous ces latitudes que la consommation de CO_2 est la plus intense avec plus de 380.10³ moles/km².an. Elle accompagne un drainage intense (plus de 800 mm/an en moyenne) et est essentiellement localisée dans le bassin amazonien, en Indonésie et en Nouvelle-Guinée (fig. 67). Le troisième maximum est observé dans l'hémisphère Nord, entre 30 et 40° de latitude, où les surfaces de roches carbonatées sont importantes (fig. 71 b).

En ce qui concerne la distribution latitudinale de la consommation totale de CO_2 (fig. 71 a), le flux spécifique relativement intense observé aux latitudes australes a disparu car il concernait de faibles surfaces. C'est toujours entre 0 et 10° de latitude Sud que le flux total maximum est observé. Cependant, le flux total de CO_2 consommé sous les latitudes tempérées de l'hémisphère Nord atteint presque le même niveau que celui des latitudes équatoriales. En résumé, deux zones latitudinales semblent favorables à la consommation de CO_2 par érosion chimique : la zone équatoriale où le drainage est intense, et la zone tempérée Nord où les roches carbonatées affleurent sur de larges surfaces. Dès lors, c'est dans l'hémisphère Nord que la consommation de CO_2 est la plus forte avec environ 16.10¹² moles/an (0,19 GtC/An), soit 72% du flux total de CO_2 consommé.

b) Variations saisonnières

Les variations saisonnières de la consommation de CO_2 par tranches de latitude sont représentées par les figures 72 a (flux spécifique de CO_2 consommé) et 72 b (flux total de CO_2 consommé). La figure 72 a met clairement en évidence une zone où la consommation de CO_2 est intense (supérieure à 9.10⁻³ moles/km².s)

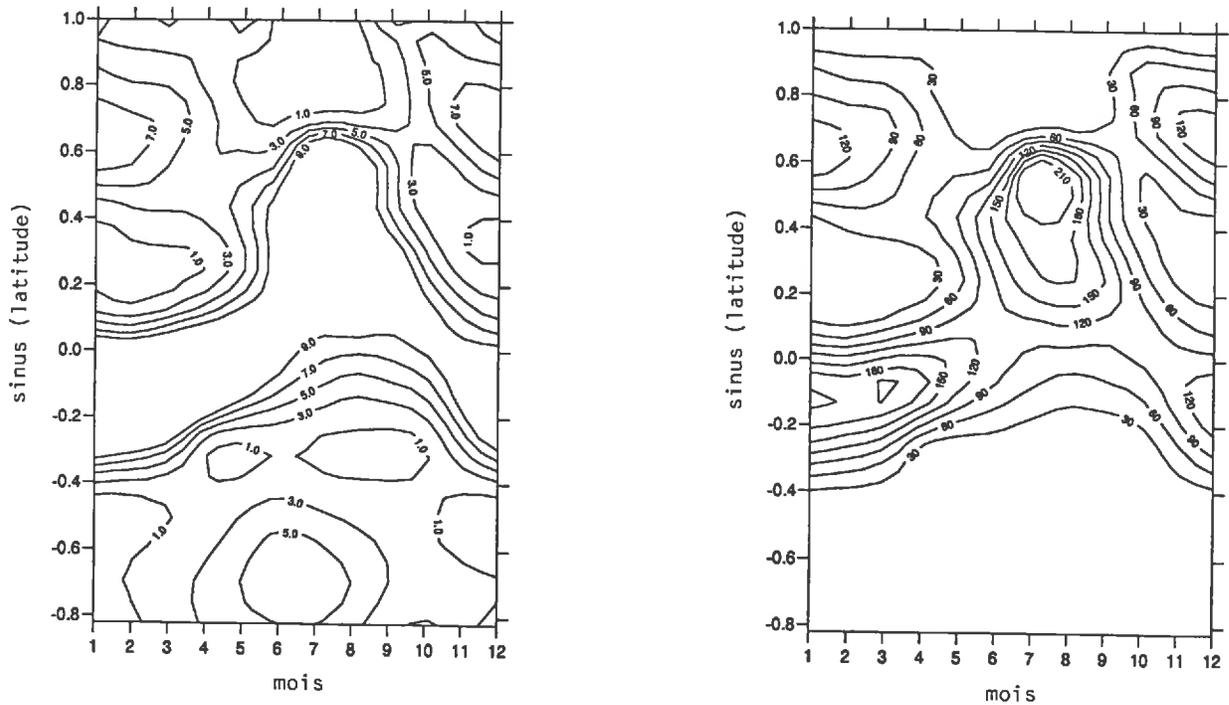


Fig.72 – Distribution spatiotemporelle (a) du flux spécifique de CO₂ consommé (en 10⁻³ moles/km².s) et (b) du flux total de CO₂ consommé (en 10³ moles/s) ; valeurs interpolées des résultats obtenus par tranches de 10° de latitude.

tout au long de l'année. Cette zone est située sous les latitudes 0 à 20° S d'octobre à mai, puis se déplace vers le Nord et occupe les latitudes 0 à 40° N de juillet à septembre.

La distribution spatiotemporelle du flux total de CO₂ consommé (fig. 72 b) souligne le déséquilibre de la répartition des surfaces continentales entre l'hémisphère Nord et l'hémisphère Sud. Ainsi, les zones de fort flux spécifique de CO₂ de l'hémisphère Sud (fig. 72 a) sont nettement réduites par rapport à celles de l'hémisphère Nord lorsqu'on considère le flux total (fig. 72 b). On distingue alors deux zones privilégiées pour la consommation de CO₂ par érosion chimique : (i) la tranche de latitude 0 à 20° S pendant l'hiver, qui correspond à la partie sud des bassins de l'Amazonie et du Congo et aux îles indonésiennes ; (ii) la tranche de latitude 10 à 40° N pendant l'été, qui correspond au Sud-Est asiatique et aux régions tempérées nord, où les carbonates et les shales affleurent sur de grandes surfaces.

2. Bilan par continents

Utilisant les résultats du modèle pour l'ensemble du globe avec une résolution de 1° × 1°, nous avons calculé le bilan de la consommation de CO₂ pour chaque continent, ne tenant compte que des surfaces exoréiques, c'est-à-dire des surfaces drainées vers les océans. Le bilan de la consommation annuelle de CO₂ est présenté dans le tableau 31. La frontière entre l'Europe et l'Asie est définie par la chaîne de l'Oural et les limites occidentales des bassins versants de la mer Caspienne, du Tigre et de l'Euphrate. L'Asie est séparée de l'Afrique par la mer Rouge et le canal de Suez. L'Austrasie comprend l'Australie, la Tasmanie, la Nouvelle-Zélande et la Nouvelle-Guinée. Les autres îles du Sud-Est asiatique appartiennent à l'Asie. Enfin, les deux Amériques sont séparées par le canal de Panama.

C'est en Austrasie que la consommation de CO₂ est la plus intense, avec un flux spécifique de CO₂ consommé dépassant les 300.10³ moles/km².an (tabl. 31). Par ailleurs, c'est en Afrique que la consommation de CO₂ est la moins active, avec un flux moyen spécifique d'environ 100.10³ moles/km².an. La consommation

Tableau 31 – Bilan par continents des flux de CO₂ consommé et des exportations annuelles de carbone minéral par les fleuves vers les océans et bilan global pour les surfaces continentales exoréiques et endoréiques (surfaces dont le drainage n'est pas nul).

	S	D	F _{CO₂}		F _{HCO₃}		%CO ₂
			F _s	F _t	F _s	F _t	
Asie	29,7	386	247,57	7,35	385,85	11,45	64,2
Amérique du Nord	21,9	285	149,82	3,28	221,43	4,85	67,7
Amérique du Sud	18,0	616	224,37	4,03	249,78	4,49	89,8
Afrique	17,7	391	101,63	1,80	149,59	2,65	67,9
Europe	8,6	271	178,87	1,52	267,79	2,29	66,0
Austrasie*	5,1	638	310,87	1,58	429,53	2,19	72,4
total surf. exoréiques	101,0	409	193,77	19,56	276,62	27,92	70,0
surfaces endoréiques	23,2	137	77,35	1,80	128,92	3,0	60,0
total continents**	124,2	358	179,98	21,36	248,95	30,92	69,1

S : surface continentale exoréique en 10⁶ km² ; D : drainage en mm/an ; F_{CO₂} : flux de CO₂ d'origine atmosphérique consommé par érosion chimique ; F_{HCO₃} : flux de bicarbonates exportés par les fleuves ; F_s : flux spécifiques en 10³ moles/km².an ; F_t : flux totaux en 10¹² moles/an ; %CO₂ : contribution du flux de CO₂ consommé au flux de bicarbonates exporté.

* comprend l'Australie, la Nouvelle-Zélande et la Nouvelle-Guinée ; ** surfaces endoréiques et exoréiques. Les calottes polaires du Groenland et du continent Antarctique ne sont pas comprises dans le bilan.

de CO₂ s'effectue essentiellement sur les continents asiatique et sud-américain, avec respectivement 37 % et 21 % du flux total de CO₂ consommé pour 30 % et 18 % des surfaces exoréiques. En revanche, l'érosion chimique du substratum africain ne contribue que pour 9 % de la totalité du CO₂ consommé alors qu'il couvre près de 18 % des surfaces exoréiques mondiales.

En ce qui concerne la contribution du flux de CO₂ au flux total de bicarbonates (%CO₂), l'Afrique, l'Europe, l'Asie et l'Amérique du Nord (tabl. 31) montrent des valeurs inférieures à la moyenne globale, estimée à 69,1 % pour la totalité des surfaces continentales. En revanche, l'Austrasie et l'Amérique du Sud sont pauvres en affleurements de roches carbonatées et la contribution du flux de CO₂ au flux total de HCO₃⁻ est respectivement de 72,4 % et 89,8 %.

Au total, ce sont 27,92.10¹² moles d'ions HCO₃⁻, dont 19,56.10¹² moles de CO₂ d'origine atmosphérique, qui sont exportées annuellement en solution par les fleuves vers les différents océans. Ce résultat est légèrement inférieur aux flux totaux de bicarbonates et de CO₂ consommé sur l'ensemble des surfaces continentales (exoréiques et endoréiques) que nous avons évalués selon le modèle respectivement à 30,92.10¹² moles/an et 21,36.10¹² moles/an (tabl. 31).

3. Bilan par océans

De même que pour les continents, nous avons fait le bilan de la consommation de CO₂ pour les différents océans. Nous avons délimité les bassins de drainage des océans Atlantique, Pacifique, Indien et des mers Méditerranée et Caspienne. Les résultats sont rassemblés dans le tableau 32. L'océan Atlantique comprend également la totalité de l'océan Arctique, mais la Méditerranée en est exclue. La mer de Chine, le golfe de Thaïlande, ainsi que les mers baignant les îles du Sud-Est asiatique sont inclus dans l'océan Pacifique. La limite entre océans Indien et Pacifique passe alors par la ligne de partage des eaux des îles Timor, Java et Sumatra. Enfin, la Méditerranée comprend également la mer Noire.

L'océan Atlantique, Méditerranée comprise, reçoit près de la moitié du flux total de bicarbonates exporté hors des continents par les fleuves, dont plus de 73 % de CO₂ d'origine atmosphérique, ce qui est en rapport avec les vastes surfaces continentales drainées vers cet océan (tabl. 32). Avec une surface de drainage nettement plus faible (20 % de la surface totale), l'océan Pacifique arrive en seconde position et reçoit 34 % du

Tableau 32 – Bilan des apports annuels de carbone minéral aux océans par les fleuves.

	S 10 ⁶ km ²	D mm/an	F _{CO₂} 10 ¹² moles/an	F _{HCO₃} 10 ¹² moles/an
Atlantique*	60,00	375	8,785	11,736
Pacifique	19,77	537	6,479	9,531
Indien	14,45	439	3,097	4,828
Méditerranée**	6,71	274	1,196	1,824
total apports aux océans	100,93	409	19,557	27,919
Caspienne	2,79	164	0,367	0,532

F_{HCO₃}, flux total de bicarbonates ; F_{CO₂}, flux total de bicarbonates provenant du CO₂ atmosphérique ; S, surface continentale drainée vers les océans ; D, drainage.

* Méditerranée non comprise ; ** mer Noire comprise. Les calottes polaires du Groenland et du continent Antarctique ne sont pas comprises dans le bilan.

Tableau 33 – Flux moyens annuels de CO₂ consommé (F_{CO₂}) et de HCO₃⁻ (F_{HCO₃}) transporté par les fleuves à l'échelle globale : comparaison des flux simulés par le modèle GEM-CO₂ présenté dans ce chapitre avec les estimations d'autres auteurs.

	S 10 ⁶ km ²	D mm/an	F _{CO₂} 10 ¹² moles/an	F _{HCO₃} 10 ¹² moles/an	CO ₂ %
modèle GEM-CO ₂	124,2	358	21,36	30,92	69,1
surfaces continentales drainées (1)					
ce modèle GEM-CO ₂	100,93	409	19,56	27,92	70,0
surfaces continentales exoréiques (2)					
cette étude, extrapolation à partir des grands fleuves mondiaux (3)	99,6*	375*	24,50	36,85	66,5
BERNER <i>et al.</i> (1987) (4)	99,6*	375*	23,28	35,08	66,4
MEYBECK (1987) (5)	99,6*	375*	21,33	31,97	67,3
PROBST (1992) (6)	148,9**	266**	25,3	37,59	67,3

(1) concerne les surfaces continentales dont le drainage n'est pas nul (surfaces endoréiques + exoréiques) ; (2) surfaces continentales drainées vers les océans ; (3) basé sur l'extrapolation des flux de CO₂ et de HCO₃⁻ exportés par les grands fleuves mondiaux et proposée dans ce travail au chapitre IV ; (4) basé sur les flux moyens annuels d'éléments majeurs issus de l'érosion et transportés par les fleuves, extrapolés à l'échelle globale par MEYBECK (1979) ; (5) basé sur la composition moyenne des eaux par type de roches à l'échelle globale (Temperate Stream Model, MEYBECK, 1987) et sur les flux moyens annuels de HCO₃⁻ transportés par les fleuves, extrapolés à l'échelle globale par MEYBECK (1979) ; (6) basé sur l'extrapolation à l'ensemble des surfaces continentales de la relation entre la concentration en HCO₃⁻ et le drainage à l'échelle globale.

* Surfaces continentales exoréiques et drainage correspondant, d'après BAUMGARTNER et REICHEL (1975) ; ** Surfaces continentales totales et drainage correspondant, d'après BAUMGARTNER et REICHEL (1975).

flux total de HCO₃⁻ exporté, dont 68 % de CO₂ d'origine atmosphérique. Enfin, l'océan Indien reçoit près de 17 % de la totalité du flux de HCO₃⁻, bien que sa surface de drainage soit peu importante. La mer Méditerranée ne recueille que 6,5 % du flux global de bicarbonates exportés, ce qui est en rapport avec sa surface de drainage. Notons au passage que ce flux de HCO₃⁻ (1,82.10¹² moles/an) est comparable à l'estimation (1,68.10¹² moles/an) récemment effectuée par COPIN-MONTEGUT (1993) d'après les flux moyens de HCO₃⁻ transportés par les fleuves du bassin méditerranéen.

4. Comparaison avec des estimations antérieures

Le flux de CO₂ simulé par le modèle GEM-CO₂ est estimé à 21,4.10¹² moles/an pour l'ensemble des surfaces continentales, et à 19,6.10¹² moles/an pour les surfaces continentales drainées vers les océans, soit respectivement 0,26 et 0,23 GtC/an. Ces résultats sont proches des flux déterminés par différentes méthodes, toutes basées, au moins en partie, sur les flux de bicarbonates exportés par les grands fleuves mondiaux (tabl. 33). On peut cependant faire deux remarques : (i) la contribution du CO₂ au flux total de bicarbonates est d'environ 67 % d'après les résultats obtenus sur la base des transports fluviaux (tabl. 33, lignes 3 à 6) alors qu'elle est de 70 % environ d'après les résultats du modèle (tabl. 33, lignes 1 et 2) ; (ii) le flux total de CO₂ consommé simulé par le modèle GEM-CO₂ pour les surfaces exoréiques est légèrement inférieur à celui estimé pour les mêmes surfaces à partir des flux de bicarbonates transportés par les fleuves.

Ainsi, dans notre modèle, on altère moins de roches carbonatées que ce que pouvaient laisser penser les résultats antérieurs de MEYBECK (1987) par exemple, d'où des flux de CO₂ consommé et de bicarbonates transportés par les rivières plus faibles. En effet, on peut considérer que notre modèle établit un bilan de la consommation de CO₂ pour des conditions dites "naturelles", c'est-à-dire sans tenir compte de l'influence de certains processus dérivés des activités humaines. Ainsi, nous avons pu voir par exemple que l'oxydation des composés azotés provenant des épandages d'engrais sur le bassin de la Garonne pouvait modifier de façon non négligeable les exportations de carbone minéral par le fleuve.

IV – CONCLUSIONS

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons appliqué avec succès notre modèle aux bassins du Congo, de l'Amazone et de la Garonne, montrant ainsi la validité des flux de CO₂ consommé simulés par le modèle. Celui-ci peut être appliqué à toute surface continentale pour laquelle on connaît, avec suffisamment de précision, la répartition spatiale de l'intensité du drainage et des affleurements des différents types de roche.

Nous avons alors simulé les variations spatiales et saisonnières de la consommation de CO₂ par érosion chimique à l'échelle globale, en utilisant les données de drainage issues des travaux de WILLMOTT *et al.* (1985) et la carte lithologique globale présentée dans le chapitre III de ce mémoire. On dégage les principaux résultats suivants.

- Les variations spatiales de la consommation de CO₂ sont contrôlées à la fois par celles du drainage et celles de l'affleurement des formations carbonatées. Deux zones latitudinales sont plus particulièrement propices à la consommation de CO₂ : la zone comprise entre 0 et 10° S, qui correspond en grande partie à la partie sud du bassin de l'Amazone, et la zone comprise entre 30 et 40° N. Au total, la consommation de CO₂ se fait en grande partie dans l'hémisphère Nord (72 % de la consommation globale).
- Le bilan par continents montre que l'érosion chimique du substratum asiatique consomme près de 40 % de la totalité du CO₂ consommé, alors que le substratum africain n'en consomme que 10 %.
- En ce qui concerne les océans, l'Atlantique reçoit près de la moitié des apports totaux en bicarbonates, dont 73 % de CO₂ d'origine atmosphérique. Le Pacifique et l'océan Indien arrivent en seconde et troisième positions.
- Les variations saisonnières de la consommation de CO₂ à l'échelle globale sont importantes ; elles témoignent de la forte variabilité du drainage continental, mais également de l'hétérogénéité de la distribution spatiale des différents types de roches. On observe deux minima en mai et en octobre, avec un flux de CO₂ estimé à 5-5,5.10⁵ moles/s, et deux maxima en janvier et en juillet, avec des flux estimés à 8-9.10⁵ moles/s.

L'estimation par le modèle GEM-CO₂ du flux de CO₂ consommé pour l'ensemble des surfaces continentales est de $21,4 \cdot 10^{12}$ moles/an, ce qui est comparable à celles basées sur les flux de bicarbonates transportés par les fleuves mondiaux. Cependant le flux de CO₂ consommé pour les surfaces continentales drainées vers les océans ($19,6 \cdot 10^{12}$ moles/an) est légèrement inférieur aux estimations basées sur les transports de HCO₃⁻ par les fleuves. Il semble en outre que les carbonates contribuent plus au flux de HCO₃⁻ que ne le prédit le modèle. On peut alors poser ici la question de l'altération des roches carbonatées par d'autres acides que l'acide carbonique qui libérerait en solution une quantité supplémentaire d'ions bicarbonates qui ne serait pas accompagnée d'une quantité équivalente de CO₂ consommé. Dès lors les flux de CO₂ estimés sur les grands bassins fluviaux peuvent être légèrement surestimés. Si on exclut la possibilité pour les roches carbonatées d'être attaquées par l'acide sulfurique issu de l'oxydation de minéraux pyriteux peu fréquents dans de tels types de roches, les acides incriminés sont apportés par les eaux de pluie. Ils sont alors, soit d'origine naturelle tels que les acides organiques, soit d'origine anthropique tels que les acides sulfurique et nitrique. Quelle serait alors l'influence des pluies acides sur les flux de bicarbonates exportés vers les océans ? Nous tenterons de répondre à cette question dans le prochain chapitre.

Chapitre VI

INFLUENCE DES PRÉCIPITATIONS ACIDES SUR LA CONSOMMATION DE CO₂ PAR ÉROSION CHIMIQUE

Le phénomène des précipitations acides constitue l'une des perturbations majeures apportées par l'homme à son environnement. Les très nombreuses études consacrées à ce problème portent essentiellement sur l'incidence de ces précipitations sur les écosystèmes aquatiques et forestiers. La principale cause d'acidité des précipitations acides est due à leurs fortes teneurs en acides sulfurique et nitrique dérivés des oxydes de soufre et d'azote et rejetés principalement par les activités humaines des pays industrialisés. Ces retombées acides, sous forme de précipitations humides ou sous forme de dépôts secs, perturbent alors notre environnement à plusieurs niveaux. Elles perturbent les écosystèmes aquatiques en acidifiant les eaux des lacs et des rivières et elles appauvrissent les sols en éléments nutritifs essentiels, ce qui est l'une des causes possibles du dépérissement forestier (SCHINDLER, 1988 ; BINKLEY *et al.*, 1989 ; BRICKER et RICE, 1993 ; LANDMANN et BONNEAU, 1995).

En ce qui nous concerne, la principale question qui se pose est de savoir de quelle façon les retombées acides perturbent l'altération chimique des roches et la consommation de CO₂. Dans ce dernier chapitre, nous tenterons d'évaluer l'influence des précipitations acides sur la consommation de CO₂ par érosion chimique, d'abord à l'échelle de petits bassins versants, puis à l'échelle globale, ce qui constituera une première application possible du modèle GEM-CO₂ présenté au chapitre V.

I – PERTURBATIONS A L'ÉCHELLE DES PETITS BASSINS VERSANTS

A – INFLUENCE DES PRÉCIPITATIONS ACIDES SUR L'ALTÉRATION CHIMIQUE

1. Perturbation de l'érosion chimique

Sous l'influence des précipitations acides, les caractéristiques des sols peuvent jouer un rôle important dans l'acidification des eaux de surface (REUSS *et al.*, 1987 ; WRIGHT et HAUHS, 1991). Les principaux processus contrôlant l'acidité des solutions des sols sont les suivants (PACES, 1986 ; BINKLEY *et al.* ; 1989) : l'intensité des apports acides par les pluies et les pluiolessivats (pluies passant à travers le couvert végétal), l'oxydation de la matière organique et la dissociation de CO₂ dans les sols, l'adsorption et la désorption des cations et des ions sulfates, la rétention de cations dans la biomasse, la dissolution et la précipitation d'aluminium, la nitrification et la dénitrification, l'altération chimique et l'évacuation des éléments (notamment des protons) par les eaux de drainage.

Le problème actuel de l'acidification des sols et des solutions qui les drainent est lié à la présence d'anions d'acides forts qui mobilisent et permettent le transport des cations (WRIGHT et HAUHS, 1991). Parmi ces anions, les ions sulfates (SO₄²⁻) et nitrates (NO₃⁻) sont les plus concentrés dans les retombées acides d'origine

anthropique, et sont accompagnés par H^+ et NH_4^+ . Les nitrates restent la plupart du temps stockés dans les sols, car l'azote est un élément essentiel dans la croissance des plantes. Dès lors, les concentrations en nitrates dans les eaux de drainage des zones acidifiées sont relativement faibles (REUSS *et al.*, 1987 ; WRIGHT et HAUHS, 1991). C'est pourquoi, dans la plupart des cas, les ions sulfates jouent le rôle principal dans l'acidification des sols et des eaux de drainage. En conditions de précipitations acides, les apports en soufre excèdent les besoins de la biomasse qui sont faibles. Les anions SO_4^{2-} peuvent alors être adsorbés sur les particules des sols, libérant en solution des ions OH^- , ce qui retarde l'acidification des eaux de drainage jusqu'à saturation des sites d'accueil des ions SO_4^{2-} . Ce sont les sols les plus anciens et les plus altérés, riches en fer et en aluminium, qui sont les plus favorables à l'adsorption de SO_4^{2-} , alors que les sols jeunes sous forêts, tels que ceux situés dans le Nord de l'Europe et des USA, sont peu enclins à adsorber SO_4^{2-} (SINGH, 1984 ; REUSS et JOHNSON, 1986 ; REUSS *et al.*, 1987 ; WRIGHT et HAUHS, 1991). Ainsi, les eaux de surface de ces régions tempérées transportent généralement une quantité de sulfates équivalente à celle apportée par les retombées humides et sèches.

Dans le contrôle de l'acidité des solutions de sol, l'échange cationique est un processus essentiel mais complexe. Pour simplifier, les protons (H^+) apportés par les précipitations acides ont un double effet (REUSS *et al.*, 1987 ; REUSS et JOHNSON, 1986 ; BINKLEY *et al.*, 1989). D'une part ils favorisent la mise en solution des ions Al^{3+} , lesquels ont tendance à remplacer les cations Ca^{2+} et Mg^{2+} sur les sites d'échange chargés négativement. D'autre part les ions H^+ participent directement à la désaturation du complexe d'échange en s'échangeant avec les cations Ca^{2+} et Mg^{2+} . Ainsi, en présence d'apports acides, ces processus consomment des ions H^+ , diminuant l'acidité des solutions de sol, et libèrent en solution des cations Ca^{++} et Mg^{++} . Dès lors, il est difficile de savoir si l'augmentation des flux de cations transportés par les eaux de surface dans les régions touchées par les précipitations acides provient de la désaturation du complexe d'échange cationique et/ou de l'accroissement de l'altération chimique des minéraux (REUSS et JOHNSON, 1986 ; REUSS *et al.*, 1987). Cependant, dans le cas où les sols sont appauvris en cations échangeables, les solutions qui atteignent le front d'altération restent acides et peuvent alors avoir pour effet d'augmenter l'altération chimique des minéraux des sols et des roches. A. PROBST *et al.* (1994) et EL GH'MARI (en préparation) montrent que, sur le bassin du Strengbach, petit bassin versant granitique des Vosges, la neutralisation des solutions de sol ne s'opère qu'en profondeur, au contact de la roche mère, par l'altération chimique des minéraux mais aussi par la désaturation du complexe d'échange cationique. C'est principalement à ces processus que les eaux du Strengbach doivent leur neutralité (pH = 6,1). Pourtant, ceux-ci s'avèrent parfois insuffisants : A. PROBST *et al.* (1990b) montrent que sur les eaux de 39 ruisseaux vosgiens analysées, 15 sont acides (pH <5,6) avec une composition chimique dominée par les cations acides (Al^{3+} et H^+). Ces ruisseaux acides drainent tous des bassins couverts de résineux, lesquels sont réputés pour capter efficacement les polluants sous forme de dépôts secs, et ce en toute saison. Par ailleurs, ces ruisseaux drainent, pour la plupart, des grès ou des granites riches en quartz et pauvres en bases, dont l'altération chimique difficile ne suffit pas à neutraliser l'acidité des eaux de drainage. A. PROBST *et al.* (1990b) soulignent cependant que les eaux des ruisseaux vosgiens étudiés, drainant des roches silicatées pauvres en bases et couverts par des résineux, ne sont pas nécessairement toutes acides.

2. Perte d'alcalinité et précipitations acides

Les retombées acides ne semblent pas avoir d'effet direct sur la minéralisation de la matière organique et donc sur la pression partielle de CO_2 dans les sols. Ainsi, JOHNSON et TODD (1984), après avoir irrigué une parcelle expérimentale avec de l'eau acide, n'observent aucune modification significative de la pression partielle de CO_2 dans les sols. L'influence des retombées acides sur la consommation de CO_2 se situe plutôt au niveau de l'altération chimique des roches silicatées, où les acides forts tels que H_2SO_4 prennent la place de H_2CO_3 . Il en résulte une diminution de l'alcalinité, principalement constituée d'ions HCO_3^- pour les domaines de pH des eaux de surface, donc de la consommation de CO_2 . L'acidification des eaux de drainage d'un bassin versant est souvent approchée par l'estimation de la perte d'alcalinité des eaux qui le drainent. Cette perte d'alcalinité (ΔAlk , en eq/l), par rapport à un état originel anté-acidification, peut être dérivée de la balance ionique comme suit (WRIGHT, 1983) :

$$\Delta Alk = 0,91(Ca^* + Mg^*) - HCO_3^- + H^+ + Al \quad (59)$$

Dans l'équation (59), Ca^* et Mg^* sont les concentrations (en eq/l) mesurées dans les eaux de drainage du bassin considéré, corrigées des apports atmosphériques ; $0,91(\text{Ca}^* + \text{Mg}^*)$ correspond à l'alcalinité théorique des eaux de drainage du bassin en conditions anté-acidification, déterminée empiriquement par relation linéaire entre HCO_3^- et $(\text{Ca}^* + \text{Mg}^*)$ sur des bassins similaires non perturbés. Dans l'équation (59), on considère que Ca^* et Mg^* sont invariants lorsqu'on passe d'un état non perturbé à un état perturbé par les précipitations acides. HENRIKSEN (1984) montre alors qu'il faut tenir compte de l'influence des apports acides, notamment des apports de sulfates anthropogéniques, sur la variation des concentrations en Ca^* et Mg^* . L'augmentation de $(\text{Ca}^* + \text{Mg}^*)$ serait alors de 0,4 fois celle de SO_4^{2-} d'origine anthropique (HENRIKSEN, 1984).

WRIGHT (1983) montre que ΔAlk (en eq/l) est équivalent à la concentration en SO_4^{2-} (en eq/l) d'origine anthropique apporté par les pluies et mesurée dans les eaux de drainage :

$$\Delta\text{Alk} = \text{SO}_4^* \quad (60)$$

WRIGHT (1983) vérifie cette relation théorique (éq. 60) sur différents groupes de lacs d'Amérique du Nord et d'Europe connus pour leurs eaux acides : les relations entre la perte d'alcalinité calculée selon l'équation (58) et la concentration en SO_4^* ont toutes une pente comprise entre 0,9 et 1. En outre, WRIGHT (1983) montre que l'excès de sulfate (SO_4^* , en moles/l) estimé dans les lacs nord-américains est une fonction linéaire positive de la concentration en H^+ (en moles/l) des précipitations :

$$\text{SO}_4^* = 1,94 \text{H}^+ + 26 \quad (61)$$

Cette relation empirique (éq. 61) montre que l'essentiel des ions SO_4^{2-} sont des anions d'acide fort accompagnés de protons dans la proportion de 2 H^+ pour 1 SO_4^{2-} . Sur les bassins dont le substratum ne renferme pas de soufre, les ions sulfates constituent donc d'excellents témoins de l'acidification des eaux de surface. La relation (60) illustre la diminution de l'alcalinité, donc de la consommation de CO_2 lorsque la concentration en ions sulfates d'origine anthropique augmente, c'est-à-dire lorsque l'acidité des précipitations augmente.

B - COMPARAISON ENTRE UN BASSIN TRÈS PERTURBÉ ET UN BASSIN PEU PERTURBÉ PAR LES APPORTS ACIDES

Pour tenter d'évaluer la diminution de la consommation de CO_2 par érosion chimique sur un bassin versant fortement perturbé par les retombées atmosphériques acides, nous proposons de comparer les flux de CO_2 consommés sur deux bassins granitiques des Vosges : le bassin peu perturbé du Ringelbach et le bassin très perturbé du Strengbach. Ces deux bassins diffèrent essentiellement par leur couvert végétal. Le bassin du Strengbach est couvert par une forêt de résineux qui captent efficacement les dépôts acides secs, alors que ces derniers sont pratiquement inexistantes sur le bassin du Ringelbach couvert par une pelouse. Les données de base de ces bassins nous ont été communiquées par A. PROBST (CGS/CNRS) en ce qui concerne la physicochimie des eaux, et par B. AMBROISE (CEREG/ULP-CNRS) en ce qui concerne les données de débit. Pour le bassin du Strengbach, ces données ont été acquises dans le cadre du Programme DEFORPA (1985-1991) "Dépérissement des Forêts et Pollution Atmosphérique" (A. PROBST *et al.*, 1991). Pour le bassin du Ringelbach, les données sont collectées régulièrement depuis janvier 1990 dans le cadre du programme MRT "Transfert d'eau et de solutés dans le système eau - sol - plante - atmosphère à différentes échelles spatiales en moyenne montagne tempérée" et de l'action "Eau-Sol-Plante" du Programme Environnement du CNRS.

Une étude comparée des deux bassins a déjà été menée par A. PROBST *et al.* (1987, 1994) pour mettre en évidence l'influence du couvert végétal sur les caractéristiques physicochimiques des eaux de drainage. En ce qui nous concerne, nous nous attacherons à analyser les variations de l'alcalinité d'un bassin à l'autre.

1. Influence des précipitations acides sur les bassins du Ringelbach et du Strengbach

a) Caractéristiques physiques et hydrologiques des deux bassins

Le bassin du Ringelbach est situé sur le versant oriental des Vosges dans le Haut-Rhin. Il couvre une superficie de 36 hectares et il s'étage entre 748 et 1000 m d'altitude. Le bassin du Strengbach est également situé sur le versant oriental des Vosges haut-rhinoises et couvre une superficie de 80 hectares. Son altitude varie de 883 m à l'exutoire à 1146 m. Les caractéristiques géologiques du substratum diffèrent légèrement d'un bassin à l'autre. Le substratum drainé par le Ringelbach est composé de deux granites (tabl. 34) : le granite à biotite du lac Vert, riche en quartz et pauvre en bases, et le granite à amphiboles des Crêtes, moins riche en quartz et contenant une proportion plus importante de cations. Dans la partie sommitale du bassin, ces deux granites sont couverts par des placages de Grès Vosgien (Bundsandstein), peu épais et composés de quartz à 85 %. Malgré trois types de roches différents, la composition chimique des eaux du Ringelbach devrait être en grande partie influencée par l'altération chimique du granite des Crêtes drainé par les deux sources majeures du ruisseau (A. PROBST *et al.*, 1987, 1994). Le substratum du bassin du Strengbach est constitué d'un granite pauvre en bases et riche en quartz, le granite du Brézouard (tabl. 34), chimiquement et minéralogiquement proche du granite du lac Vert (EL GH'MARI, en préparation).

La différence essentielle entre les deux bassins réside dans leur végétation. Celle du Ringelbach est constituée essentiellement par une pelouse, alors que le Strengbach est couvert par une forêt composée à 80 % de résineux (A. PROBST *et al.*, 1987, 1992 b).

Le débit moyen annuel du Ringelbach est de 483 mm/an (période 1990-1992) pour des précipitations moyennes de 1136 mm/an (A. PROBST *et al.*, en préparation) et celui du Strengbach est de 1051 mm/an (période 1986-1989) pour 1553 mm/an de précipitations (A. PROBST *et al.*, 1992 b). Pour les deux bassins, le cycle hydrologique est caractérisé par un écoulement minimum en septembre, auquel succède une reprise des écoulements en octobre (A. PROBST *et al.*, 1992 b). Les débits maximum sont provoqués par la fonte des neiges.

b) Bilans hydrochimiques

La composition chimique des précipitations hors couvert végétal est semblable pour les deux bassins. Les précipitations sont acides, avec dominance des ions H^+ , NH_4^+ , SO_4^{2-} et NO_3^- et avec des valeurs moyennes de pH pondérées par la hauteur des précipitations qui sont semblables, variant de 4,3 (Ringelbach ; ALARY, 1993) à 4,5 (Strengbach ; A. PROBST *et al.*, 1992). Par contre, les précipitations sous couvert forestier (pluiolessivats), rencontrées sur le bassin du Strengbach uniquement, sont plus acides (le pH moyen pondéré par les hauteurs d'eau est de 4,1) et les flux d'éléments majeurs ainsi apportés sont environ trois fois plus importants que les apports à découvert, en particulier pour les acides forts (A. PROBST *et al.*, 1992 b).

Tableau 34 - Compositions chimique et minéralogique des différents granites drainés par les ruisseaux du Strengbach (EL GH'MARI, en préparation) et du Ringelbach (d'après VON ELLER, 1961).

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	FeO-Fe ₂ O ₃	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂	P ₂ O ₅
granite des Crêtes (Ringelbach)	62,25	16,01	4,53	-	3,99	1,15	2,87	7,15	0,67	0,14
	quartz : 13 %, feldspath K : 27 %, plagioclase Ab : 17 %, plagioclase An : 3 %, biotite + amphibole : 40 %									
granite du lac Vert (Ringelbach)	73,06	13,3	1,36	0,027	0,57	0,63	3,252	5,51	0,21	-
	quartz : 25-30 %, feldspath K : 18-25 %, plagioclase : 32-42 %, muscovite : 4 %, biotite : 10-12 %									
granite du Brézouard (Strengbach)	73,18	14,66	1,2	0,02	0,42	0,49	2,95	5,04	0,17	-
	quartz : 36 %, feldspath K : 22 %, plagioclase Ab : 32 %, plagioclase An : 1 %, muscovite : 3 %, biotite : 6 %									

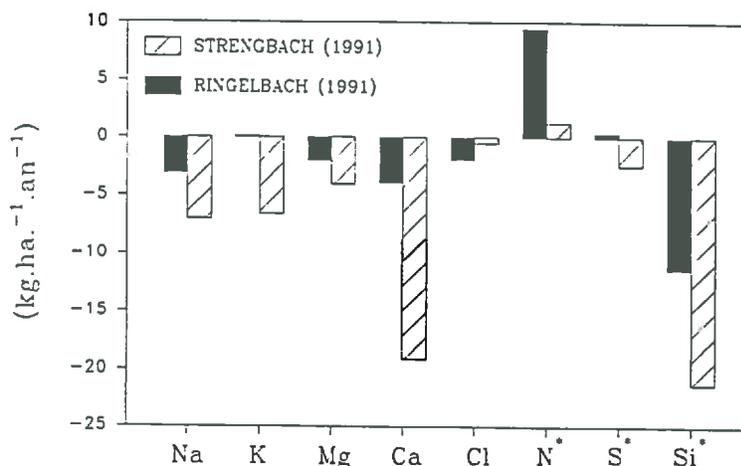


Fig.73 – Bilans comparés des éléments majeurs pour l'année hydrologique 1991 dans le bassin du Strengbach (A. PROBST *et al.*, 1994) et dans le bassin du Ringelbach (ALARY, 1993 et A. PROBST *et al.*, en préparation).
 $N^* = N - NH_4 + N - NO_3$; $S^* = S - SO_4$; $Si^* = Si - H_4SiO_4$

La composition chimique des eaux du Ringelbach est dominée par les ions bicarbonates et calcium, avec un pH moyen de 7,05 (A. PROBST *et al.*, 1987). Par contre, les eaux du Strengbach ont un pH plus faible (pH = 6,1) et leur composition chimique est dominée par le sulfate et le calcium, avec une alcalinité faible, ce qui témoigne de perturbations par les retombées atmosphériques acides (A. PROBST *et al.*, 1990 a, 1992 b, et 1993).

Les bilans hydrochimiques ont été établis par A. PROBST *et al.* (1992 b, 1993) sur le bassin du Strengbach pour la période 1986–1991 et A. PROBST *et al.* (en préparation) sur le bassin du Ringelbach pour la période 1990–1992. Le bilan hydrochimique correspond à la différence entre les flux de matière dissoute qui rentrent et qui sortent du bassin. Les principaux résultats de ces bilans montrent que la perte en cations basiques est beaucoup plus importante sur le bassin du Strengbach que sur le bassin du Ringelbach (fig. 73), alors que le substratum de ce dernier est plus facilement altérable. Cette différence est imputable à la désaturation du complexe d'échange cationique et/ou à l'altération chimique, stimulées par les apports acides plus importants sur le bassin du Strengbach que sur celui du Ringelbach (A. PROBST *et al.*, 1987, 1992). D'autre part, si les nitrates sont stockés dans les deux bassins, les sulfates ne sont stockés que sur le bassin du Ringelbach, alors que le bassin du Strengbach montre, en moyenne et sur la période d'observation (fig. 73), un déstockage important.

ALARY (1993) montre que, dans le bassin du Ringelbach, la désaturation du complexe d'échange cationique et le déstockage des sulfates varient saisonnièrement : en période de basses eaux, alors que le bassin est peu influencé par les apports atmosphériques, le calcium et le magnésium proviennent de l'altération des minéraux, et les sulfates sont adsorbés au niveau des sols ; lors de la reprise des écoulements en octobre, et jusqu'au mois de mars, le calcium et le magnésium proviennent en partie de la désaturation du complexe d'échange. Dans le même temps, les sulfates sont désorbés et favorisent la mobilisation de Ca et Mg (A. PROBST *et al.*, en préparation).

2. Flux de CO₂ consommé

a) Flux exportés par les ruisseaux

La perte d'alcalinité des eaux de surface est l'une des principales conséquences des retombées atmosphériques acides. Dès lors, le flux de bicarbonates exporté par les eaux de drainage d'un bassin influencé par des retombées acides devrait être inférieur à celui exporté par les eaux d'un bassin similaire peu ou pas influencé.

La comparaison des flux de HCO_3^- (ou flux de CO_2 consommé) exportés par les eaux du Ringelbach (bassin peu perturbé par les retombées acides) avec ceux exportés par les eaux du Strengbach (bassin davantage perturbé par les retombées acides) devrait permettre une première estimation de l'influence des précipitations acides sur la consommation de CO_2 par érosion chimique des roches granitiques. Pour cela, nous utiliserons les données de concentration en éléments majeurs (A. PROBST, communication personnelle) et de débits correspondants (B. AMBROISE et D. VIVILLE, communication personnelle) pour les deux bassins, d'août 1985 à juillet 1991 pour le bassin du Strengbach et de janvier 1990 à décembre 1992 pour le bassin du Ringelbach, avec un échantillonnage hebdomadaire.

La figure 74 montre que le flux de CO_2 consommé sur les bassins du Ringelbach et du Strengbach est une fonction linéaire du débit, ce qui rejoint les observations effectuées sur les eaux de drainage des principaux types de roches (chapitre II). On remarque cependant qu'à débit équivalent le flux de CO_2 consommé est plus important sur le bassin du Ringelbach que sur celui du Strengbach (fig. 74). La pente des droites ajustées aux relations flux de CO_2 consommé - débit permet de calculer que la consommation est 2,5 fois moins importante sur le bassin du Strengbach que sur le bassin du Ringelbach (fig. 74). Cet écart entre les deux bassins semble trop important pour être uniquement attribué aux différences géologiques et hydroclimatiques relativement faibles entre les deux bassins. La différence de végétation n'est probablement pas non plus la cause principale. En effet, LELONG *et al.* (1988) montrent que, dans un environnement peu soumis aux retombées atmosphériques acides, les flux de bicarbonates exportés par un ruisseau drainant un bassin sur pelouse à substratum granitique (mont Lozère) sont similaires à ceux exportés par un ruisseau drainant le même granite couvert d'une forêt d'épicéas. La nature du substratum altéré, par contre, peut avoir pour conséquence une altération chimique accrue sur le bassin du Ringelbach, dont le granite est plus riche en bases (tabl. 34) que celui du Strengbach.

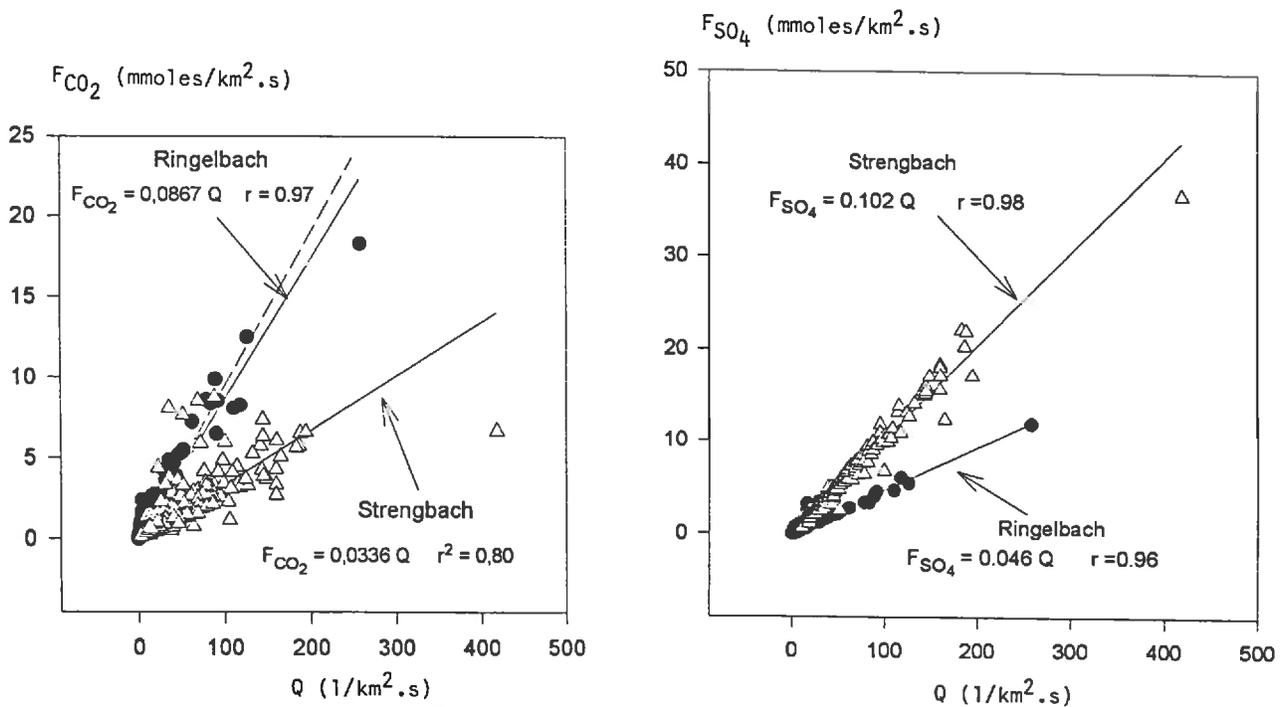


Fig.74 - Relation entre le flux de CO_2 consommé (F_{CO_2}) et le débit (Q) sur les bassins du Strengbach et du Ringelbach. La droite en pointillés représente la relation mise en évidence au chapitre II pour 41 petits bassins sur roches plutoniques et métamorphiques.

Fig.75 - Relation entre le flux de SO_4^{2-} exporté (F_{SO_4}) et le débit (Q) pour les bassins du Strengbach et du Ringelbach.

Le flux de SO_4^{2-} est également une fonction linéaire positive du débit (fig. 75), et à débit équivalent le flux de SO_4^{2-} est environ deux fois plus fort sur le bassin du Strengbach que sur le bassin du Ringelbach. Deux processus distincts expliquent cette différence : d'une part, les apports de sulfates par les dépôts humides et secs sont plus importants sur le bassin du Strengbach, couvert de résineux qui captent les polluants atmosphériques ; d'autre part, le déstockage des sulfates au niveau des sols est plus intense sur le bassin du Strengbach que sur le bassin du Ringelbach (A. PROBST *et al.*, 1987 ; ALARY, 1993). Ainsi, comme on pouvait s'y attendre, la diminution de la consommation de CO_2 coïncide donc avec l'augmentation du flux de SO_4^{2-} qui témoigne de l'acidité des solutions altérantes.

Dès lors, il est tentant d'attribuer la diminution de la consommation de CO_2 à une augmentation de l'acidité des solutions altérantes. Cependant, les différences chimiques et minéralogiques entre les granites des deux bassins nous empêchent de conclure de façon catégorique, pour le moment, que les apports acides sont le seul facteur de la diminution de la consommation de CO_2 sur le bassin du Strengbach. Une approche par modélisation thermodynamique et cinétique de l'altération chimique des deux granites devrait nous permettre de différencier plus précisément l'influence de la nature de la roche de l'influence des apports atmosphériques acides.

b) Modélisation thermodynamique et cinétique

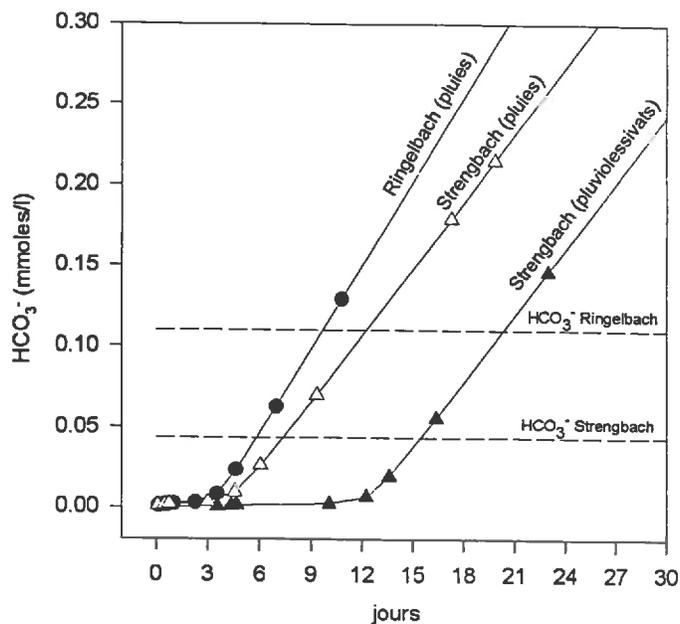
Quelle est l'influence de la variation de composition chimique et minéralogique du granite sur la consommation de CO_2 par rapport à celle de la variation des solutions altérantes ? Pour tenter de répondre à cette question, nous avons simulé l'altération chimique des deux granites (le granite des Crêtes et le granite du Brézouard) à l'aide d'un modèle d'interaction eau-roche (code KINDIS, MADÉ *et al.*, 1990) basé sur les équilibres thermodynamiques et cinétiques de dissolution des minéraux. Dans un premier temps, nous avons simulé l'altération chimique de chaque granite (tabl. 34), à 25°C, par une solution initiale identique. Celle-ci représente la composition chimique moyenne d'une eau de pluie acide (A. PROBST, communication personnelle), typique des précipitations à découvert observées sur les bassins (tabl. 35), et est à l'équilibre avec une pression partielle de gaz carbonique de $10^{-2,5}$ atm., valeur moyenne observée dans les sols. Une troisième expérience a été réalisée, dans les mêmes conditions de $p\text{CO}_2$ et de température, afin de simuler l'altération du granite du Brézouard (Strengbach) par une solution initiale de pluiolessivats (tabl. 35). Lors de chaque simulation, on a considéré que le temps pendant lequel l'eau restait au contact de la roche était identique pour chacun des deux granites. Les constantes de vitesse de dissolution et les valeurs des surfaces de contact de chaque minéral sont issues des conditions initiales d'une précédente simulation de l'altération chimique du granite du Brézouard réalisée par RICHARD (1993) pour simuler l'évolution du rapport isotopique du strontium au cours des processus d'altération météorique.

Le modèle KINDIS prédit l'évolution temporelle de la solution initiale au contact de la roche, de la stabilité des différents minéraux de la roche, ainsi que le type et la quantité de minéraux secondaires néoformés. La modélisation ne tient pas compte du renouvellement de la solution au cours du temps. Les phases secondaires précipitées dans les premiers jours sont, par ordre d'apparition, la smectite et la kaolinite, ce qui correspond aux observations de EL GH'MARI (en préparation) et EL GH'MARI *et al.* (1993) effectuées sur le granite du Brézouard. Par la suite, la solution est rapidement saturée vis-à-vis de la silice (au bout de 25 à 30 jours), ce qui devrait conduire à la néoformation de quartz, si la solution n'est pas renouvelée entre-temps.

Tableau 35 – Composition chimique (en $\mu\text{moles/l}$) des solutions initiales utilisées dans les différentes simulations d'altération chimique des granites des Crêtes et du Brézouard (A. PROBST, communication personnelle).

	pH	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	Cl^-	SO_4^{2-}	NO_3^-	SiO_2
eau de pluie à découvert	4,22	67	3	2	8	2	7	46	53	1
pluiolessivats	3,91	144	34	75	75	17	57	144	215	5

Fig.76 – Evolution temporelle des concentrations en HCO_3^- simulées à l'aide du modèle KINDIS (MADÉ *et al.*, 1990) lors de l'altération du granite des Crêtes (bassin du Ringelbach) et du granite du Brézouard (bassin du Strengbach) pour différentes solutions altérantes initiales (pluies ou pluviollessivats). Les droites en pointillés représentent les concentrations moyennes annuelles des eaux de ruisseaux dans chacun des deux bassins.



L'évolution de la concentration en bicarbonates dans la solution drainante au cours du temps est représentée par la figure 76. Chacune des trois simulations réalisées montre une évolution distincte de la concentration en HCO_3^- . Conformément à ce que laissait supposer sa composition chimique et minéralogique, le granite des Crêtes (bassin du Ringelbach) est le plus sensible à l'altération chimique. Cependant, dans des conditions identiques d'altération (eau de pluie à découvert), la solution au contact du granite du Brézouard (bassin du Strengbach) montre une concentration en HCO_3^- proche de celle au contact du granite des Crêtes (fig. 76). En outre, les résultats de l'altération simulée du granite du Brézouard par les pluviollessivats montrent une diminution importante de la concentration en HCO_3^- par rapport à l'altération du granite par les précipitations humides seules (à découvert). Cette diminution de la concentration en HCO_3^- correspond au laps de temps nécessaire à la neutralisation des acides forts d'origine anthropique par l'altération chimique (fig. 76).

La concentration moyenne annuelle en HCO_3^- mesurée dans les eaux du Ringelbach est de 0,110 mmoles/l (ALARY, 1993), ce qui correspondrait à un temps de contact eau-roche de 9 jours selon les résultats de la simulation (fig. 76) sans renouvellement de solution. En ce qui concerne le Strengbach, la concentration moyenne annuelle en HCO_3^- mesurée dans ses eaux est de 0,044 mmoles/l seulement (A. PROBST *et al.*, 1992 b), ce qui correspond à un temps de contact eau-roche de 15 jours selon les résultats de la simulation avec les pluviollessivats (fig. 76). Au bout de 15 jours, la concentration en HCO_3^- simulée par l'altération du granite des Crêtes (0,21 mmoles/l) dans le bassin du Ringelbach est 1,4 fois plus forte que celle (0,15 mmoles/l) simulée par l'altération du granite du Brézouard dans le bassin du Strengbach, par la même solution initiale, mais jusqu'à plus de 5 fois plus forte que celle (0,04 mmoles/l) simulée avec les pluviollessivats. La simulation utilisant la solution initiale très acide des pluviollessivats engendre donc des écarts beaucoup plus importants que les seules différences chimiques et minéralogiques entre les deux granites. Ce constat est conforme aux résultats de précédentes expériences introduisant les isotopes du strontium dans la simulation de l'altération de différents granites (A. PROBST *et al.*, 1992 a ; RICHARD, 1993). Après 15 jours d'altération chimique simulée, la diminution de la concentration en HCO_3^- entre la solution résultant de l'altération du granite du Brézouard (Strengbach) et la solution résultant de l'altération du granite des Crêtes (Ringelbach) est ainsi de 0,17 mmoles/l. On peut alors estimer que 65 % (0,11 mmoles/l) de cette variation de concentration en HCO_3^- est causée par la différence de composition chimique des solutions initiales et 35 % (0,06 mmoles/l) par les différences de compositions chimiques et minéralogiques entre les deux granites.

3. Conclusion

Le flux de CO₂ consommé sur le bassin du Ringelbach est plus de deux fois supérieur à celui consommé sur le bassin du Strengbach. Cette différence sensible semble pouvoir être attribuée en grande partie à l'influence des retombées atmosphériques acides, plus fortes sur le bassin du Strengbach. Ainsi, cette diminution des flux de bicarbonates (donc de la consommation de CO₂) est corrélée avec une augmentation des flux de sulfates. D'autre part, les résultats des simulations thermodynamiques et cinétiques d'altération des granites des Crêtes et du Brézouard montrent que cette différence est essentiellement le fait de la plus forte acidité des solutions percolantes sur le bassin du Strengbach.

II – SENSIBILITÉ DE LA CONSOMMATION GLOBALE DE CO₂ AUX PRÉCIPITATIONS ACIDES

Après avoir analysé l'influence des précipitations acides sur la consommation de CO₂ sur des petits bassins versants granitiques, nous proposons dans ce second paragraphe de faire une première estimation de l'influence de ce phénomène sur la consommation de CO₂ à l'échelle globale, à l'aide du modèle GEM-CO₂ présenté au chapitre V.

A – EXTENSION MONDIALE DES PRÉCIPITATIONS ACIDES

Comme cela a déjà été mentionné plus haut, le phénomène des précipitations acides est lié aux émissions de soufre et d'azote dans l'atmosphère par les activités humaines des pays industrialisés. Les principales zones où les précipitations acides atteignent un niveau suffisamment élevé pour causer des dégradations à l'environnement, tels que l'acidification des eaux des lacs et des rivières et le dépérissement forestier, sont localisées en Amérique du Nord et en Europe septentrionale et centrale. La figure 77 montre l'extension des dépôts de sulfates liés aux précipitations acides à l'échelle globale d'après RODHE (1989). Ceux-ci apparaissent ainsi relativement limités. Cependant, l'importance des précipitations acides dans de nombreux pays, tels que l'ex-Union Soviétique, la Chine ou les pays d'Amérique du Sud, qui couvrent des surfaces considérables, reste encore très mal connue (RODHE, 1989 ; GALLOWAY et RODHE, 1991). La Chine notamment, nation en plein développement où la densité de population est l'une des plus fortes du monde, présente un potentiel élevé d'émissions et de retombées acides dans les prochaines décennies (GALLOWAY, 1989 ; RODHE, 1989). En outre, les précipitations de la région du bassin de Sichuan dans le Sud-Ouest de la Chine possèdent des pH aussi faibles (pH < 4,5) que dans les régions les plus touchées d'Europe et d'Amérique du Nord (RODHE, 1989 ; DIANWU et SEIP, 1991). Dans l'hémisphère Sud, le phénomène des précipitations acides semble beaucoup plus limité, et les feux de forêt rejetant des quantités importantes d'oxydes d'azote dans l'atmosphère restent la principale source d'acidité (RODHE, 1989). Cependant, les perspectives de développement de certains pays tels que le Brésil ou l'Argentine laissent supposer, pour ces régions du monde, un accroissement des retombées atmosphériques acides dans les 20 prochaines années (GALLOWAY, 1989 ; RODHE, 1989).

B – MÉTHODE

Pour tester la sensibilité de la consommation globale de CO₂ aux précipitations acides observées actuellement, nous avons adapté le modèle de simulation de la consommation de CO₂ par altération chimique des roches en conditions non perturbées par les précipitations acides présenté au chapitre V. Pour cela, nous nous basons sur les hypothèses suivantes.

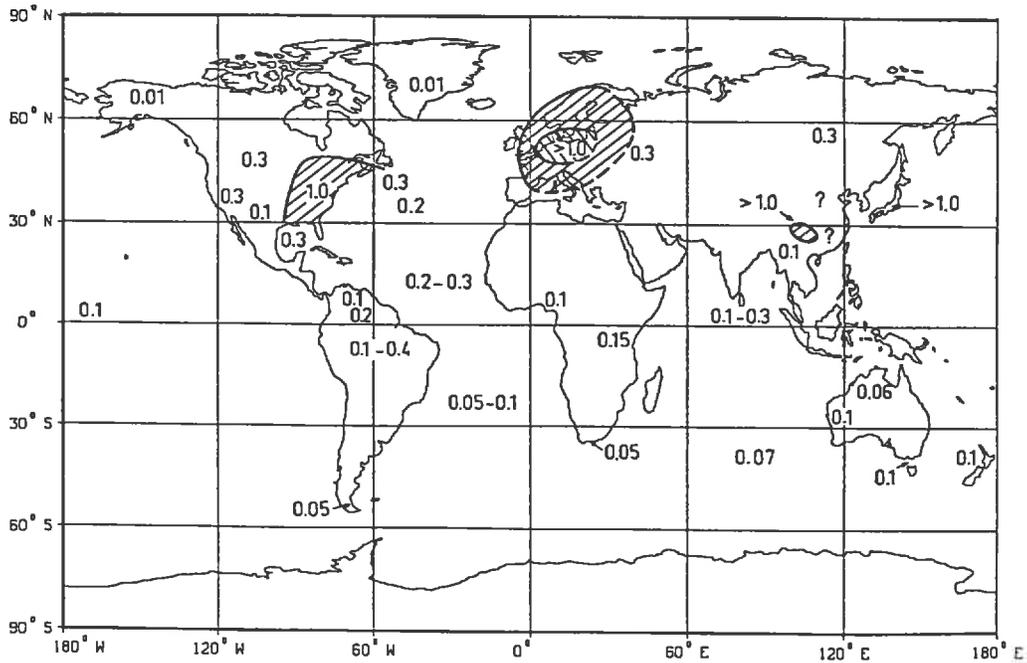


Fig.77 – Dépôts moyens annuels de sulfates d'origine anthropique (en g S/m².an) à la surface des continents (RODHE, 1989).

- Les sulfates sont les seuls anions d'acide fort ayant une influence sur la consommation de CO₂, les ions nitrates étant la plupart du temps stockés par la biomasse.
- La totalité des sulfates d'origine anthropique apportés par les précipitations se retrouvent dans les eaux de drainage ; en d'autres termes, nous négligeons le stockage des sulfates par adsorption au niveau des sols en considérant que ce processus est réversible et que les ions SO₄²⁻ seront de toute manière désorbés à court ou à moyen terme.
- Dans les processus d'altération chimique des roches silicatées, les réactions d'altération dans l'ensemble n'atteignent pas l'équilibre et la quantité d'acide neutralisé reste limitée. L'altération chimique neutralise en priorité l'acide sulfurique, puis l'acide carbonique. On considère alors que l'acide sulfurique remplace une quantité équivalente d'acide carbonique et que les ions sulfates se substituent alors aux ions bicarbonates à raison d'un ion SO₄²⁻ pour deux ions HCO₃⁻.
- Dans les processus d'altération des roches carbonatées, on considère que les réactions d'altération atteignent toujours l'équilibre et que l'acidité d'origine anthropique (H₂SO₄) ou naturelle (H₂CO₃) est totalement neutralisée (BRICKER et RICE, 1993) ; dès lors, l'attaque des minéraux par H₂SO₄ ne fait que s'ajouter à l'attaque par H₂CO₃, libérant un supplément d'ions bicarbonates en solution sans modifier la consommation de CO₂.

Dans le modèle GEM-CO₂, pour passer de conditions non perturbées initiales (0) aux conditions perturbées par les précipitations acides (1), les flux de CO₂ consommé (F_{CO₂}) et de bicarbonates exportés (F_{HCO₃}) seront modifiés en fonction du flux de sulfates d'origine anthropique apportés par les précipitations (F_{SO₄}) comme suit (en moles) :

roches silicatées :

$$F_{CO_2}(1) = F_{CO_2}(0) - 2F_{SO_4} \quad (62)$$

$$F_{HCO_3}(1) = F_{CO_2}(1) \quad (63)$$

roches carbonatées :

$$F_{CO_2}(1) = F_{CO_2}(0) \quad (64)$$

$$F_{HCO_3}(1) = F_{HCO_3}(0) + 2F_{SO_4} \quad (65)$$

C - RÉSULTATS DES SIMULATIONS

Le flux de SO_4^{2-} apporté par les précipitations sera estimé pour chaque cellule de la grille globale (360×180 cellules) à partir des cartes de concentrations moyennes en sulfates anthropogéniques dans les précipitations d'Amérique du Nord et d'Europe (WRIGHT, 1983) et du bassin de Sichuan en Chine (DIANWU et SEIP, 1991). Nous avons numérisé ces cartes avec une résolution de $1^\circ \times 1^\circ$ et les concentrations sont converties en flux en les multipliant par le volume des précipitations, sur la base de la carte des précipitations moyennes globales de WILLMOTT *et al.* (1985) interpolées sur une grille de 360×180 points à partir des hauteurs moyennes de pluie mesurées en plus de 13 000 stations réparties à la surface des continents. Les flux de CO_2 consommés et de bicarbonates exportés sont alors calculés pour chaque cellule d'après les équations (62) à (65).

Afin de tester la sensibilité de la consommation globale de CO_2 par érosion chimique aux précipitations acides, nous avons réalisé trois simulations différentes. La première (situation 1) ne prend en compte que les zones clairement connues pour l'acidité de leurs précipitations (zones hachurées de la figure 77), dont les cartes de concentration en SO_4^{2-} dans les pluies ont été numérisées. A l'extérieur de ces régions, les apports en sulfates d'origine anthropique sont considérés comme négligeables et les pluies auront une concentration nulle en SO_4^{2-} anthropogénique. Dans une seconde simulation (situation 2), nous avons remplacé les pluies de concentration nulle de la situation (1) par des pluies ayant une concentration moyenne de $20 \mu\text{eq/l}$ de sulfates d'origine anthropique, dans les zones tempérées situées au Nord du 30ème parallèle. Cette concentration moyenne correspond aux apports moyens minimum de sulfates d'origine anthropique dans l'hémisphère Nord (WRIGHT, 1983 ; RODHE, 1989). Enfin, dans une troisième simulation (situation 3), nous avons essayé de tenir compte des apports d'acides par dépôt sec. Ces derniers sont en effet des vecteurs importants de l'acidité dans les bassins couverts par des forêts (A. PROBST *et al.*, 1987, 1990 a, 1990 b ; BINKLEY *et al.*, 1989). Ainsi, sur le bassin du Strengbach (Vosges), le flux moyen de sulfates apporté par les précipitations est environ trois fois plus élevé sous couvert de résineux qu'à découvert (A. PROBST *et al.*, 1992 b). Ce rapport est de 2 pour les apports concernant l'Est des Etats-Unis (BINKLEY *et al.*, 1989 ; GALLOWAY et RODHE, 1991). BINKLEY *et al.* (1989) notent cependant qu'une estimation à grande échelle des apports de sulfates par dépôts secs apparaît difficile compte tenu des nombreux facteurs climatiques, atmosphériques et biologiques qui contrôlent les dépôts secs. La situation (3) ne sera donc pas basée sur une répartition des apports de sulfates par dépôts secs à l'échelle globale, mais sur les flux de SO_4^{2-} calculés à partir de la situation (2) et multipliés par 3, selon ce qui est observé par A. PROBST *et al.* (1992 b) dans le bassin du Strengbach. L'objectif de cette dernière simulation n'est pas de faire une évaluation précise de l'influence des précipitations acides sur la consommation globale de CO_2 , mais plutôt de tester la sensibilité de cette consommation de CO_2 dans des conditions plutôt extrêmes, mais réalistes, de perturbation des conditions initiales d'altération.

Les résultats des simulations sont présentés dans le tableau 36. Ces résultats montrent qu'à l'échelle globale et dans les conditions actuelles reconnues d'acidité des précipitations, les précipitations acides n'ont qu'une influence très limitée sur la consommation de CO_2 . Ainsi, par rapport à la situation (0) sans précipitations acides, le flux de CO_2 consommé diminue de 0,7 % lorsqu'on passe à la situation (1), de 3 % lorsqu'on passe à la situation (2) et de 6 % lorsqu'on passe à la situation extrême (3). Le flux de bicarbonates exporté par les fleuves diminue moins rapidement (-4,1 % entre la situation (0) et la situation (3)), ce qui provoque une baisse sensible de la contribution du CO_2 atmosphérique au flux total de bicarbonates (tabl. 36).

La figure 78 représente la diminution relative de la consommation de CO_2 dans les différentes zones touchées par les précipitations acides selon les trois situations décrites plus haut. Cette diminution relative, exprimée en %, correspond à la différence entre le flux de CO_2 estimé pour une situation perturbée et le flux de CO_2 estimé pour une situation non perturbée par les apports acides. On remarque alors que, localement, cette diminution peut être très importante et peut égaler 100 %.

Les valeurs de la diminution relative de la consommation de CO_2 par type de roche et pour l'ensemble des continents sont présentées dans le tableau 37. Cette diminution atteint au maximum 24 % en moyenne pour les roches plutoniques et métamorphiques qui consomment initialement le moins de CO_2 . Comme cela a été défini dans le modèle, il n'y a pas de diminution de la consommation de CO_2 pour les roches carbonatées.

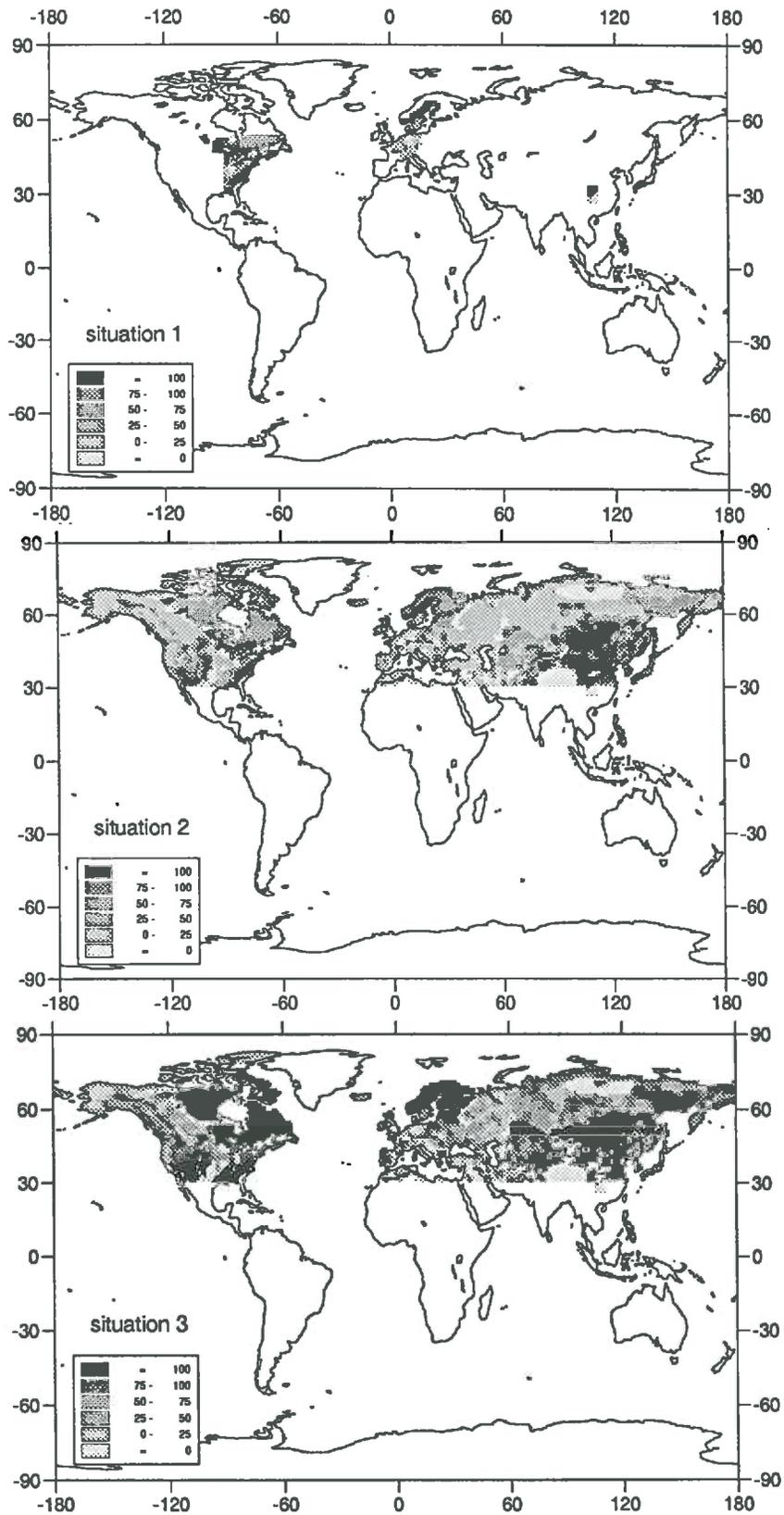


Fig.78 - Diminution relative (en %) de la consommation de CO₂ pour les trois situations différentes de dépôts acides définies dans le texte (a : situation 1 ; b : situation 2 ; c : situation 3) par rapport à une situation non perturbée par les dépôts acides.

Tableau 36 – Influence des pluies acides sur la consommation globale de CO₂ par érosion chimique : résultats des simulations sur l'ensemble des surfaces continentales.

	apports SO ₄ ²⁻ 10 ¹² moles/an*	F _{CO₂}		F _{HCO₃}		CO ₂ %
		10 ³ moles/km ² .an	10 ¹² moles/an	10 ³ moles/km ² .an	10 ¹² moles/an	
situation 0 (a)	0	171,91	21,36	248,87	30,92	69,1
situation 1 (b)	0,13	170,46	21,18	248,13	30,83	68,7
situation 2 (c)	0,38	167,12	20,76	245,45	30,50	68,1
situation 3 (d)	1,15	157,59	19,58	238,63	29,65	66,0

(a) sans pluies acides ; (b) pluies acides limitées aux zones cartographiées de l'Amérique du Nord, de l'Europe et du Sud-Ouest de la Chine (bassin du Sichuan) ; (c) même situation qu'en (b), avec une concentration minimum de 20 µeq/l de SO₄²⁻ d'origine anthropique dans les précipitations pour les zones de l'hémisphère Nord situées au-delà du 30ème parallèle ; (d) même situation qu'en (c), avec des apports en SO₄²⁻ multipliés par 3 pour tenir compte des dépôts secs.

* sulfates d'origine anthropique.

Tableau 37 – Diminution relative de la consommation de CO₂ à l'échelle globale pour les principaux types de roches.

	S 10 ⁶ km ²	situation 0	situation 1	situation 2	situation 3
		F _{CO₂} 10 ¹² moles/an	ΔF _{CO₂} (%)		
sables et grès	31	1,29	-1	-7	-15
roches détritiques argileuses	33,4	7,58	< -1	-3	-9
roches carbonatées	16,2	9,41	0	0	0
r. plutoniques et métamorphiques	34,5	1,37	-6	-15	-24
basaltes	6,4	1,53	0	-2	-5
roches volcaniques acides	2,7	0,18	0	-5	-14
total surfaces continentales drainées	124,2	21,36	< -1	-3	-6

Les apports de sulfates d'origine anthropique par les précipitations acides sont calculés par le modèle (tabl. 33). Pour les situations (1) et (2), ces estimations sont nettement inférieures à l'estimation des émissions globales d'oxydes de soufre d'origine anthropique de RODHE (1989) qui s'élève à 2,2 10¹² moles/an pour l'Amérique du Nord, l'Europe et l'Asie. Certes, une part importante de ces émissions retombe sur les océans et non sur les continents. Ainsi, 36 % environ des émissions de soufre de l'Amérique du Nord retombent dans l'Atlantique (GALLOWAY et RODHE, 1991). Cependant, même si on tient compte de cette exportation hors des continents, les dépôts de sulfates estimés pour les situations (1) et (2) restent probablement sous-estimés. Cette sous-estimation confirme que les apports par les dépôts secs doivent être pris en compte. Ainsi, les apports de sulfates anthropogéniques estimés par le modèle dans la situation (3) sont de 1,15.10¹² moles/an, ce qui semble plus réaliste par rapport au volume des émissions déterminé par RODHE (1989).

III – CONCLUSIONS

La perte d'alcalinité dans les eaux de surface est l'une des conséquences importantes des précipitations acides. Cette perte d'alcalinité se traduit, au niveau du cycle du carbone, par une diminution de la consommation de CO₂ par érosion chimique. Cette diminution est étudiée sur deux petits bassins versants vosgiens, les bassins du Strengbach et du Ringelbach, dont le substratum est granitique et la situation géographique semblable. La composition chimique des eaux du bassin du Strengbach est fortement perturbée par les apports acides. En effet, ce bassin est en grande partie couvert par des résineux qui piègent efficacement

les polluants atmosphériques acides sous forme de dépôts secs. Par contre, le bassin du Ringelbach est essentiellement couvert de pelouses, et les dépôts atmosphériques acides, uniquement apportés par les pluies à découvert, restent relativement limités. Nous avons alors montré que le flux de CO_2 consommé était plus de deux fois moins fort sur le bassin du Strengbach que sur le bassin du Ringelbach. Nous avons ensuite simulé l'altération chimique de chacun des deux granites qui composent l'essentiel du substratum des bassins étudiés, à l'aide du modèle d'interaction eau-roche KINDIS. Les résultats des simulations montrent que l'essentiel de la diminution du flux de HCO_3^- observée sur le bassin du Strengbach est provoqué par les apports acides qui sont plus importants sur le bassin du Strengbach que sur le bassin du Ringelbach.

Nous avons alors cherché à estimer l'influence des retombées acides sur la consommation de CO_2 à l'échelle globale. Pour cela, nous avons utilisé le modèle de consommation de CO_2 GEM- CO_2 que nous avons développé dans cette étude (chapitre V). Trois situations différentes de retombées acides ont été envisagées. Les résultats de ces trois simulations montrent que l'influence des retombées acides sur la consommation de CO_2 à l'échelle globale est faible. On détermine en effet une diminution du flux de CO_2 consommé sur l'ensemble des continents de l'ordre de 6 % dans la situation la plus pessimiste.

Cependant, nous n'avons tenu compte que des retombées d'acide sulfurique. Ainsi, les composés organiques émis durant les feux de forêt sont également à l'origine de précipitations acides, notamment dans l'hémisphère Sud. En outre, l'extension géographique et l'intensité des retombées acides sont encore mal connues. L'acidité des précipitations est encore peu étudiée dans les pays en voie de développement, tels que la Chine et les pays d'Amérique du Sud, qui constituent un fort potentiel d'émissions d'oxydes de soufre et d'azote pour les dix à vingt ans à venir.

CONCLUSIONS GÉNÉRALES

Erosion chimique et cycle du carbone

L'altération chimique des roches est essentiellement le fait de l'attaque des minéraux par l'acide carbonique. Ce dernier est indirectement issu du CO₂ atmosphérique, *via* la photosynthèse puis la dégradation de la matière organique dans les sols. C'est pourquoi on parle plus généralement de consommation de CO₂ atmosphérique par érosion chimique des roches. Le CO₂ dissous, qui est impliqué dans les réactions d'altération, se retrouve alors dans les eaux de drainage puis dans les fleuves principalement sous forme d'ions bicarbonates. Lors de l'altération des minéraux silicatés, la totalité des ions bicarbonates dissous dans les eaux de surface proviennent du CO₂ atmosphérique. Par contre, dans le cas de l'altération des minéraux carbonatés, la moitié seulement des ions HCO₃⁻ est issue du CO₂ atmosphérique, l'autre moitié provenant de la dissolution du minéral lui-même.

L'érosion continentale occupe une position particulièrement originale au sein du cycle du carbone. Elle est située à l'interface des réservoirs constitués par l'atmosphère, la biosphère et les océans, mais également à l'interface entre ces réservoirs externes et les réservoirs plus internes de la lithosphère. En outre, elle constitue le seul lien majeur et direct entre la biosphère et les océans. Les fleuves transportent ainsi chaque année 1 GtC (10¹⁵ g de carbone) ; ce flux est du même ordre de grandeur que les autres flux majeurs du cycle actuel. En effet, l'apport de carbone par les fleuves aux océans correspond à 50 % du CO₂ atmosphérique absorbé par les océans (2 GtC/an), à 30 % de l'accroissement annuel de la concentration de CO₂ dans l'atmosphère (3 GtC/an) et à 15 % des rejets anthropiques (6 GtC/an). Par ailleurs, le flux total de carbone transporté par les fleuves (1 GtC) est constitué de 30 % de CO₂ d'origine atmosphérique consommé par érosion chimique des roches continentales, de 40 % de carbone organique provenant de la biosphère et de 30 % de carbone inorganique provenant de la lithosphère. Ainsi 0,7 Gt de carbone transporté par les fleuves est d'origine atmosphérique *via* la photosynthèse.

Au cours des temps géologiques, le cycle du carbone est contrôlé par le cycle géochimique des carbonates et des silicates. La concentration de CO₂ dans l'atmosphère fluctue alors en fonction des rejets de l'activité volcanique (flux d'entrée) contrebalancée par le transfert de carbone vers la lithosphère par l'érosion chimique continentale des roches silicatées et la sédimentation des roches carbonatées (flux de sortie). Si l'érosion continentale semble réguler la concentration de CO₂ dans l'atmosphère à l'échelle du million d'années, elle semble également pouvoir jouer un rôle non négligeable à l'échelle de la centaine de milliers d'années. Ainsi, les transferts de carbone entre la biosphère et les océans au cours de la transition interglaciaire-glaciaire de 120 000 à 20 000 ans B.P. sont réalisés à des vitesses moyennes tout à fait compatibles avec les flux d'érosion observés actuellement. En d'autres termes, une augmentation, même faible, de l'érosion continentale serait capable de transférer une part importante de carbone des continents vers les océans, lorsqu'on passe d'une période interglaciaire à une période glaciaire.

Dans le cycle global du carbone, l'érosion continentale se développe à l'interface entre les différents réservoirs et se trouve ainsi contrôlée par de nombreux facteurs tels que les facteurs géologiques, hydroclimatiques, biologiques et anthropiques. Parmi ceux-ci, les facteurs hydroclimatiques sont sans doute les plus importants dans les processus d'érosion continentale. Des fluctuations de la température et de l'intensité du drainage peuvent être observées à très court terme aussi bien qu'à moyen et long termes. D'autre part la température est étroitement liée, par le biais de l'effet de serre, à la concentration en CO₂ dans l'atmosphère. Dès lors, l'altération continentale, qui consomme d'autant plus de CO₂ d'origine atmosphérique que la température augmente, a un effet rétroactif négatif sur la teneur en CO₂ dans l'atmosphère.

Estimation des flux de CO₂ consommé par érosion chimique : deux approches différentes

Dans le but d'estimer la quantité de CO₂ consommé par érosion chimique des roches sur les continents, nous avons développé dans cette étude deux approches différentes et complémentaires.

La première est une approche à grande échelle, dans laquelle on estime la quantité de CO₂ consommé sur les grands bassins fluviaux en appliquant un modèle géochimique de décomposition des flux d'éléments majeurs (modèle MEGA, "Major Element Geochemical Approach") aux flux exportés en solution par les fleuves et corrigés des apports atmosphériques. Le flux de CO₂ consommé peut alors être estimé de deux manières : (i) directement à partir des flux de bicarbonates auxquels on retranche la part provenant des minéraux carbonatés (bilan géochimique direct), (ii) indirectement en faisant le bilan de la consommation de CO₂ par minéral dissous (bilan géochimique indirect). Ce modèle a permis de déterminer le flux moyen annuel de CO₂ consommé sur 38 grands bassins fluviaux du monde, ainsi que les variations saisonnières et interannuelles des flux de CO₂ sur les bassins versants de la Garonne, de l'Oubangui et du Congo. En outre, le modèle MEGA permet d'étudier la dynamique des éléments majeurs dans les processus d'érosion chimique, à différentes échelles d'espace et de temps. La qualité des résultats obtenus par cette approche repose sur l'estimation précise des flux dissous provenant de l'érosion chimique des roches. Cette estimation peut en effet avoir été biaisée par la mauvaise qualité des analyses chimiques des eaux des fleuves, par l'imprécision de la correction des apports atmosphériques et par les rejets anthropiques dans les rivières.

La seconde des deux approches développées dans cette étude, par opposition à la première, est une approche à petite échelle dans laquelle nous avons étudié et quantifié l'influence de différents facteurs, tels que la lithologie et le drainage, sur la consommation de CO₂ sur plus de 200 petits bassins versants monolithologiques de quelques km². Dans cette approche, on met en évidence un ensemble de relations empiriques entre le flux de CO₂ consommé et le drainage pour les principaux types de roches affleurant à la surface des continents. Ces relations constituent la base d'un modèle (GEM-CO₂, "Global Erosion Model") qui permet de simuler les flux de CO₂ consommé sur un grand bassin versant dont le substratum est composé de plusieurs types de roches, en considérant la surface du bassin comme la somme d'une multitude de petits bassins versants monolithologiques. Ce modèle a été validé sur les bassins du Congo, de l'Amazonie et de la Garonne. Son principal apport est de tenir compte à la fois de l'intensité du drainage, de sa répartition spatiale et de celle des affleurements des différents types de roche. Ainsi, outre l'estimation du flux de CO₂ consommé pour une surface donnée, le modèle permet d'étudier la variabilité spatiale de la consommation de CO₂, c'est-à-dire de faire une cartographie de la consommation de CO₂. Nous avons donc utilisé le modèle GEM-CO₂ pour étudier la variabilité spatiotemporelle de la consommation de CO₂ sur l'ensemble des surfaces continentales. La qualité des résultats ainsi obtenus est tributaire de la précision des données de base sur la répartition spatiale de la lithologie et du drainage.

Par rapport à la première approche (modèle MEGA), le modèle GEM-CO₂ permet de s'affranchir des problèmes relatifs à la détermination des flux dissous provenant de l'érosion chimique des roches. En outre, le principal avantage de GEM-CO₂ est qu'il s'agit d'un modèle prédictif. Il peut ainsi être utilisé pour simuler la consommation de CO₂ pour différents scénarii de changements climatiques et de perturbations d'origines anthropiques telles que les précipitations acides.

Bilan des flux de CO₂ consommé à l'échelle globale

Le bilan de la consommation de CO₂ à l'échelle globale a été établi en utilisant les deux approches qui ont été décrites dans le paragraphe précédent.

Une première estimation a été établie en extrapolant à l'ensemble des surfaces continentales les estimations des flux de CO₂ déterminés sur les grands bassins fluviaux par décomposition des flux d'éléments majeurs transportés en solution et corrigés des apports atmosphériques (modèle MEGA). Le flux moyen de CO₂ consommé par érosion chimique des continents est ainsi estimé à 0,29 GtC/an ($24,5 \cdot 10^{12}$ moles/an). Cette estimation est légèrement supérieure à celle de MEYBECK (1987), mais comparable à celles de BERNER *et al.* (1983) et PROBST (1992).

Une seconde estimation a été réalisée en simulant les variations spatiales de la consommation de CO_2 à l'échelle globale à l'aide du modèle GEM- CO_2 . Le flux de CO_2 ainsi déterminé est de $21,4 \cdot 10^{12}$ moles/an pour l'ensemble des surfaces continentales, et de $19,6 \cdot 10^{12}$ moles/an pour les surfaces continentales drainées vers les océans, soit respectivement 0,26 et 0,23 GtC/an. Ces résultats sont légèrement inférieurs à ceux obtenus à partir des flux de bicarbonates d'origine atmosphérique transportés par les fleuves. On peut alors poser ici la question de l'altération des roches carbonatées par d'autres acides que l'acide carbonique, qui libérerait en solution une quantité supplémentaire d'ions bicarbonates qui ne serait pas accompagnée d'une quantité équivalente de CO_2 consommé. Dès lors les flux de CO_2 estimés sur les grands bassins fluviaux par le modèle MEGA pourraient être légèrement surestimés. Quoi qu'il en soit, les résultats obtenus sont comparables et confortent la validité des deux approches utilisées.

Les facteurs qui contrôlent la consommation de CO_2

A l'échelle des petits bassins versants monolithologiques, l'influence du drainage et de la lithologie apparaît clairement : pour un type de roche donné, plus le drainage est intense, plus la consommation de CO_2 est importante. On a ainsi pu mettre en évidence des relations linéaires simples entre le flux de CO_2 consommé et le débit pour sept principaux types de roches, en utilisant des données déjà publiées sur plus de 200 petits bassins versants monolithologiques. On a pu classer les différents types de roches par ordre croissant de consommation de CO_2 : les roches plutoniques et métamorphiques, les sables et les grès, les roches volcaniques acides, les évaporites, les basaltes, les roches détritiques argileuses, les roches carbonatées. On a alors déterminé, pour chaque type de roche, un indice de consommation de CO_2 (I_{CO_2}), qui est le rapport entre le flux consommé par l'altération d'un type de roche donné et le flux consommé par l'altération des roches plutoniques et métamorphiques (flux le plus faible). Cet indice varie de 1,6 pour les grès à 17 pour les roches carbonatées. Par ailleurs, il est deux fois plus fort pour les basaltes que pour les roches volcaniques acides. Enfin, les roches détritiques argileuses montrent le I_{CO_2} le plus élevé après les roches carbonatées.

A l'échelle des grands bassins fluviaux, l'influence de la lithologie est moins clairement exprimée et la consommation de CO_2 semble essentiellement contrôlée par le drainage : plus ce dernier augmente, plus la consommation de CO_2 est intense. Cependant, sur les bassins couverts par d'épais profils latéritiques très pauvres en minéraux altérables, la consommation de CO_2 est nettement plus faible, à débit équivalent, que sur les autres bassins.

L'influence de la lithologie apparaît également à travers deux paramètres, I_{carb} et I_{shal} , qui représentent respectivement la contribution relative du drainage des roches carbonatées et du drainage des roches détritiques argileuses au drainage total. En effet, plus I_{carb} et I_{shal} augmentent, plus le flux de CO_2 a tendance à augmenter. Cependant, cette relation n'est pas très significative, ce qui laisse penser que d'autres types de roches et/ou d'autres facteurs sont à prendre en compte.

Nous avons alors utilisé une procédure de régression multiple pour déterminer une relation entre le flux de CO_2 consommé et les principaux paramètres hydroclimatiques, biologiques et géologiques des bassins. La modélisation par régression multiple met en évidence l'influence positive de cinq paramètres qui sont, par ordre d'importance : le drainage (D , en mm), la pente des terrains (I_{pt} , en %), la proportion de surfaces cultivées (I_{c} , en %), la contribution du drainage des roches carbonatées (I_{carb} , en %) et des roches détritiques argileuses (I_{shal} , en %) au drainage total. La présence du facteur "pente" parmi les cinq variables retenues pourrait s'expliquer par l'exposition plus importante des roches à l'érosion chimique dans les zones soumises à des orogènes récentes. Par contre, le rôle des cultures dans l'intensité de la consommation de CO_2 paraît plus difficile à expliquer, sinon que, sur les surfaces cultivées, l'érosion chimique pourrait être favorisée par les acides provenant de la nitrification des engrais azotés, comme nous avons pu l'observer sur le bassin de la Garonne.

Pour finir, l'influence de la température, qui intervient théoriquement dans le contrôle des processus d'altération chimique, n'a pas pu être mise en évidence, que ce soit à l'échelle d'un bassin versant ou que ce soit à l'échelle globale, probablement parce qu'elle est liée à l'intensité du drainage.

Variabilité spatiale et transferts vers les océans

La variabilité spatiale de la consommation de CO₂ résulte de celles du drainage et de la lithologie, comme le montrent, par exemple, les simulations du modèle GEM-CO₂ sur les bassins de la Garonne, du Congo et de l'Amazonie. En effet, le flux moyen annuel de CO₂ consommé sur le bassin de la Garonne est estimé à 224.10³ moles/km².an pour un drainage de 345 mm/an, contre 65.10³ moles/km².an pour un drainage de 370 mm/an sur le bassin du Congo. Ainsi, la consommation de CO₂ sur le bassin de la Garonne, qui est essentiellement due à l'altération des roches carbonatées, est près de 3,5 fois supérieure à celle observée sur le bassin du Congo pour une intensité de drainage pratiquement identique. De la même façon, la consommation de CO₂ estimée sur le bassin de la Garonne est aussi intense que celle (271.10³ moles/km²) estimée sur le bassin de l'Amazonie pour un drainage (1125 mm/an) qui est pourtant trois fois plus fort.

Les variations spatiales de la consommation de CO₂ par érosion chimique ont été simulées à l'échelle globale par le modèle GEM-CO₂. Les principaux résultats qui se dégagent sont les suivants.

- Deux zones latitudinales sont plus particulièrement propices à la consommation de CO₂ : la zone comprise entre 0 et 10°S, qui correspond principalement à la partie sud du bassin de l'Amazonie et la zone comprise entre 30 et 40°N. Au total, la consommation de CO₂ se fait en grande partie dans l'hémisphère Nord (72 % de la consommation globale).
- Le bilan par continent montre que l'érosion chimique du continent asiatique consomme près de 38 % de la totalité du CO₂ consommé sur l'ensemble des continents, alors que le continent africain n'en consomme que 9 %. Le reste de la consommation de CO₂ se répartit entre l'altération des continents sud-américain (21 %), nord-américain (18 %), européen (8 %) et de l'Austrasie (6 %).
- En ce qui concerne les océans, l'Atlantique, Méditerranée comprise, reçoit près de la moitié des apports totaux en bicarbonates (estimés à 28.10¹² moles/an), dont 73 % de CO₂ d'origine atmosphérique. Le Pacifique et l'océan Indien arrivent en seconde et troisième positions, avec respectivement 33 % et 16 % des apports totaux en bicarbonates.

Variabilité temporelle

Variations saisonnières

Les variations saisonnières de la consommation de CO₂ ont été étudiées sur les bassins de la Garonne, du Congo et de l'Oubangui, ce qui a permis de mieux cerner les mécanismes qui contrôlent cette consommation. La contribution relative du CO₂ atmosphérique et de la dissolution des minéraux carbonatés au flux total de bicarbonates transportés par le fleuve sont des paramètres qui s'avèrent alors utiles pour distinguer les zones préférentielles de la consommation de CO₂ au cours du cycle hydrologique.

Sur un bassin carbonaté comme celui de la Garonne, la contribution de la dissolution des roches carbonatées au flux total de bicarbonates est pratiquement de 100 % en période de hautes eaux (hiver), alors que les roches carbonatées couvrent moins de 50 % de la superficie totale du bassin. Cependant, en période de basses eaux, la contribution de l'altération des silicates remonte un peu et participe à hauteur de 15 à 20 % au flux total de bicarbonates. Ces variations saisonnières peuvent être interprétées en termes de vidange de deux réservoirs distincts : (i) un réservoir profond de type nappe dont la vidange intervient en période de basses eaux, (ii) un réservoir dit "intermédiaire", situé dans des roches carbonatées et dont la vidange interviendrait essentiellement en période de hautes eaux.

Sur un bassin plutôt silicaté comme celui de l'Oubangui, la contribution du CO₂ atmosphérique au flux total de bicarbonates varie de 70 % environ en période de basses eaux, à 80 % en période de hautes eaux, ce qui est complètement différent de ce qu'on a observé sur le bassin de la Garonne. Ce constat traduit la présence d'un réservoir profond de type nappe, constitué de roches carbonatées et qui contribuerait au débit de l'Oubangui essentiellement en période de basses eaux. Le débit reste le principal facteur qui contrôle le flux de CO₂ consommé sur le bassin de l'Oubangui : les mois de basses eaux sont des mois de faible consommation de CO₂, alors que le flux de CO₂ est maximum en période de crue.

En ce qui concerne le bassin du Congo, les mécanismes réglant la consommation de CO₂ semblent plus complexes, à l'image du régime hydrologique du fleuve. La première particularité est que, pour la période

d'observation que nous avons étudiée et qui présente de faibles variations de débit d'une année sur l'autre, les flux de CO₂ évoluent en opposition de phase par rapport aux débits. En effet, les flux de CO₂ suivent les mêmes variations que les concentrations en HCO₃⁻, car ces dernières, qui sont relativement faibles, varient d'un facteur 3 au cours d'un cycle hydrologique alors que le débit n'a varié que d'un facteur 2. Cependant, ce comportement semble limité aux variations saisonnières, et le flux de CO₂ consommé annuellement reste plus ou moins constant au cours des 3 années d'observation. La contribution du CO₂ atmosphérique au flux de bicarbonates transportés par le Congo varie elle-aussi à l'opposé des fluctuations du débit. La contribution de l'altération des carbonates est ainsi plus forte en période de hautes eaux qu'en période de basses eaux.

A l'échelle globale, les variations saisonnières de la consommation de CO₂ ont été simulées par le modèle GEM-CO₂. On observe deux minima, l'un en mai et l'autre en octobre, avec un flux de CO₂ estimé à 5-5,5.10⁵ moles/s, et deux maxima, l'un en janvier et l'autre en juillet, avec des flux estimés à 8-9.10⁵ moles/s. Ces fluctuations témoignent de la forte variabilité du drainage continental, mais également de l'hétérogénéité de la distribution spatiale des différents types de roche. En effet, les flux les plus bas correspondent aux volumes d'eau écoulés les plus faibles et à une contribution du CO₂ au flux de bicarbonates de plus de 72 %, témoignant d'une altération préférentielle des roches silicatées. D'un autre côté, les flux de CO₂ les plus forts (janvier et juillet) correspondent aux écoulements les plus importants. Cependant, le flux de juillet est accompagné de la plus faible contribution du CO₂ au flux de HCO₃⁻ (63 %) observée au cours de l'année, ce qui traduit, en moyenne pour l'ensemble des continents, une altération préférentielle des roches carbonatées consommatrices de CO₂ à cette période de l'année. Dès lors, si le flux de CO₂ consommé est pratiquement aussi important en janvier qu'en juillet, c'est grâce au volume d'eau écoulé, plus fort en janvier qu'en juillet. Enfin, la consommation de CO₂ décroît rapidement de 10 % entre juillet et août, alors que l'écoulement total reste constant. Cette anomalie traduit un déplacement du drainage des régions où les affleurements de roches carbonatées (consommatrices de CO₂) dominant vers des régions où les affleurements de roches silicatées (moins consommatrices de CO₂) sont plus importants.

Variations interannuelles

Les variations interannuelles de la consommation de CO₂ ont pu être étudiées sur le bassin de la Garonne au cours de la période 1971-1991. Ces fluctuations interannuelles apparaissent comme une fonction linéaire positive du débit du fleuve. Le flux de CO₂ le plus faible est observé en 1990 (187.10³ moles/km².an) et le plus fort est observé en 1974 (535.10³ moles/km².an), soit un facteur 3 entre l'année la plus sèche et l'année la plus humide. La reconstitution des variations de la consommation moyenne annuelle de CO₂ depuis le début du siècle montre que cette consommation, tout comme le débit, a diminué en moyenne de 27 % depuis 1914.

Les perturbations naturelles et anthropogéniques

La principale perturbation de la consommation de CO₂ réside dans l'altération chimique des minéraux par d'autres acides que l'acide carbonique. En effet, l'influence de ces acides peut alors accroître les flux issus de l'altération chimique et notamment les flux de bicarbonates issus de la dissolution des minéraux carbonatés. Il faut alors prendre garde, dans l'estimation du flux de CO₂ consommé, à ne pas attribuer cet accroissement à l'attaque par l'acide carbonique. Ainsi, le modèle de décomposition des flux dissous d'éléments majeurs (MEGA) tient compte de ces éventuels apports d'acides, qui peuvent être d'origine anthropique, comme l'acide nitrique issu de la nitrification des engrais azotés ou l'acide sulfurique apporté par les précipitations acides, mais aussi d'origine naturelle, comme l'acide sulfurique issu de l'oxydation des minéraux pyriteux des roches silicatées. D'autre part, ces acides supplémentaires peuvent parfois remplacer l'acide carbonique dans l'altération des minéraux, ce qui se traduit alors par une diminution de la consommation de CO₂, comme dans le cas des précipitations acides.

Influence de la nitrification des engrais azotés. Sur le bassin de la Garonne, nous avons pu remarquer que l'altération chimique des carbonates était perturbée par les activités humaines, comme l'avaient déjà montré ETCHANU et PROBST (1988). En effet, la contribution du CO₂ atmosphérique au flux total de bicarbonates tend vers la valeur de 44 % lorsque le débit tend vers l'infini, ce qui met en évidence l'influence

de la nitrification des engrais azotés sur la dissolution des minéraux carbonatés. On calcule ainsi que 16 % en moyenne de la dissolution des minéraux carbonatés est provoquée par l'attaque des minéraux par les acides issus de la nitrification des engrais azotés.

Influence des acides organiques. L'altération chimique sur le bassin du Congo est également influencée par l'apport d'autres acides que l'acide carbonique. On calcule en effet que les acides organiques, très présents dans le bassin du Congo, provoqueraient une sous-estimation de 45 % (en moles) de la consommation de CO₂ atmosphérique par érosion chimique estimée à partir du flux de HCO₃⁻.

Influence des précipitations acides. La perte d'alcalinité dans les eaux de surface est l'une des conséquences importantes des précipitations acides, ce qui se traduit, au niveau du cycle du carbone, par une diminution de la consommation de CO₂ par érosion chimique. Cette diminution est étudiée sur deux petits bassins versants vosgiens, les bassins du Strengbach et du Ringelbach dont le substratum est granitique. Nous avons alors montré que le flux de CO₂ consommé était plus de deux fois moins fort sur le bassin du Strengbach que sur le bassin du Ringelbach. Les apports acides, qui sont plus importants sur le bassin du Strengbach que sur le bassin du Ringelbach, sont responsables de l'essentiel de cette diminution, comme l'ont montré les simulations de l'altération chimique de chacun des deux granites qui composent l'essentiel du substratum des bassins étudiés à l'aide d'un modèle d'interaction eau-roche (KINDIS) développé par MADÉ *et al.* (1990) et que nous avons utilisé dans cette étude.

Nous avons alors cherché à estimer l'influence des retombées acides sur la consommation de CO₂ à l'échelle globale. Pour cela, nous avons utilisé le modèle GEM-CO₂ développé dans cette étude. Trois situations différentes de retombées acides ont été envisagées. Les résultats de ces trois simulations montrent que l'influence des retombées acides sur la consommation de CO₂ à l'échelle globale est faible. On a pu en effet déterminer une diminution de l'ordre de 6 % du flux de CO₂ consommé sur l'ensemble des continents dans le scénario le plus pessimiste. L'influence des précipitations acides sur la consommation globale de CO₂ apparaît donc très limitée dans l'état actuel des connaissances sur l'extension géographique et sur l'intensité de ces retombées acides.

Perspectives

Cette étude aura permis de mieux cerner les processus qui contrôlent la consommation de CO₂ par l'érosion chimique des continents, d'apprécier la variabilité spatiotemporelle des flux de CO₂ consommés et d'estimer les transferts de carbone minéral dissous des continents vers les océans. On aura également pu voir qu'il est indispensable d'utiliser des approches complémentaires à différentes échelles de temps et d'espace dans l'étude de tous ces processus. En outre, le modèle prédictif qui a été développé dans cette étude est capable de simuler les flux de CO₂ consommé sur des surfaces continentales pour lesquelles on connaît la distribution spatiale de la lithologie et du drainage. Il reste cependant encore beaucoup de travail et d'ores et déjà quelques axes de recherche majeurs se dégagent de cette étude.

- 1- Nous avons maintenant une connaissance relativement précise des transferts actuels de carbone minéral dissous des continents vers les océans. L'une des prochaines étapes sera alors, grâce au modèle GEM-CO₂, d'estimer ces transferts pour les temps passés, et notamment pour les périodes glaciaires et interglaciaires du Quaternaire.
- 2- Le carbone minéral ne constitue que la moitié des apports de carbone par les fleuves aux océans. Notre étude sera ainsi complétée prochainement par un travail similaire sur les transports fluviaux de carbone organique (LUDWIG *et al.*, 1994 ; LUDWIG, en préparation).
- 3- L'étude des variations saisonnières et interannuelles qui a été réalisée sur les bassins de la Garonne, du Congo et de l'Oubangui devra être étendue à d'autres grands bassins fluviaux, sous des climats différents.
- 4- Enfin, les deux approches développées ici pourront être avantageusement complétées par une approche isotopique couplée qui apparaît prometteuse : l'utilisation des rapports isotopiques ¹²C/¹³C du carbone minéral dissous et ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr du strontium dans les eaux fluviales.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ADAMS J.M., FAURE H., FAURE-DENARD L., MC GLADE J.M. & WOODWARD F.I. (1990) – Increases in terrestrial carbon storage from the last glacial maximum to the present. *Nature*, 348, p. 711-714.
- AJTAY G.L., KETNER P. & DUVIGNEAUD P. (1979) – Terrestrial primary production and phytomass. In "The Global Carbon Cycle", B. BOLIN, E.T. DEGENS, S. KEMPE & P. KETNER (Eds), SCOPE 13, Wiley & Sons, p. 129-182.
- AL DROUBI A., VIEILLARD PH., BOURRIÉ G., FRITZ B. & TARDY Y. (1976) – Etude théorique de l'altération des plagioclases. *Sci. Géol. Bull.*, 29, (1), p. 45-62.
- AL DROUBI A., GRONDIN J.L., FRITZ B. & TARDY Y. (1978) – Calcul des équilibres dans le système $\text{CaCO}_3 - \text{H}_2\text{O} - \text{CO}_2$; rappel des conditions de dissolution et de précipitation de la calcite. *Sci. Géol. Bull.*, 31, p. 195-202.
- ALARY C. (1993) – Flux d'éléments minéraux dissous dans les eaux du bassin versant sous pelouse du Ringelbach (Vosges) – Bilan d'altération. Comparaison avec le bassin forestier du Strengbach. DEA Géosciences, Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 32 p.
- ALLAN H.D., QUAY P.D. & RICHEY J.E. (1987) – The role of gas exchange in the inorganic carbon, oxygen and ^{222}Rn budgets of the Amazon river. *Limnol. Oceanogr.*, 32, p. 235-248.
- AMIOTTE SUCHET P. (1989) – Modélisation des paléoclimats, du cycle de l'eau, de l'érosion et de la sédimentation au cours des temps phanérozoïques. Mém. de DEA, Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 28 p.
- AMIOTTE SUCHET P. & PROBST J.L. (1992) – Flux de CO_2 atmosphérique consommé par érosion chimique des continents et transfert de carbone du réservoir biosphère-sol vers les océans. 14e R.S.T., Toulouse, 13-15 avril 1992, Soc. Géol. Fr. (éd.) Paris, p. 5.
- AMIOTTE SUCHET P. & PROBST J.L. (1993a) – Flux de CO_2 atmosphérique consommé par altération chimique continentale. Influence de la nature de la roche. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 317, II, p. 615-622.
- AMIOTTE SUCHET P. & PROBST J.L. (1993b) – Modelling of atmospheric CO_2 consumption by chemical weathering of rocks : Application to the Garonne, Congo and Amazon basins. *Chemical Geology*, 107, p. 205-210.
- AMIOTTE SUCHET P. & PROBST J.L. (1995) – A global model for present-day atmospheric/soil CO_2 consumption by chemical erosion of continental rocks. *Tellus B*, 47B, p. 273-280.
- ARAIN R. (1987) – Persisting trends in carbon and mineral transport monitoring of the Indus River. In "Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers, Part 4, E.T. DEGENS, S. KEMPE & G. WEI-BIN (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 64, p. 417-421.
- B.R.G.M. (Bureau de Recherches Géologiques et Minières) (1983) – Précipitations efficaces moyennes annuelles en France (1946-1976) – carte à 1/1 500 000, Rapport BRGM 83 SGN 003 EAU, Orléans.
- B.R.G.M. (Bureau de Recherches Géologiques et Minières) (1980) – Carte géologique de la France et de la marge continentale à l'échelle de 1/1 500 000, BRGM éd., Orléans.
- B.R.G.M., Elf/RE, ESSO/REP, SNPA (1979) – Géologie du bassin d'Aquitaine, BRGM éd., Orléans.
- BAES C.F., BJÖRKSTRÖM A. & MULHOLLAND P.J. (1985) – Uptake of carbon dioxide by the oceans. In "Atmospheric Carbon Dioxide and the Global Carbon Cycle", J.R. TRABALKA (Ed.), U.S. Dept of Energy, DOE/ER-0239, Washington DC, p. 81-112.
- BARNOLA J.M., RAYNAUD D., KOROTKEVITCH Y.S. & LORIEUS C. (1987) – Vostok ice core provides 160 000 year record of atmospheric CO_2 . *Nature*, 329, p. 408-414.
- BAUMGARTNER A. & REICHEL E. (1975) – The world water balance. Mean annual global continental and maritime precipitation, evaporation and runoff. Elsevier, Amsterdam, 179 p.
- BEN BACCAR M. (1992) – Modélisation géochimique de la diagenèse minérale et de ses conséquences sur la

- porosité des réservoirs. Thèse Doct. Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 140 p.
- BERNER E.K. & BERNER R.A. (1987) – The Global Water Cycle. Geochemistry and Environment. Englewood Cliffs, New Jersey, Prentice-Hall Inc., 387 p.
- BERNER R.A. (1982) – Burial of organic carbon and pyrite sulfur in the modern ocean : Its geochemical and environmental significance. *Amer. J. Sci.*, 282, p. 451-473.
- BERNER R.A. (1991) – A model for atmospheric CO₂ over Phanerozoic time. *Amer. J. Sci.*, 291, p. 339-376.
- BERNER R.A. (1992) – Weathering, plants, and the long term carbon cycle. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 56, p. 3225-3231.
- BERNER R.A. & BARRON E.J. (1984) – Comments on the BLAG model : Factors affecting atmospheric CO₂ and temperature over the past 100 million years. *Amer. J. Sci.*, 284, p. 1183-1192.
- BERNER R.A., LASAGA A.C. & GARRELS R.M. (1983) – The carbonate-silicate geochemical cycle and its effect on atmospheric carbon dioxide over the past 100 millions years. *Amer. J. Sci.*, 283, p. 641-683.
- BIKSHAM G. & SUBRAMANIAN V. (1988) – Nature of solute transport in the Godavari basin, India. *J. Hydrology*, 103, p. 375-392.
- BINKLEY D., DRISCOLL C.T., ALLEN H. L., SCHOENEBERGER P. & MCAVOY D. (1989) – Acidic Deposition and Forest Soils. Springer Verlag, 149 p.
- BLATT H. & JONES R.L. (1975) – Proportions of exposed igneous, metamorphic and sedimentary rocks. *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 86, p. 1085-1088.
- BLUTH G.J.S. & KUMP L.R. (1994) – Lithologic and climatologic controls of rivers chemistry. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 58, 10, p. 2341-2359.
- BLUTH G.J.S. & KUMP L.R. (1991) – Phanerozoic paleogeology. *Amer. J. Sci.*, 291, p. 284-308.
- BOLIN B. (1981) – Carbon Cycle Modelling. SCOPE 16, Wiley & Sons, 390 p.
- BOLIN B. & COOK C. (1983) – The Major Biogeochemical Cycles and their Interactions. SCOPE 21, Wiley & Sons, 532 p.
- BOLIN B., DEGENS E.T., DUVIGNEAUD P. & KEMPE S. (1979) – The global biogeochemical carbon cycle. In "The Global Carbon Cycle", B. BOLIN, E.T. DEGENS, S. KEMPE & P. KETNER (Eds), SCOPE 13, Wiley & Sons, p. 1-56.
- BOLIN B., KEELING C.D., BACASTOW R.B., BJÖRKSTRÖM A. & SIEGENTHALER U. (1981) – Carbon cycle modelling. In "Carbon Cycle Modelling", B. BOLIN (Ed.), SCOPE 16, Wiley & Sons, p. 1-28.
- BOULVERT Y. & SALOMON J.N. (1988) – Sur l'existence de paléo-cryptokarsts dans le bassin de l'Oubangui. *Karstologia*, 11-12, p. 37-48.
- BOURRIÉ G. (1976) – Relations entre le pH, l'alcalinité, le pouvoir tampon et les équilibres de CO₂ dans les eaux naturelles. *Science du Sol*, 3, p. 141-159.
- BRAMRYD T. (1979) – The effects of man on the biogeochemical cycle of carbon in terrestrial ecosystems. In "The Global Carbon Cycle", B. BOLIN, E.T. DEGENS, S. KEMPE & P. KETNER (Eds), SCOPE 13, Wiley & Sons, p. 183-218.
- BRICKER O. P. & RICE K. (1993) – Acid rain. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.*, 21, p. 151-174.
- BROECKER W.S., TAKAHASHI T., SIMPSON H.J. & PENG T.H. (1979) – Fate of fossil fuel carbon dioxide and the global carbon budget. *Science*, 206, p. 409-418.
- BROWN S. & LUGO A.E. (1984) – Biomass of tropical forests : A new estimate based on forest volume. *Science*, 223, p. 1290-1293.
- BUDYKO M.I., RONOV A.B. & YANSHIN A.L. (1987) – History of the earth's atmosphere. Springer Verlag, 139 p.
- CALDEIRA K. (1991) – Continental-pelagic carbonate partitioning and the global carbonate-silicate cycle. *Geology*, 19, p. 204-206.
- CALDEIRA K. (1992) – Enhanced Cenozoic chemical weathering and the subduction of pelagic carbonate. *Nature*, 357, p. 578-581.
- CALDEIRA K. & RAMPINO M.R. (1991) – The mid-cretaceous super plume, carbon dioxide and global warming. *Geophys. Res. Letters*, 18, p. 987-990.
- CAUWET G. (1978) – Organic chemistry of sea water particulates. Concepts and developments. *Oceanol. Acta*, 1, p. 99-105.
- CERLING T.E. (1984) – The stable isotopic composition of modern soil carbonate and its relationship to climate. *Earth Planet. Sci. Letters*, 71, p. 229-240.

- CERLING T.E., SOLOMON D.K., QUADE J. & BOWMAN J.R. (1991) – On the isotopic composition of carbon in soil carbon dioxide. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 55, p. 3403-3405.
- CHAMBERLAIN T.C. (1899) – An attempt to frame a working hypothesis of the cause of glacial periods on an atmospheric basis. *J. Geology*, 7, p. 545-584, p. 667-685, p. 781-787.
- CLARKE F. (1924) – The data of geochemistry. *U.S. Geol. Surv. Bull.*, 770, 841 p.
- CONWAY T.J., TANS P., WATERMAN L.S., THONING K.W., MASARIE K.A. & GAMMON R.H. (1988) – Atmospheric carbon dioxide measurements in the remote global troposphere, 1981–1984. *Tellus*, 40B, p. 81-115.
- COPIN-MONTÉGUT C. (1993) – Alkalinity and carbon budgets in the Mediterranean sea. *Global Biogeochemical Cycles*, 7, p. 919-925.
- COSSA D. & TREMBLAY G. (1983) – Major ions composition of the St. Lawrence River : Seasonal variability and fluxes. In “Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers”, Part 2, E.T. DEGENS, S. KEMPE & H. SOLIMAN (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 55, p. 253-259.
- CRUTZEN P.J. & ANDREAE M.O. (1990) – Biomass burning in the tropics : Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. *Science*, 250, p. 1669-1678.
- DEGENS E.T. (1982) – Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers, Part 1. *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, Proc. Hamburg Symp., SCOPE/UNEP Sonderb. 52, 766 p.
- DEGENS E.T., KEMPE S. & RICHEY J.E. (1991) – Biogeochemistry of major world rivers. In “Biogeochemistry of Major World Rivers”, E.T. DEGENS, S. KEMPE & J.E. RICHEY (Eds), SCOPE 42, Wiley & Sons, p. 323-344.
- DEGENS E.T., KEMPE S. & HERRERA R. (1985) – Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers, Part 3. *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, Proc. Caracas Symp., SCOPE/UNEP Sonderb. 58, 645 p.
- DEGENS E.T., KEMPE S. & NAIDU A.S. (1988) – Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers, Lakes and Estuaries, Part 5. *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, Proc. Fairbanks Symp., SCOPE/UNEP Sonderb. 66, 422 p.
- DEGENS E.T., KEMPE S. & SOLIMAN H. (1983) – Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers, Part 2. *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, Proc. Assiut Univ. Symp., SCOPE/UNEP Sonderb. 55, 535 p.
- DEGENS E.T., KEMPE S. & WEI-BIN G. (1987) – Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers, Part 4. *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, Proc. Tianjin Symp., SCOPE/UNEP Sonderb. 64, 538 p.
- DEINES P., LANGMUIR D. & HARMON R.S. (1974) – Stable isotope ratios and the existence of a gas phase in the evolution of carbonate groundwaters. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 38, p. 1147-1154.
- DEPETRIS P.J. (1980) – Hydrochemical aspect of the Negro River, Patagonia, Argentina. *Earth Surf. Processes*, 5, p. 181-186.
- DETWILER R.P. & HALL C.A.S. (1988) – Tropical forests and the global carbon cycle. *Science*, 239, p. 42-47.
- DIANWU Z. & SEIP H.M. (1991) – Assessing effects of acid deposition in southwestern China using the MAGIC model. *Water, Air and Soil Pollution*, 60, p. 83-97.
- DREVER J.I. & ZOBRIST J. (1992) – Chemical weathering of silicate rocks as a function of elevation in the southern Swiss Alps. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 56, p. 3209-3216.
- DUBUS P. (1989) – Paramétrisation des grands bassins fluviaux du monde. Modélisation de l'érosion mécanique et de l'érosion chimique des continents. Mém. de DEA, Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 30 p.
- DUPLESSY J.C. (1972) – La géochimie des isotopes stables du carbone dans la mer. Thèse Doct. Etat, Univ. Paris VI, 196 p.
- DURAND R. (1976) – Premiers résultats sur la composition de la solution du sol en milieu crayeux. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 282, p. 1423-1426.
- DURAND R. (1978) – La pédogenèse en pays de craie dans le Nord-Est de la France. Thèse Sci. et Sci. Géol., Mém., 55, (1979), 198 p.
- EL GH'MARI A., PROBST A. & JEANNETTE D. (1993) – Estimate of mineral weathering in a granitic basin (Vosges Mountains, France). In “Biogeomon. Symposium on Ecosystem Behaviour : Evaluation of

- Integrated Monitoring in Small Catchments", Prague, J. CERNY (Ed.), Czech Geol. Surv., Prague.
- EL GH'MARI A. (en préparation) – Etude de la dynamique d'altération d'un granite soumis à des précipitations atmosphériques acides. Thèse Doct. Univ. Louis Pasteur, Strasbourg.
- ESSER G. & KOHLMAIER G.H. (1991) – Modelling terrestrial sources of nitrogen, phosphorus, sulfur and organic carbon to rivers. In "Biogeochemistry of Major World Rivers", E.T. DEGENS, S. KEMPE & J.E. RICHEY (Eds), SCOPE 42, Wiley & Sons, p. 297-322.
- ESSER G., ASELMANN I. & LIETH H. (1982) – Modelling the carbon reservoir in the system compartment "litter". In "Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers", Part 1, E.T. Degens (Ed.), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, Proc. Hamburg Symp., SCOPE/UNEP Sonderb. 52, p. 39-58.
- ETCHANCHU D. (1988) – Géochimie des eaux du bassin de la Garonne, transferts de matières dissoutes et particulaires vers l'océan Atlantique. Thèse Doct. Univ. Paul Sabatier, Toulouse, 178 p.
- ETCHANCHU D. & PROBST J.L. (1988) – Evolution of the chemical composition of the Garonne River water during the period 1971–1984. *Hydrol. Sci. J.*, Oxford, 33, 3, p. 243-256.
- ETCHETO J. & MERLIVAT L. (1988) – Satellite determination of the carbon dioxide exchange coefficient at the ocean atmosphere interface : A first step. *J. Geophys. Res.*, 93, p. 15669-15678.
- FALKOWSKI P.G. & WILSON C. (1992) – Phytoplankton productivity in the north Pacific ocean since 1900 and implications for absorption of anthropogenic CO₂. *Nature*, 358, p. 741-743.
- FAO-UNESCO (Food and Agriculture Organization – U.N. Educational, Scientific, and Cultural Organization) (1971, 1975, 1976, 1978, 1979, 1981) – Soil map of the World. Vol. I to Vol. X, UNESCO Press, Paris.
- FAURE G. (1986) – Principles of Isotope Geology. Wiley & Sons, 587 p.
- FAURE H. (1990) – Changes in the global continental reservoir of carbon. *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.* (Glob. and Planet. Change Section), 82, p. 47-52.
- FAURIE G. (1977) – Etude *in vitro* du rôle de la nitrification sur la lixiviation du calcium dans les sols calcaires. *Science du Sol*, 4, p. 204-218.
- FOLLAND C.K., KARL T. & VINNIKOV K.Y.A. (1990) – Observed climate variations and changes. In "Climate Change the IPCC Scientific Assessment", J.T. HOUGHTON, G.J. JENKINS & J.J. EPHRAUMS (Eds), Cambridge Univ. Press, p. 195-238.
- FRAKES L.A., FRANCIS J.E. & SYKTUS J.F. (1992) – Climate modes of the Phanerozoic. Cambridge Univ. Press, 274 p.
- FRANÇOIS L.M. & WALKER J.C.G. (1992) – Modelling the Phanerozoic carbon cycle and climate : Constraints from the ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr isotopic ratio of seawater. *Amer. J. Sci.*, 292, p. 81-135.
- FRANÇOIS L.M., WALKER J.C.G. & OPDYKE B.N. (1993) – The history of global weathering and the chemical evolution of the ocean-atmosphere system. In "Evolution of the Earth and Plants", T. TAKAHASHI & R. JEANLOZ (Eds), *Geophysical Monograph*, 74, IUGG vol. 14, p. 143-159.
- FRASER P.J., PEARMAN G.I. & HYSOON P. (1983) – The global distribution of atmosphere carbon dioxide : 2. A review of provisional background observations, 1978–1980. *J. Geophys. Res.*, 88, C6, p. 3591-3598.
- FRIEDLI H., LÖTSCHER H., OESCHGER H., SIEGENTHALER U. & B. STAUFFER (1986) – Ice core record of ¹³C/¹²C ratio of atmospheric CO₂ in the past two centuries. *Nature*, 324, p. 237-238.
- FRITZ B. & TARDY Y. (1973) – Etude thermodynamique du système gibbsite, quartz, kaolinite, gaz carbonique ; application à la genèse des podzols et des bauxites. *Sci. Géol. Bull.*, 26, (4), p. 339-367.
- FRITZ B. (1981) – Etude thermodynamique et modélisation des réactions hydrothermales et diagénétiques. *Sci. Géol., Mém.*, 41, 152 p.
- GALLOWAY J.N. (1989) – Atmospheric acidification : Projections for the future. *Ambio*, 18, p. 161-166.
- GALLOWAY J.N. & RHODE H. (1991) – Regional atmospheric budgets of S and N fluxes : How well can they be quantified. In "Acidic Deposition", F.T. LAST & R. WATLING (Eds), *Proc. Royal Soc. Edinburgh*, 97, p. 61-80.
- GAMMON R.H., SUNDQUIST E.T. & FRASER P.J. (1985) – History of carbon dioxide in the atmosphere. In "Atmospheric Carbon Dioxide and the Global Carbon Cycle", J.R. TRABALKA (Ed.), U.S. Dept of Energy, DOE/ER-0239, Washington DC, p. 25-62.
- GARRELS R.M. & MACKENZIE F.T. (1971) – Evolution of Sedimentary Rocks. W.W. Norton & Co. Inc., New York, 397 p.
- GARRELS R.M. & PERRY E.A. (1974) – Cycling of carbon, sulfur and oxygen through geologic time. In

- "The Sea", 5, E. GOLDBERG (Ed.), Marine Chemistry, p. 303-336.
- GENTHON C., BARNOLA J.M., RAYNAUD D., LORIS C., JOUZEL J., BARKOV N.I., KOROTKEVICH Y.S. & KOTLYAKOV U.M. (1987) – Vostok ice core : Climatic response to CO₂ and orbital forcing changes over the last climatic cycle. *Nature*, 329, p. 414-418.
- GITELSON I.I., ABROSOV N.S. & GLADYSHEV M.I. (1988) – The main hydrological and hydrobiological characteristics of the Yenissei River. In "Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers, Lakes and Estuaries", Part 5, DEGENS E.T., KEMPE S. & NAIDU A.S. (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 66, p. 43-46.
- GOLDSCHMIDT V.M. (1933) – Grundlagen der quantitativen Geochemie. *Mineral. Kristallogr. Petrogr.*, 17, p. 112-156.
- GRAS F. (1974) – Application d'une méthode expérimentale à la détermination du pH et de la solvabilité du carbonate de calcium dans les sols calcaires. *Science du Sol*, 1, p. 33-48.
- GREGOR C.B. (1968) – The rate of denudation of the continents in post-Algonkian time. *Proc. Roy. Neth. Acad. Sci.*, B, 71, p. 23-30.
- GREGOR C.B. (1985) – The mass-age distribution of Phanerozoic sediments. In "The Chronology of the Geological Record", N.J. SNELLING (Ed.), p. 284-289.
- GUNNERSON C.G. (1967) – Streamflow and quality in the Columbia river basin. *J. Sanit. Eng. Div.*, SA6, p. 1-16.
- HARMON R.S., WHITE W.B., DRAKE J.J. & HESS J.W. (1975) – Regional hydrochemistry of North American carbonate terrain. *Wat. Res. Res.*, 11, p. 963-967.
- HART F.C., KING P.H., & TCHOBANOGLIOUS G. (1964) – Predictive techniques for water quality inorganics. *J. Sanit. Eng. Div.*, 90, SA5, p. 63-64.
- HAY W.W. (1985) – Potential errors in estimates of carbonates rock accumulating through geologic time in the carbon cycle and atmospheric CO₂ : Natural variations from Archean to Present. *Geophysical Monograph*, 32, AGU, p. 573-583.
- HAY W.W., SLOAN J.L. & WOLD C.N. (1988) – Mass/age distribution and composition of sediments on ocean floor and global rate of sediment subduction. *J. Geophys. Res.*, 93, B12, p. 14933-14940.
- HENRIKSEN A. (1984) – Changes in base cation concentrations due to freshwater acidification. *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, 22, p. 692-698.
- HERCZEG A.L., SIMPSON H.J. & MAZOR E. (1993) – Transport of soluble salts in a large semiarid basin : River Murray, Australia. *J. Hydrology*, 144, p. 59-84.
- HITCHON B. & KROUSE H.R. (1972) – Hydrogeochemistry of the surface waters of the Mackenzie River drainage basin, Canada-III. Stable isotopes of oxygen, carbon and sulphur. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 36, p. 1337-1357.
- HOLLAND D.H. (1978) – The Chemistry of Atmosphere and Oceans. Wiley Intersci. Publ., Chichester, New York, 351 p.
- HOUGHTON J.T., JENKINS G.J. & EPHRAUMS J.J. (1990) – Climate Change the IPCC Scientific Assessment. Cambridge Univ. Press, 364 p.
- HOUGHTON R.A. (1991) – Tropical deforestation and atmospheric carbon dioxide. *Climatic Change*, 19, p. 99-118.
- HOUGHTON R.A., SCHLESINGER W.H., BROWN S. & RICHARDS J.F. (1985) – Carbon dioxide exchange between the atmosphere and terrestrial ecosystems. In "Atmospheric Carbon Dioxide and the Global Carbon Cycle", J.R. TRABALKA (Ed.), U.S. Dept of Energy, DOE/ER-0239, Washington DC, p. 113-140.
- HOWELL D.G. & MURRAY R.W. (1986) – A budget for continental growth and denudation. *Science*, 233, p. 446-449.
- IDSO S.B. & BRAZEL A.J. (1984) – Rising atmospheric carbon dioxide concentrations may increase streamflow. *Nature*, 312, p. 51-53.
- INSON J. & DOWNING R.A. (1964) – The groundwater component of river discharge and its relationship to hydrogeology. *J. Sanit. Eng. Div.*, 18, p. 519-541.
- JAVOY M., PINEAU F. & ALLÈGRE C.J. (1982) – Carbon geodynamic cycle. *Nature*, 300, p. 171-173.
- JENKINSON D.S., ADAMS D.E. & WILD A. (1991) – Model estimates of CO₂ emissions from soil in response to global warming. *Nature*, 351, p. 304-306.

- JOHNSON D.W. & TODD D.E. (1984) – Effects of acid irrigation on CO₂ evolution, extractable nitrogen, phosphorus, and aluminium in a deciduous forest soil. *Soil Sci. Soc. Amer. J.*, 48, p. 664-666.
- JOUZEL J., BARKOV N.I., BARNOLA J.M., BENDER M., CHAPPELLAZ J., GENTHON C., KOTLYAKOV V.M., LIPENKOV V., LORUS C., PETIT J.R., RAYNAUD D., RAISBECK G., RITZ C., SOWERS T., STIEVENARD M., YIOU F. & YIOU P. (1993) – Extending the Vostok ice core record of paleoclimate to the penultimate glacial period. *Nature*, 364, p. 407-412.
- JOUZEL J., LORUS C., PETIT J.R., GENTHON C., BARKOV N.I., KOTLYAKOV V.M. & PETROV V.M. (1987) – Vostok ice core : A continuous isotope temperature record over the last climatic cycle (160 000 years). *Nature*, 329, p. 403-408.
- KATTAN Z. (1989) – Géochimie et hydrologie des eaux fluviales des bassins de la Moselle et de la Mosig. Transports dissous et particuliers. Cycles biogéochimiques des éléments. Thèse Doct. Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 220 p.
- KEELING C.D., PIPER S.C. & HEIMANN M. (1989b) – A three dimensional model of atmospheric CO₂ transport based on observed winds : 4. Mean annual gradients and interannual variations. In “Aspects of Climate Variability in the Pacific and the Western Americas”, D.H. PETERSON (Ed.), *Geophysical Monograph*, 55, AGU, Washington, p. 305-363.
- KEELING C.D., BACASTOW R.B., CARTER A.F., PIPER S.C., WHORF T.P., HEIMANN M., MOOK W.G. & ROELOFFZEN H. (1989a) – A three dimensional model of atmospheric CO₂ transport based on observed winds : 1. Analysis of observational data. In “Aspects of Climate Variability in the Pacific and the Western Americas”, D.H. PETERSON (Ed.), *Geophysical Monograph*, 55, AGU, Washington, p. 165-236.
- KELLOGG W.W. (1983) – Feedback mechanisms in the climate system affecting future levels of carbon dioxide. *J. Geophys. Res.*, 88, C2, p. 1263-1269.
- KEMPE S. (1979) – Carbon in the freshwater cycle. In “The Global Carbon Cycle”, B. BOLIN, E.T. DEGENS, S. KEMPE & P. KETNER (Eds), SCOPE 13, Wiley & Sons, p. 317-342.
- KEMPE S. (1982) – Long-term records of CO₂ pressure fluctuations in fresh waters. In “Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers”, Part 1, E.T. DEGENS (Ed.), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 52, p. 91-332.
- KEMPE S. (1983) – Impact of Aswan high dam on water chemistry of the Nil. In “Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers”, Part 2, E.T. DEGENS, S. KEMPE & H. SOLIMAN (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 55, p. 401-423.
- KEMPE S. (1984) – Sinks of the anthropogenically enhanced carbon cycle in surface fresh water. *J. Geophys. Res.*, 89, p. 4657-4676.
- KENDALL C., MAST M.A. & RICE K.C. (1992) – Tracing watershed weathering reactions with $\delta^{13}\text{C}$. Proc. 7th Intern. Symp. Water Rock Interaction, WRI-7, Park City, Utah, USA, 13-18 July 92, Y.K. KHARAKA & A.S. MAEST (Eds), 1, p. 569-572.
- KOSTER VAN GROOS A.F. (1988) – Weathering, the carbon cycle, and the differentiation of the continental crust and mantle. *J. Geophys. Res.*, 93, p. 8952-8958.
- KUO C., LINDBERG C. & THOMSON D.J. (1990) – Coherence established between atmospheric carbon dioxide and global temperature. *Nature*, 343, p. 709-714.
- LAMBERT G. (1987) – Le gaz carbonique dans l’atmosphère. *La Recherche*, 189, p. 778-787.
- LAMBERT R. (1975) – Recherches hydrologiques dans le Sud-Est du Bassin Garonnais. Thèse Univ. Toulouse I, 1 et 2, 750 p.
- LANDMANN G. & BONNEAU M. (1995) – Forest Decline and Atmospheric Deposition Effects in the French Mountains. Springer Verlag, 461 p.
- LEAVITT S.W. (1982) – Annual volcanic carbon dioxide emission : An estimate from eruption chronologies. *Environ. Geol.*, 4, p. 15-21.
- LEDBETTER J.O. & GLOYNA E.F. (1964) – Predictive techniques for water quality inorganic. *J. Sanit. Eng. Div.*, SA1, p. 127-151.
- LELONG F., DURAND P. & DIDON J.F. (1988) – Comparaison des bilans hydrochimiques, des taux d’altération et d’acidification dans trois petits bassins versants granitiques similaires à végétation contrastée (Mont Lozère, France). *Sci. Géol., Bull*, 41, p. 263-278.
- LEPILLER M. (1980) – Contribution de l’hydrochimie à la connaissance du comportement hydrogéologique

- des massifs calcaires ; étude de quelques systèmes karstiques du massif du Semnoz et de la région d'Annecy (Haute-Savoie). Thèse 3e cycle, Univ. Grenoble, 478 p.
- LIVINGSTONE D.A. (1963) – Chemical composition of rivers and lakes. Data of geochemistry. *U.S. Geol. Surv. Prof. Paper*, 440 G, p. 1-64.
- LORIUS C., JOUZEL J., RAYNAUD D., HANSEN J. & LETREUT H. (1990) – The ice core record : Climate sensitivity and future greenhouse warming. *Nature*, 347, p. 139-145.
- LUDWIG W. (en préparation) – Erosion des continents et transports fluviaux de carbone organique vers les océans. Thèse Doct. Univ. Louis Pasteur, Strasbourg.
- LUDWIG W., KEMPE S. & PROBST J.L. (1994) – Erosion et transport de carbone organique par les grands fleuves du monde. 15e R.S.T., Nancy, 26-28 avril, Soc. Géol. Fr. (éd.) Paris, p. 27.
- MADÉ B. (1991) – Modélisation thermodynamique et cinétique des réactions géochimiques dans les interactions eau-roche. Thèse Doct. Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 308 p.
- MADÉ B., CLÉMENT A. & FRITZ B. (1990) – Modélisation cinétique et thermodynamique de l'altération : le modèle géochimique KINDIS. *C.R. Acad. Sci., Paris*, 310, p. 31-36.
- MALLOWS C.L. (1973) – Some comments on Cp. *Technometrics*, 15, p. 661-675.
- MANABE S. & WETHERALD R.T. (1980) – On the distribution of climate change resulting from an increase in CO₂ content of the atmosphere. *J. Amer. Sci.*, 37, p. 99-118.
- MARLAND G. & ROTTY R.M. (1984) – Carbon dioxide emission from fossil fuels : A procedure for estimation and results for 1950-82. *Tellus*, 36B, p. 232-261.
- MARSHALL H.G., WALKER J.C.G. & KUHN W.R. (1988) – Long-term climate change and the geochemical cycle of carbon. *J. Geophys. Res.*, 93 (D1), p. 791-801.
- MARSHALL J.D. (1992) – Climatic and oceanographic isotopic signals from the carbonate rock record and their preservation. *Geol. Mag.*, 129, p. 143-160.
- MARTINS O. (1983) – Transport of carbon in the Niger river. In "Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers", Part 2, E.T. DEGENS, S. KEMPE & H. SOLIMAN (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 55, p. 435-449.
- MCMAHON P.B., CHAPELLE F.H., FALLS W.F. & BRADLEY P.M. (1992) – Role of microbial processes in linking sandstone diagenesis with organic-rich clays. *J. Sedim. Petrol.*, 62, p. 1-10.
- MEYBECK M. (1979) – Concentrations des eaux fluviales en éléments majeurs et apports en solution aux océans. *Rev. Géol. Dyn. Géogr. Phys.*, 21, p. 215-246.
- MEYBECK M. (1981) – Pathway of major elements from land to oceans through rivers. In "River Input to the Ocean System", J.M. MARTIN, J.D. BURTON & D. EISMA (Eds), UNESCO-UNEP-SCOR Workshop, Rome, déc. 1979, p. 18-30.
- MEYBECK M. (1984) – Les fleuves et le cycle géochimique des éléments. Thèse Sci., Univ. Paris VI, 558 p.
- MEYBECK M. (1986) – Composition chimique des ruisseaux non pollués de France. *Sci. Géol. Bull.*, 39, p. 3-77.
- MEYBECK M. (1987) – Global chemical weathering of surficial rocks estimated from river dissolved loads. *Amer. J. Sci.*, 287, p. 401-428.
- MEYBECK M. (1993) – C, N, P, and S in rivers : From sources to global inputs. In "Interaction of C, N, P and S, Biogeochemical Cycles on Global Change", R. WOLLAST, F.T. MACKENZIE & L. CHOU (Eds), Springer Verlag, p. 163-193.
- MING-HUI H., STALLARD R.F. & EDMOND J.M. (1982) – Major ion chemistry of some large chinese rivers. *Nature*, 298, p. 550-553.
- MINISTÈRE DE L'ENVIRONNEMENT (1971-1989) – Annuaire de la qualité des eaux. Rivières et Canaux. Bassin Adour-Garonne.
- MIOTKE F.D. (1974) – Carbon dioxide and the soil atmosphere. *Abh. Karst-Höhlenkunde*, R. A. 9, p. 1-49.
- MITCHELL J.F.B., MANABE S., TOKIOKA T. & MILESHKO V. (1990) – Equilibrium climate change. In "Climate Change the IPCC Scientific Assessment", J.T. HOUGHTON, G.J. JENKINS & J.J. EPHRAUMS (Eds), Cambridge Univ. Press, p. 131-172.
- MOMBOISSE B. (1990) – Paramétrisation des pentes sur des grands bassins fluviaux du monde. Modélisation des transferts des différents éléments majeurs dissous, des continents vers les océans. Mém. de DEA, Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 27 p.
- MOPPER K. & DEGENS E.T. (1979) – Organic carbon in the ocean : Nature and cycling. In "The Global

- Carbon Cycle”, B. BOLIN, E.T. DEGENS, S. KEMPE & P. KETNER (Eds), SCOPE 13, Wiley & Sons, p. 293-316.
- MUNHOVEN G. & FRANÇOIS L.M. (1994) – Glacial-Interglacial Changes in Continental Weathering : Possible Implications for Atmospheric CO₂. In “Carbon Cycling in the Glacial Ocean : Constraints on the Ocean’s Role in Global Change”, R. ZAHN *et al.* (Eds), Springer Verlag, p. 39-58.
- MYERS N. (1991) – Tropical forests : Present status and future outlook. *Climatic Change*, 19, p. 3-32.
- NEFTEL A., OESCHGER H., STAFFELBACH T. & STAUFFER B. (1988) – CO₂ record in the Byrd ice core 50,000–5,000 years BP. *Nature*, 331, p. 609-611.
- NKOUNKOU R. (1989) – Hydrogéodynamique actuelle du Congo et de l’Amazone. Cycle global de l’eau et bilan de l’érosion au cours des temps phanérozoïques (derniers 600 millions d’années). Thèse Doct. Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 183 p.
- NKOUNKOU R.R. & PROBST J.L. (1987) – Hydrology and geochemistry of the Congo River system. *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 64, p. 483-508.
- NORTON S.A. & HENRIKSEN A. (1983) – The importance of CO₂ in evaluation of effects of aciditic deposition. *Vatten*, 39, p. 346-354.
- O’BRIEN B.J. (1981) – Turnover time in grassland and forest soils as indicated by radiocarbon measurements. In “Carbon Cycle Modelling”, B. BOLIN (Ed.), SCOPE 16, Wiley & Sons, p. 333-334.
- OLSON J.S., GARRELS R.M., BERNER R.A., ARMENTANO T.V., DYER M.I. & YAALON D.H. (1985) – The natural carbon cycle. In “Atmospheric Carbon Dioxide and the Global Carbon Cycle”, J.R. Trabalka (Ed.), U.S. Dept of Energy, DOE/ER-0239, Washington DC, p. 175-213.
- OLSON J.S., WATTS J.A. & ALLISON L.J. (1983) – Carbon in live vegetation of major world ecosystems. Report ORNL 5862, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge Tennessee.
- ORANGE D. (1992) – Hydroclimatologie du Fouta Djallon et dynamique actuelle d’un vieux paysage latéritique. *Sci. Géol., Mém.*, 93, 198 p.
- PACES T. (1986) – Weathering and mass balance in small drainage basins : Environmental applications in the Bohemian Massif (Central Europe). *Sci. Géol., Bull.*, 39, p. 131-150.
- PAOLINI J., HEVIA R. & HERRERA R. (1987) – Transport of carbon and minerals in the Orinoco and Caroni rivers during the years 1983–1984. In “Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers”, Part 4, E.T. DEGENS, S. KEMPE & G. WEI-BIN (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 64, p. 325-338.
- PAREDES J.F., CARVALHO V.M. & DE BRITO R.R. (1983) – Relationship between particulate organic carbon and nitrogen in estuarine mangrove area of the Bay of “Todos os Santos” (Bahia State, Brazil). In “Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers”, Part 2, E.T. Degens, S. Kempe & H. Soliman (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 55, p. 203-214.
- PEARMAN G.I., HYSON P. & FRASER P.J. (1983) – The global distribution of atmospheric carbon dioxide : 1. Aspects of observations and modeling. *J. Geophys. Res.*, 88, p. 3581-3590.
- PÉDRO G. (1966) – Essais sur la caractérisation géochimique des différents processus zonaux résultant de l’altération des roches superficielles (cycle aluminosilicique). *C.R. Acad. Sci., Paris*, 262, p. 1828-1821.
- PETERS N.E. (1984) – Evaluation of environmental factors affecting yields of major dissolved ions of streams in the United States. *U.S. Geol. Surv. Water Supply Paper*, 2228, 39 p.
- PETTINE M., LA NOCE T., PAGNOTTA R. & PUDDU A. (1985) – Organic and Trophic Load of Major Italian Rivers. In “Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers”, Part 3, *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 58, p. 417-729.
- PINET P. & SOURIAU M. (1988) – Continental erosion and large scale relief. *Tectonics*, 7, 3, p. 563-582.
- PISIAS N.G. & SHACKLETON N.J. (1984) – Modelling the global climate response to orbital forcing and atmospheric carbon dioxide changes. *Nature*, 310, p. 757-759.
- POLDERVAART A. (1955) – Chemistry of the Earth crust. In “Crust of the Earth -A symposium”. A. POLDERVAART (Ed.), *Geol. Soc. Amer. Spec. Paper*, 62, p. 119-144.
- PRENTICE K.C. & FUNG I.Y. (1990) – The sensitivity of terrestrial carbon storage to climate change. *Nature*, 346, p. 48-51.
- PROBST A., DAMBRINE E., VIVILLE D. & FRITZ B. (1990 a) – Influence of acid atmospheric inputs on surface water chemistry and mineral fluxes in a declining spruce stand within a small granitic catchment (Vosges Massif, France). *J. Hydrology*, 116, p. 101-124.

- PROBST A., FRITZ B. & STILLE P. (1992) – Consequence of acid deposition on natural weathering processes : Field studies and modelling. In “Water–Rock Interaction”, Proc. 7th Internat. Symp. on Water–Rock Interaction - WRI-7, Park City, Utah, USA, Y.K. KHARAKA & A.S. MAEST (Eds), Balkema, Rotterdam, p. 581-584.
- PROBST A., FRITZ B. & VIVILLE D. (1993) – Middle-term trends in acid precipitation, streamwater chemistry and element budgets in the Strengbach catchment (Vosges Mountains, France). In “Biogeomon. Symposium on Ecosystem Behaviour : Evaluation of Integrated Monitoring in Small Catchments”, Prague, J. CERNY (Ed.), Czech Geol. Surv., Prague.
- PROBST A., FRITZ B., AMBROISE B., VIVILLE D. (1987) – Forest influence on the surface water chemistry of granitic basins receiving acid precipitation in the Vosges Massif, France. AIHS publ. 167, Proc. Vancouver Symp., 9-22 août 1987, p. 109-120.
- PROBST A., LELONG F., VIVILLE D., DURAND P., AMBROISE B. & FRITZ B. (1995) – Comparative hydrochemical behaviour and element budgets of the Aubure (Vosges Massif) and Mont-Lozère (Massif Central) spruce forested catchments. In “Forest Decline and Atmospheric Deposition Effects in the French Mountains”, G. LANDMANN & M. BONNEAU (Eds), Springer Verlag, p. 203-225.
- PROBST A., MASSABUAU J.C., PROBST J.L. & FRITZ B. (1990 b) – Acidification des eaux de surface sous l’influence des précipitations acides : rôle de la végétation et du substratum, conséquences pour les populations de truites. Le cas des ruisseaux des Vosges. *C.R. Acad. Sci., Paris*, 311, II, p. 405-411.
- PROBST A., VIVILLE D., AMBROISE B. & FRITZ B. (1991) – Bilan hydrogéochimique d’un petit bassin versant forestier des Vosges granitiques en Alsace : le bassin amont du Strengbach à Aubure (Haut-Rhin). Rapport scientifique final de contrat programme.
- PROBST A., VIVILLE D., FRITZ B., AMBROISE B. & DAMBRINE E. (1992) – Hydrochemical budgets of a small granitic catchment : The Strengbach catchment case study (Vosges Massif, France). *Water, Air and Soil Pollution*, 62, p. 337-347.
- PROBST A., PROBST J.L., ALARY C. & AMBROISE B. (en préparation) – Seasonal mass balance, surface water chemistry and weathering processes in a small grassland catchment in the Vosges mountains. En préparation pour *J. Hydrology*.
- PROBST J.L. (1983) – Hydrologie du bassin de la Garonne, modèle de mélanges, bilans de l’érosion, exportation des phosphates et des nitrates. Thèse 3e cycle, Univ. Paul Sabatier, Toulouse, 148 p.
- PROBST J.L. (1992) – Géochimie et hydrologie de l’érosion continentale. Mécanismes, bilan global actuel et fluctuations au cours des 500 derniers millions d’années. *Sci. Géol., Mém.*, 94, 167 p.
- PROBST J.L. & AMIOTTE SUCHET P. (1992) – Fluvial suspended sediment transport and mechanical erosion in the Maghreb (North Africa). *Hydrol. Sci. J.*, 37, 6, p. 621-637.
- PROBST J.L. & BAZERBACHI A. (1986) – Transports en solution et en suspension par la Garonne supérieure. *Sci. Géol., Bull.*, 39, p. 79-98.
- PROBST J.L. & TARDY Y. (1985) – Fluctuations hydroclimatiques du Bassin d’Aquitaine au cours des 70 dernières années. *Rev. Géol. Dyn. Géogr. Phys.*, 26, p. 59-76.
- PROBST J.L. & TARDY Y. (1987) – Long range streamflow and world continental runoff fluctuations since the beginning of this century. *J. Hydrology*, 94, p. 289-311.
- PROBST J.L. & TARDY Y. (1989) – Global runoff fluctuations during the last 80 years in relation to world temperature change. *Amer. J. Sci.*, 289, p. 267-285.
- PROBST J.L., AMIOTTE SUCHET P. & TARDY Y. (1992 a) – Global continental erosion and fluctuations of atmospheric CO₂ consumed during the last 100 years. Proc. 7th Intern. Symp. W.R.I., Park City, Utah, USA, 13-18 juillet 1992, Y.T. KHARAKA & A.S. MAEST (Eds), Balkema, Rotterdam, p. 483-486.
- PROBST J.L., MORTATTI J. & TARDY Y. (1994) – Carbon river fluxes and weathering CO₂ consumption in the Congo and Amazon river basins. *Applied Geochem.*, 9, p. 1-13.
- PROBST J.L., NKOUNKOU R.R., KREMPP G., BRICQUET J.P., THIÉBAUX J.P. & OLIVRY J.C. (1992 b) – Dissolved major elements exported by the Congo and the Ubangui rivers during the period 1987–1989. *J. Hydrology*, 135, p. 237-257.
- QUNYING Z., FENG L. XUN, L. & MINGHUI H. (1987) – Major ion chemistry and fluxes of dissolved solids with rivers in southern coastal China. In “Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers”, Part 4, E.T. DEGENS, S. KEMPE & G. WEI-BIN (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 64, p. 243-249.

- RAYMO M.E. (1991) – Geochemical evidence supporting T.C. Chamberlin's theory of glaciation. *Geology*, 19, p. 344-347.
- RAYMO M.E. & RUDDIMAN W.F. (1992) – Tectonic forcing of late Cenozoic climate. *Nature*, 359, p. 177-122.
- RAYMO M.E., RUDDIMAN W.F. & FROELICH P.N. (1988) – Influence of late Cenozoic mountain building on ocean geochemical cycles. *Geology*, 16, p. 649-653.
- RAYNAUD D. & BARNOLA J.M. (1985) – An Antarctic ice core reveals atmospheric CO₂ variations over the past few centuries. *Nature*, 315, p. 309-311.
- REEDER S.W., HITCHON B. & LEVINSON A.A. (1972) – Hydrogeochemistry of the surface waters of the Mackenzie River drainage basin, Canada : I. Factors controlling inorganic composition. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 36, p. 825-865.
- REUSS J.O. & JOHNSON D.W. (1986) – Acid Deposition and the Acidification of Soils and Waters. Springer Verlag, 119 p.
- REUSS J.O., COSBY, B.J. & WRIGHT R.F. (1987) – Chemical processes governing soil and water acidification. *Nature*, 329, p. 27-32.
- REVEL J.C. (1982) – Formation des sols sur marnes. Etude d'une chronoséquence et d'une toposéquence complexe du terrefort toulousain. Thèse Sci., I.N.P., Toulouse, 250 p.
- RICHARD L. (1993) – Modélisation des signatures isotopiques dans les interactions eaux-roches. Thèse Doct. Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 92 p.
- RIND D., ROSENZWEIG C. & GOLDBERG R. (1992) – Modelling the hydrological cycle in assessments of climate change. *Nature*, 358, p. 119-122.
- RODHE H. (1989) – Acidification in a global perspective. *Ambio*, 18, p. 155-160.
- ROGERS H.H., THOMAS J.F. & BINGHAM G.E. (1983) – Response of agronomic and forest species to elevated atmospheric carbon dioxide. *Science*, 220, p. 428-429.
- RONOV A.B. (1964) – Common tendencies in the chemical evolution of the earth's crust, ocean and atmosphere. Trans. from *Geochimiya*, 8, p. 715-743.
- RONOV A.B. (1982) – The Earth's sedimentary shell (quantitative patterns of its structure, compositions and evolution), Part I+II. *Internat. Geology Rev.*, 24, 11, p. 1313-1388.
- RONOV A.B. & YAROSHEVSKIY A.A. (1976) – A new model for the chemical structure of the Earth crust. *Geochem. Internat.*, 13, p. 1761-1795.
- RONOV A.B. & YAROSHEVSKIY A.A. (1972) – Earth crust geochemistry. In "Encyclopedia of Geochemistry and Environmental Sciences", R. FAIRBRIDGE (Ed.), Reinhold Publ., N.Y., p. 243-254.
- RONOV A.B., KHAIN V.E., BALUKHOVSKY A.N. & SESLAVINSKY K.B. (1980) – Quantitative analysis of Phanerozoic sedimentation. *Sedim. Geol.*, 25, p. 311-325.
- ROOSE E. (1977) – Erosion et ruissellement en Afrique de l'Ouest ; vingt années de mesures en petites parcelles expérimentales. *Trav. Doc. ORSTOM*, Paris, 78, 108 p.
- ROTTY R.M. (1983) – Distribution of and changes in industrial carbon dioxide production. *J. Geophys. Res.*, 88, p. 1301-1308.
- ROTTY R.M. & MASTER C.D. (1985) – Carbon dioxide from fossil fuel combustion : Trends, resources and technological implications. In "Atmospheric Carbon Dioxide and the Global Carbon Cycle", J.R. TRABALKA (Ed.), U.S. Dept of Energy, DOE/ER-0239, Washington DC, p. 63-80.
- SALOMONS W. & MOOK W.G. (1986) – Isotope geochemistry of carbonates in the weathering zone. In "Handbook of Environmental Isotope Geochemistry", 2, P. FRITZ & J.C. FONTES (Eds), Elsevier, p. 239-269.
- SARMIENTO J.L. & SUNDQUIST E.T. (1992) – Revised budget for the oceanic uptake of anthropogenic carbon dioxide. *Nature*, 356, p. 589-593.
- SAS INSTITUTE INC. (1985) – User's Guide, version 5 edition. Cary, NC, USA, 738 p.
- SAVAT J. (1973) – Een morphologische en sedimentologisch-hydraulische indeling van de rivieren van het Zaire-bekken. Kath. Univ. Leuven thes., 399 p.
- SAVIN S.M. (1977) – The history of the earth's surface temperature during the past 100 million years. *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, 5, p. 319-355.
- SCHINDLER D.W. (1988) – Effects of acid rain on freshwater ecosystems. *Science*, 239, p. 149-157.
- SCHLESINGER W.L. (1990) – Greenhouse warming : Vegetation, an unlikely answer. *Nature*, 348, p. 679.

- (News and Views).
- SEMHI K., PROBST J.L., ETCHEBER H. & BAZERBACHI A. (1993) – Dissolved river transport in the Garonne basin. Seasonal and interannual variations. EUG VII, Strasbourg, Abstract suppl. 1 à *Terra Nova*, 5, p. 633.
- SIGG L., STUMM W. & BEHRA P. (1992) – Chimie des Milieux Aquatiques. Masson, Paris, 383 p.
- SIGURDSSON H. (1990) – Evidence of volcanic loading of the atmosphere and climate response. *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.* (Global Planet. Change Sect.), 89, p. 277-289.
- SINGH B.R. (1984) – Sulfate sorption by acid forest soils : 3. Desorption of sulfate from adsorbed surfaces as a function of time, desorbing ion, pH, and amount of adsorption. *Soil Sci.*, 138, p. 346-353.
- SOLOMON A.M., TRABALKA J.R., REICHLER D.E. & VOORHEES L.D. (1985) – The global carbon cycle. In “Atmospheric Carbon Dioxide and the Global Carbon Cycle”, J.R. Trabalka (Ed.), U.S. Dept of Energy, DOE/ER-0239, Washington DC, p. 1-14.
- SOLOMON D.K. & CERLING T.E. (1987) – The annual carbon dioxide cycle in a montane soil : Observations, modeling and implications for weathering. *Wat. Res. Res.*, 23, p. 2257-2265.
- STALLARD R.F. (1980) – Major element geochemistry of the Amazon River system. PhD Thesis, MIT-WHOI Joint Program in Oceanography, Cambridge MA., 362 p.
- STALLARD R.F. & EDMOND J.M. (1983) – Geochemistry of the Amazon : 2. The influence of geology and weathering environment on the dissolved load. *J. Geophys. Res.*, 88 (C14), p. 9671-9688.
- STAUDIGEL H., HART S.R., SCHMINKE H.U. & SMITH B.M. (1989) – Cretaceous ocean crust at DSDP Sites 417 and 418 : Carbon uptake from weathering versus loss by magmatic outgassing. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 53, p. 3091-3094.
- STAUDIGEL H., HART S.R., SCHMINKE H.U. & SMITH B.M. (1990) – Reply to “Global CO₂ degassing and the carbon cycle”: A comment by R.A. Berner. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 54, p. 2891.
- STEELE F.D. (1968) – Digital computer applications in chemical quality studies of surface water in a small watershed. *Int. Assoc. Hydrol. Sci. Publ.*, 80, p. 203-214.
- STUMM W. & MORGAN J.J. (1981) – Aquatic Chemistry. Wiley & Sons, 780 p.
- SUBRAMANIAN V. (1979) – Chemical and suspended sediment characteristics of rivers of India. *J. Hydrology*, 44, p. 37-55.
- SYMOENS J.J. (1968) – La minéralisation des eaux naturelles. In “Exploration hydrobiologique du bassin du lac Bangweolo et du Luapula”, 2, (1), 199 p.
- TAKAHASHI T., CIPMAN D. & VOLK T. (1983) – Geographical, seasonal and secular variations of the partial pressure of CO₂ in the surface waters of the north Atlantic ocean ; the results of the Atlantic TTO Program. Carbon Dioxide Science and Consensus Institute for Energy Analysis, Oak Ridge Associated Universities, Washington DC, p. 123-145.
- TANS P.P., CONWAY T.J. & NAKAZAWA T. (1989) – Latitudinal distribution of the sources and sinks of atmospheric carbon dioxide derived from surface observations and atmospheric transport model. *J. Geophys. Res.*, 94 (D4), p. 5151-5172.
- TANS P.P., FUNG I.Y. & TAKAHASHI T. (1990) – Observational constraints on the global atmospheric CO₂ budget. *Science*, 247, p. 1431-1438.
- TARDY Y. (1969) – Géochimie des altérations. Etude des arènes et des eaux de quelques massifs cristallins d'Europe et d'Afrique. *Mém. Serv. Carte géol. Als. Lorr.*, 31, 199 p.
- TARDY Y. (1986) – Le cycle de l'eau ; climats, paléoclimats et géochimie globale. Masson, Paris, 338 p.
- TARDY Y. (1990) – Erosion. *Encyclopedia Universalis*, 8, p. 615-627.
- TARDY Y., MORTATTI J., VICTORIA R., MARTINELLI L., RIBEIRO A., CERRI C., PICCOLO M., LEITE DE MORAES J., PROBST J.L., ANDREUX F. & VOLKOFF B. (1993) – Hydroclimatology and biogeochemistry of the Amazon : 2. Geochemical cycles. In “Geochemistry of the Earth Surface”, L.R. Kump (Ed.), *Chemical Geology*, 107, p. 411-414.
- TARDY Y., NKOUNKOU R.R. & PROBST J.L. (1989) – The global water cycle and continental erosion during Phanerozoic time (570 m.Y.). *Amer. J. Sci.*, 289, p. 455-483.
- TRABALKA J.R. (1985) – Atmospheric Carbon Dioxide and the Global Carbon Cycle. U.S. Dept of Energy, DOE/ER-0239, Washington DC, 315 p.
- U.S. GEOLOGICAL SURVEY (annuel) – Quality of surface waters of the U.S. *Geol. Surv. Water Supply Paper*.
- UNESCO (U.N. Educational, Scientific and Cultural Organization) (1977) – Atlas of World Water Balance.

- UNESCO Press, Paris.
- VEIZER J. & JANSEN S.L. (1979) – Basement and sedimentary recycling and continental evolution. *J. Geol.*, 87, p. 341-370.
- VOLK T. (1987) – Feedbacks between weathering and atmospheric CO₂ over the last 100 million years. *Amer. J. Sci.*, 287, p. 763-779.
- VOLK T. (1989) – Sensitivity of climate and atmospheric CO₂ to deep ocean and shallow ocean carbonate burial. *Nature*, 337, p. 637-640.
- WALKER J.C.G., HAYS P.B. & KASTING J.F. (1981) – A negative feedback mechanism for the long-term stabilization of Earth's surface temperature. *J. Geophys. Res.*, 86, p. 9776-9782.
- WATSON R.T., RODHE H., OESCHGER A. & SIEGENTHALER U. (1990) – Greenhouse gases and aerosols. In "Climate Change the IPCC Scientific Assessment", J.T. HOUGHTON, G.J. JENKINS & J.J. EPHRAUMS (Eds), Cambridge Univ. Press, p. 1-40.
- WEI-BIN G. (1985) – Hydrochemistry of the Yangtze River basin. In "Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers", Part 3, E.T. DEGENS, S. KEMPE & R. HERRERA (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 58, p. 539-557.
- WEI-BIN G., HUI-MIN C. & YUN-FANG H. (1983) – Carbon transport by the Yangtze (at Nanjing) and Huanghe (at Jinan) rivers, People's Republic of China. In "Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers", Part 2, E.T. DEGENS, S. KEMPE & H. SOLIMAN (Eds), *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE/UNEP Sonderb. 55, p. 459-470.
- WHITTAKER R.H. & LIKENS G.E. (1973) – Primary production : The biosphere and man. *Human Ecology*, 1, p. 357-369.
- WHITTAKER R.H. & LIKENS G.E. (1975) – The biosphere and Man. In "Primary Productivity of the Biosphere", H. LIETH & R.H. WHITTAKER (Eds), Springer Verlag, p. 305-327.
- WIGLEY T.M.L. & JONES P.D. (1985) – Influences of precipitation changes and direct CO₂ effects on streamflow. *Nature*, 314, p. 149-152.
- WILLIAMS S.N., SCHAEFFER S.J., CALVACHE M.L. & LOPEZ D. (1992) – Global carbon dioxide emission to the atmosphere by volcanoes. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 56, p. 1765-1770.
- WILLMOTT C.J. ROWE C.M. & MINTZ Y. (1985) – Climatology of the terrestrial seasonal water cycle. *J. Climatology*, 5, p. 589-606.
- WOLLAST R. & MACKENZIE F.T. (1983) – The global cycle of silica. In "Silicon Geochemistry and Biogeochemistry", S.E. ASTON (Ed.), Academic Press, London, p. 39-76.
- WOODWELL G.M., HOBBIE J.E., HOUGHTON R.A., MELLILO J.M., MOORE B., PETERSON B.J. & SHAVER G.R. (1983) – Global deforestation : Contribution to atmospheric carbon dioxide. *Science*, 222, p. 1081-1086.
- WORSLEY T.R. & KIDDER D.L. (1991) – First order coupling of paleogeography and CO₂ with global surface temperature and its latitudinal contrast. *Geology*, 19, p. 1161-1164.
- WRIGHT R.F. & HAUHS M. (1991) – Reversibility of acidification : Soils and surface waters. In "Acidic Deposition", F.T. LAST & R. WATLING (Eds), *Proc. Royal Soc. Edinburgh*, 97, p. 169-191.
- WRIGHT R.F. (1983) – Predicting acidification of North American Lakes. Acid Rain Research Report 4/1983, NIVA, Oslo, 165 p.

Annexes

Flux totaux de CO₂ consommé par érosion chimique des roches continentales,
calculés par bande de 10° de latitude et par mois

bande de latitude	surface continentale 10 ⁶ km ²	Flux total de CO ₂ consommé (10 ⁵ moles/s)												
		jan.	fév.	mar.	avr.	mai	jun.	jui.	Aou.	sept.	oct.	nov.	dec	année
90 80°	0.124	0.004	0.003	0.004	0.002	0.005	0.000	0.000	0.001	0.007	0.005	0.004	0.003	0.003
80 70°	2.248	0.058	0.049	0.046	0.052	0.084	0.009	0.000	0.003	0.084	0.121	0.070	0.048	0.052
70 60°	12.597	0.458	0.363	0.343	0.363	0.157	0.007	0.029	0.081	0.211	0.722	0.568	0.485	0.311
60 50°	14.478	0.785	0.622	0.603	0.321	0.064	0.030	0.034	0.066	0.191	0.724	0.979	0.889	0.436
50 40°	16.019	1.204	1.093	1.023	0.590	0.192	0.066	0.073	0.089	0.237	0.697	1.288	1.368	0.651
40 30°	15.716	1.285	1.110	0.788	0.441	0.569	0.759	2.756	2.049	0.950	0.239	0.604	1.064	1.037
30 20°	15.215	0.212	0.416	0.460	0.546	0.926	1.649	2.026	1.904	0.967	0.318	0.194	0.149	0.803
20 10°	11.398	0.059	0.026	0.026	0.077	0.453	1.226	1.757	1.849	1.514	0.694	0.202	0.117	0.657
10 0°	10.193	0.443	0.328	0.548	0.848	1.129	1.117	1.028	1.110	1.003	1.075	0.768	0.556	0.818
total hém. Nord	97.988	4.508	4.010	3.842	3.238	3.578	4.863	7.705	7.153	5.164	4.594	4.678	4.679	4.768
0 -10°	10.209	2.153	2.015	2.219	1.935	1.277	0.857	0.597	0.437	0.503	0.661	1.126	1.411	1.249
-10 -20°	9.541	1.472	1.271	1.003	0.277	0.122	0.159	0.092	0.063	0.034	0.082	0.547	1.077	0.509
-20 -30°	9.324	0.114	0.108	0.109	0.116	0.156	0.222	0.157	0.119	0.114	0.102	0.066	0.078	0.120
-30 -40°	4.164	0.010	0.020	0.044	0.092	0.159	0.232	0.210	0.155	0.105	0.052	0.019	0.010	0.091
-40 -50°	1.000	0.008	0.009	0.017	0.034	0.049	0.065	0.061	0.048	0.029	0.020	0.016	0.010	0.030
-50 -60°	0.238	0.002	0.002	0.004	0.007	0.010	0.012	0.012	0.008	0.004	0.002	0.003	0.001	0.006
-60 -70°	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
-70 -80°	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
-80 -90°	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
total hém. Sud	34.476	8.267	7.434	7.237	5.699	5.351	6.409	8.834	7.983	5.954	5.512	6.454	7.267	2.005
total globe	132.464	3.759	3.424	3.395	2.461	1.774	1.546	1.129	0.830	0.790	0.918	1.776	2.588	6.773

Flux totaux de bicarbonates transportés par les eaux continentales,
calculés par bande de 10° de latitude et par mois

bande de latitude	surface continentale 10 ⁶ km ²	Flux total de CO ₂ consommé (10 ⁵ moles/s)												
		jan.	fév.	mar.	avr.	mai	jun.	jui.	Aou.	sept.	oct.	nov.	dec	année
90 80°	0.124	0.009	0.006	0.008	0.004	0.009	0.000	0.000	0.001	0.013	0.009	0.008	0.006	0.006
80 70°	2.248	0.096	0.082	0.079	0.086	0.142	0.014	0.000	0.006	0.149	0.197	0.115	0.076	0.086
70 60°	12.597	0.575	0.448	0.422	0.481	0.219	0.008	0.029	0.108	0.263	0.907	0.705	0.598	0.391
60 50°	14.478	0.992	0.782	0.760	0.407	0.074	0.034	0.034	0.070	0.221	0.891	1.230	1.122	0.544
50 40°	16.019	1.868	1.696	1.612	0.961	0.321	0.103	0.102	0.123	0.384	1.146	2.009	2.126	1.023
40 30°	15.716	2.009	1.733	1.195	0.652	1.049	1.422	5.431	4.022	1.779	0.344	0.897	1.617	1.821
30 20°	15.215	0.401	0.803	0.888	1.031	1.730	2.976	3.457	3.276	1.673	0.584	0.376	0.278	1.436
20 10°	11.398	0.084	0.037	0.033	0.108	0.726	1.881	2.536	2.647	2.228	1.041	0.315	0.174	0.971
10 0°	10.193	0.505	0.381	0.660	1.045	1.342	1.251	1.173	1.340	1.237	1.393	0.976	0.659	0.983
total hém. Nord	97.988	6.538	5.967	5.658	4.775	5.612	7.690	12.763	11.593	7.948	6.513	6.631	6.655	7.261
0 -10°	10.209	2.756	2.533	2.795	2.338	1.525	1.114	0.798	0.590	0.659	0.803	1.459	1.810	1.577
-10 -20°	9.541	2.075	1.794	1.389	0.319	0.133	0.184	0.093	0.064	0.037	0.113	0.789	1.594	0.705
-20 -30°	9.324	0.123	0.115	0.117	0.118	0.161	0.224	0.158	0.120	0.116	0.108	0.069	0.083	0.124
-30 -40°	4.164	0.014	0.028	0.047	0.102	0.178	0.253	0.235	0.172	0.118	0.061	0.025	0.012	0.102
-40 -50°	1.000	0.008	0.009	0.017	0.034	0.049	0.065	0.061	0.048	0.029	0.020	0.016	0.010	0.030
-50 -60°	0.238	0.002	0.002	0.004	0.007	0.010	0.012	0.012	0.008	0.004	0.002	0.003	0.001	0.006
-60 -70°	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
-70 -80°	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
-80 -90°	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
total hém. Sud	34.476	4.977	4.481	4.368	2.920	2.056	1.852	1.357	1.002	0.963	1.106	2.361	3.510	2.544
total globe	132.464	11.515	10.448	10.026	7.694	7.668	9.541	14.120	12.595	8.911	7.619	8.992	10.165	9.805

Flux totaux mensuels de CO₂ consommé exportés hors des continents et apportés aux océans

	surface continentale drainée (10 ⁶ km ²)	Flux total de CO ₂ consommé (10 ⁵ moles/s)												
		jan.	fév.	mar.	avr.	mai	jun.	jui.	Aou.	sept.	oct.	nov.	dec	année
EXPORTATIONS HORS DES CONTINENTS														
Asie	29.68	1.733	1.684	1.549	1.564	2.077	3.233	4.813	4.227	2.779	1.794	1.562	1.527	2.330
Amérique du Nord	21.88	1.568	1.450	1.271	0.881	0.415	0.465	0.400	0.446	1.028	1.346	1.626	1.612	1.039
Amérique du Sud	17.96	1.797	1.988	1.893	1.811	1.484	1.216	0.861	0.650	0.596	0.740	1.042	1.309	1.278
Afrique	17.75	0.707	0.728	0.674	0.425	0.331	0.379	0.604	0.831	0.590	0.465	0.536	0.598	0.572
Europe	8.57	0.917	0.882	0.650	0.289	0.089	0.037	0.016	0.038	0.136	0.602	1.019	1.115	0.480
Austrasie	5.09	0.686	0.620	0.610	0.577	0.573	0.717	0.599	0.431	0.341	0.190	0.311	0.378	0.502
total continents	100.93	7.408	7.352	6.647	5.547	4.969	6.047	7.293	6.623	5.47	5.137	6.096	6.539	6.201
APPORTS AUX OCEANS														
Atlantique	60.00	3.857	3.941	3.688	3.164	2.146	1.863	1.502	1.513	1.96	2.908	3.424	3.551	2.786
Pacifique	19.77	1.974	1.926	1.863	1.693	1.971	2.658	2.596	2.466	2.229	1.736	1.78	1.755	2.054
Indien	14.45	0.937	0.854	0.585	0.448	0.693	1.372	2.776	2.229	1.021	0.146	0.215	0.470	0.982
Mer Méditerranée	6.71	0.658	0.634	0.470	0.221	0.117	0.096	0.169	0.203	0.183	0.343	0.689	0.778	0.379
total océans	100.93	7.426	7.355	6.606	5.526	4.927	5.989	7.043	6.411	5.393	5.133	6.108	6.554	6.201
Mer Caspienne	2.79	0.208	0.218	0.182	0.062	0.015	0.008	0.019	0.011	0.038	0.147	0.257	0.237	0.116

Flux totaux mensuels de HCO₃⁻ exportés hors des continents et apportés aux océans

	surface continentale drainée (10 ⁶ km ²)	Flux total de HCO ₃ ⁻ (10 ⁵ moles/s)												
		jan.	fév.	mar.	avr.	mai	jun.	jui.	Aou.	sept.	oct.	nov.	dec	année
EXPORTATIONS HORS DES CONTINENTS														
Asie	29.68	2.432	2.522	2.305	2.337	3.452	5.386	8.132	7.104	4.341	2.428	2.057	1.998	3.631
Amérique du Nord	21.88	2.249	2.085	1.868	1.357	0.653	0.746	0.631	0.679	1.593	1.971	2.345	2.310	1.536
Amérique du Sud	17.96	2.079	2.300	2.119	1.914	1.539	1.248	0.882	0.667	0.634	0.843	1.272	1.638	1.423
Afrique	17.75	1.168	1.174	1.063	0.623	0.462	0.494	0.784	1.105	0.761	0.653	0.856	0.972	0.842
Europe	8.57	1.359	1.308	0.973	0.455	0.143	0.065	0.029	0.063	0.226	0.940	1.539	1.670	0.728
Austrasie	5.09	0.935	0.859	0.857	0.804	0.788	0.957	0.802	0.588	0.495	0.281	0.444	0.523	0.693
total continents	100.93	10.222	10.248	9.185	7.49	7.037	8.896	11.26	10.206	8.05	7.116	8.513	9.111	8.853
APPORTS AUX OCEANS														
Atlantique	60.00	5.285	5.332	4.907	4.004	2.574	2.23	1.8	1.922	2.721	4.047	4.874	5.083	3.722
Pacifique	19.77	2.597	2.678	2.663	2.468	3.119	4.421	4.265	4.008	3.272	2.293	2.279	2.181	3.022
Indien	14.45	1.371	1.282	0.848	0.644	1.107	2.017	4.539	3.656	1.645	0.206	0.298	0.685	1.531
Mer Méditerranée	6.71	1.004	0.965	0.717	0.345	0.171	0.142	0.224	0.280	0.290	0.563	1.076	1.188	0.578
total océans	100.93	10.257	10.257	9.135	7.461	6.971	8.81	10.828	9.866	7.928	7.109	8.527	9.137	8.853
Mer Caspienne	2.79	0.302	0.318	0.266	0.095	0.028	0.013	0.034	0.020	0.061	0.204	0.356	0.337	0.169

Les surfaces continentales ne comprennent pas les calottes polaires du Groenland et du continent Antarctique.

Liste des figures

1	Représentation schématique du cycle du carbone	6
2	Distribution latitudinale des flux de CO ₂ échangés entre l'océan et l'atmosphère en hiver et en été	9
3	Evolution à l'échelle globale des rejets anthropiques de CO ₂ dans l'atmosphère depuis 1860	11
4	Distribution latitudinale des transferts de bicarbonates des continents vers les océans	13
5	Fluctuations de la concentration moyenne mensuelle de CO ₂ dans l'atmosphère (période 1973–1983) pour quatre observatoires différents	16
6	Evolution de la concentration de CO ₂ dans l'atmosphère au cours des 250 dernières années	17
7	Représentation schématique du modèle BLAG	20
8	Evolution du facteur f(CO ₂) contrôlant l'altération chimique des continents, en fonction de la concentration de CO ₂ dans l'atmosphère	21
9	Evolution de la température moyenne globale de l'air au cours des 100 derniers millions d'années	21
10	Variations relatives de la concentration en CO ₂ dans l'atmosphère au cours des temps phanérozoïques	22
11	Variations des concentrations de CO ₂ dans l'atmosphère et de la température de l'air au cours des 160 derniers milliers d'années	23
12	Transfert du carbone entre l'atmosphère et les océans par l'érosion chimique des continents.	25
13	Evolution de la concentration des différentes espèces carbonatées, de la totalité du carbone inorganique dissous, du calcium et de l'alcalinité, en fonction du pH	26
14	Moyennes annuelles de l'indice de saturation de la calcite et de la pression partielle de CO ₂ dans les eaux des grands fleuves	30
15	Répartition géographique des petits bassins versants monolithologiques échantillonnés par MEYBECK (1986)	38
16	Représentation graphique des modèles ajustés aux relations entre le flux de CO ₂ consommé par érosion chimique et le débit des ruisseaux pour différents types de roches	39
17	Relations entre le flux de CO ₂ consommé par érosion chimique le débit des ruisseaux pour les bassins versants sur différentes roches	40
18	Localisation des 45 grands bassins fluviaux sélectionnés pour cette étude	44
19	Distribution globale des affleurements des principaux types de roches	47
20	Distribution latitudinale des affleurements continentaux des différents types de roches	49
21	Distribution latitudinale de l'intensité du drainage et des précipitations	50
22	Distribution globale de l'intensité du drainage moyen annuel	51
23	Reconstitution des flux d'éléments majeurs issus de l'altération des différents minéraux par le modèle MEGA	54

24	Variabilité des flux de CO ₂ consommé sur les grands bassins fluviaux	56
25	Variabilité de la contribution du flux de CO ₂ consommé et du flux de bicarbonates issus de la dissolution des minéraux carbonatés des roches au flux total de bicarbonates	58
26	Relation entre le flux spécifique de CO ₂ consommé et l'intensité du drainage pour les grands bassins fluviaux du monde	59
27	Relation entre le flux spécifique de CO ₂ consommé et l'intensité du drainage des roches carbonatées et des shales	59
28	Différence relative entre le flux de CO ₂ calculé à partir du flux de bicarbonates et le flux de CO ₂ déterminé en faisant le bilan de consommation par minéral	62
29	Comparaison entre le flux dissous de silice théorique, calculé d'après le bilan par minéral avec formation de kaolinite, et le flux dissous de silice observé	62
30	Variabilité de l'indice d'altération Re sur les grands bassins fluviaux	64
31	Relation entre l'indice d'altération Re et l'altitude moyenne des grands bassins fluviaux	64
32	Relation entre l'indice d'altération Re et la température moyenne annuelle de l'air sur les grands bassins fluviaux	64
33	Evolution du coefficient de Mallow en fonction du nombre de variables introduites dans les modèles	69
34	Comparaison des flux de CO ₂ consommés et des flux de bicarbonates exportés prédits par les modèles de régressions multiples avec ceux respectivement calculés et observés sur les grands bassins fluviaux	69
35	Carte de situation du bassin de la Garonne	74
36	Relation entre la température de l'air à Toulouse et la température des eaux de la Garonne à l'exutoire du bassin pour la période 1971–1989	76
37	Variations saisonnières de la température de l'air à Toulouse et du débit de la Garonne au Mas d'Agenais (1949–1989)	76
38	Relation entre la température moyenne mensuelle de l'air à Toulouse et le débit moyen mensuel de la Garonne au Mas d'Agenais (1949–1989)	76
39	Evolution de la température moyenne de l'air à Toulouse et du débit moyen de la Garonne au Mas d'Agenais de 1952 à 1987	77
40	Répartition des années selon les principaux modes climatiques (1949–1989)	77
41	Relations entre la concentration instantanée en HCO ₃ ⁻ et le débit instantané au Mas d'Agenais pour la période 1971–1991	79
42	Evolution de la concentration en HCO ₃ ⁻ dans les eaux de la Garonne de 1971 à 1991	79
43	Relation entre la concentration instantanée en HCO ₃ ⁻ issue de l'altération des roches silicatées et le débit instantané au Mas d'Agenais	83
44	Relation entre la concentration instantanée en HCO ₃ ⁻ issue de l'altération des roches carbonatées et le débit instantané au Mas d'Agenais	83
45	Relation entre la contribution du flux de CO ₂ au flux total de bicarbonates et le débit instantané au Mas d'Agenais	84
46	Variations saisonnières moyennes de la consommation de CO ₂ sur le bassin de la Garonne	84
47	Fluctuations du flux moyen annuel de CO ₂ consommé par altération chimique des roches sur le bassin de la Garonne	87
48	Fluctuations de la consommation de CO ₂ par érosion chimique sur le bassin de la Garonne au cours des 80 dernières années	87
49	Régimes hydrologiques du Congo et de ses principaux affluents	89

50	Relation concentration en HCO_3^- -débit dans les eaux du Congo et de l'Oubangui	91
51	Variations saisonnières de la contribution du flux de CO_2 consommé au flux total de bicarbonates exportés par l'Oubangui	94
52	Variations saisonnières du flux de CO_2 consommé sur le bassin de l'Oubangui	94
53	Relation entre le flux de CO_2 consommé sur le bassin de l'Oubangui et la contribution de la dissolution des minéraux carbonatés au flux total de bicarbonates	94
54	Variations saisonnières du flux de CO_2 consommé sur le bassin du Congo	95
55	Variations saisonnières de la contribution du flux de CO_2 consommé au flux total de bicarbonates exportés par le Congo	95
56	Relation entre le flux de CO_2 consommé sur le bassin du Congo et la contribution de la dissolution des minéraux carbonatés au flux total de bicarbonates	95
57	Principales étapes de la modélisation	98
58	Carte simplifiée des principaux types de roches affleurant à la surface du bassin de la Garonne	100
59	Carte de distribution de l'intensité moyenne du drainage sur le bassin de la Garonne	100
60	Distribution spatiale de la consommation de CO_2 par érosion chimique sur le bassin de la Garonne	100
61	Carte simplifiée des principaux types de roches affleurant à la surface du bassin du Congo	102
62	Carte de distribution de l'intensité moyenne du drainage sur le bassin du Congo	102
63	Distribution spatiale de la consommation de CO_2 par érosion chimique sur le bassin du Congo	102
64	Carte simplifiée des principaux types de roches affleurant à la surface du bassin de l'Amazone	103
65	Carte de distribution de l'intensité moyenne du drainage sur le bassin de l'Amazone	103
66	Distribution spatiale de la consommation de CO_2 par érosion chimique sur le bassin de l'Amazone	103
67	Distribution globale de la consommation de CO_2 par érosion chimique des roches continentales simulée par GEM- CO_2	105
68	Variations saisonnières de la consommation de CO_2 et du drainage continental à l'échelle globale	107
69	Distribution globale de la consommation de CO_2 par érosion chimique des continents pour les mois de janvier, mai, juillet et octobre	108
70	Flux moyens annuels de CO_2 consommé sur les grands bassins fluviaux. Comparaison des flux simulés par le modèle GEM- CO_2 avec les estimations basées sur les données de terrain	109
71	Distribution latitudinale des flux moyens annuels de CO_2 consommé, de l'intensité du drainage et des affleurements de roches carbonatées	110
72	Distribution spatiotemporelle du flux spécifique de CO_2 consommé et du flux total de CO_2 consommé	111
73	Bilans comparés des éléments majeurs pour l'année hydrologique 1991 dans les bassins du Strengbach et du Ringelbach	121
74	Relation entre le flux de CO_2 consommé et le débit sur les bassins du Strengbach et du Ringelbach	122
75	Relation entre le flux de SO_4^{2-} exporté et le débit pour les bassins du Strengbach et du Ringelbach	122

76	Evolution temporelle des concentrations en HCO_3^- simulées à l'aide du modèle KIN-DIS lors de l'altération du granite des Crêtes (bassin du Ringelbach) et du granite du Brézouard (bassin du Strengbach) pour différentes solutions altérantes initiales	124
77	Dépôts moyens annuels de sulfates d'origine anthropique à la surface des continents	126
78	Diminution relative de la consommation de CO_2 pour les trois situations différentes de dépôts acides définies dans le texte par rapport à une situation non perturbée par les dépôts acides	128

Liste des tableaux

1	Taille des réservoirs et des flux dans le cycle biogéochimique global du carbone	4
1	Tableau 1 (fin)	5
2	Principales estimations de la masse de carbone contenue dans la biomasse continentale . . .	7
3	Masses et proportions de carbone minéral et organique dans les différents types de roches de la croûte terrestre, calculées dans cette étude d'après RONOV et YAROSHEVSKIY (1976) . . .	8
4	Principales estimations des flux de carbone exportés par les fleuves mondiaux vers les océans	12
5	Solubilité de l'albite et de la calcite à saturation, calculée par modélisation pour différentes températures et pour une $p\text{CO}_2$ de $10^{-2,5}$ atm	28
6	Solubilité de l'albite et de la calcite à saturation, calculée par modélisation thermodynamique pour différentes $p\text{CO}_2$ et à une température de 25°C	29
7	Caractéristiques des modèles ajustés aux relations entre le flux de CO_2 consommé par érosion chimique et le débit pour chaque type de roche	40
8	Flux moyens de CO_2 consommé par l'altération chimique des principaux types de roches affleurant à la surface du globe pour les 12 types morphoclimatiques définis par MEYBECK (1979)	42
9	Valeurs moyennes des variables hydroclimatiques et des paramètres d'état de surface des 45 grands bassins fluviaux sélectionnés pour cette étude	45
10	Description des différents paramètres d'état de surface des bassins	46
11	Proportions des affleurements des différents types de roches sur les grands bassins fluviaux . . .	48
12	Proportion des affleurements des différents types de roches à la surface des continents	49
13	Flux moyens annuels totaux d'éléments majeurs transportés en solution par les grands fleuves mondiaux	52
14	Valeurs moyennes des rapports R_{sil} et R_{pyr} pour les eaux drainant différents types de roches silicatées	56
15	Flux moyens annuels spécifiques d'ions bicarbonates totaux, de CO_2 consommé et d'ions bicarbonates issus de la dissolution des carbonates des roches transportés par les grands fleuves mondiaux	57
16	Origine minéralogique des concentrations en solution des éléments majeurs dans les eaux de l'Amazonie et bilan du CO_2 consommé	61
17	Flux moyens spécifiques annuels d'éléments majeurs en solution issus de l'altération chimique des différents minéraux et bilan du CO_2 consommé calculé selon la méthode du bilan géochimique indirect	61
18	Caractéristiques des grandes zones climatiques utilisées pour établir le bilan global des flux dissous continents-océans	64

19	Flux moyens spécifiques annuels d'ions bicarbonates, de CO ₂ consommé et de bicarbonates issus de la dissolution des minéraux carbonatés pour les différentes zones climatiques et pour l'ensemble des surfaces exoréiques	65
20	Flux moyens totaux des éléments majeurs en solution issus de l'altération chimique des différents minéraux pour chaque zone climatique et pour l'ensemble des surfaces exoréiques	66
21	Origine minéralogique des produits de l'altération chimique en % du flux total de chaque élément	67
22	Concentrations moyennes en éléments majeurs dans les eaux de pluie du bassin de la Garonne d'après ETCHANCHU (1988)	80
23	Rapports moyens R _{sil} et R _{pyr} déterminés pour les eaux drainant les différents types de roches affleurant sur le bassin de la Garonne	81
24	Equations des modèles ajustés aux relations concentrations en HCO ₃ ⁻ issues de l'altération des carbonates, concentrations en HCO ₃ ⁻ issues de l'altération des silicates et contribution %CO ₂ en fonction du débit de la Garonne	83
25	Flux moyens annuels de bicarbonates issus du CO ₂ atmosphérique et de la dissolution des minéraux carbonatés	86
26	Bilan des flux d'éléments majeurs du flux de CO ₂ consommé par minéral dissous	86
27	Rapports C _i /C _{Cl} pour chaque élément majeur dans les eaux de pluie des bassins du Congo et de l'Oubangui	91
28	Bilan de la consommation de CO ₂ sur les bassins du Congo et de l'Oubangui	92
29	Bilan des flux d'éléments majeurs libérés par l'altération des principaux types de minéraux et bilan du CO ₂ consommé	93
30	Comparaison des flux de CO ₂ simulés par GEM-CO ₂ pour chaque bassin avec différentes estimations basées sur des mesures de terrain	101
31	Bilan par continents des flux de CO ₂ consommé et des exportations annuelles de carbone minéral par les fleuves vers les océans et bilan global pour les surfaces continentales exoréiques et endoréiques	112
32	Bilan des apports annuels de carbone minéral aux océans par les fleuves	113
33	Flux moyens annuels de CO ₂ consommé et de HCO ₃ ⁻ transporté par les fleuves à l'échelle globale	113
34	Compositions chimique et minéralogique des différents granites drainés par les ruisseaux du Strengbach et du Ringelbach	120
35	Composition chimique des solutions initiales utilisées dans les différentes simulations d'altération chimique des granites des Crêtes et du Brézouard	123
36	Influence des pluies acides sur la consommation globale de CO ₂ par érosion chimique	129
37	Diminution relative de la consommation de CO ₂ à l'échelle globale pour les principaux types de roches	129

SCIENCES GÉOLOGIQUES BULLETIN ET MÉMOIRES

Directeur de la Publication : Bertrand FRITZ
Editeur : Institut de Géologie, Université Louis Pasteur de Strasbourg
et Centre de Géochimie de la Surface (CNRS)

DERNIERS MÉMOIRES PARUS

- N° 75 — **Schaaf A.** (1984) — Les Radiolaires du Crétacé inférieur et moyen : biologie et systématique.
- N° 76 — **Gueddari M.** (1984) — Géochimie et thermodynamique des évaporites continentales. Etude du Lac Natron en Tanzanie et du Chott el Jerid en Tunisie.
- N° 77 — **Lucas J. et Prévôt L.** (1985) — Phosphorites. Sixth international field-workshop and seminar on phosphorites. I.G.C.P. 156, oct.-nov. 1983.
- N° 78 — **Gauthier-Lafaye F.** (1986) — Les gisements d'uranium du Gabon et les réacteurs d'Oklo. Modèle métallogénique de gîtes à fortes teneurs du Protérozoïque inférieur.
- N° 79 — **Vallès V.** (1987) — Modélisation des transferts d'eau et de sels dans un sol argileux. Application au calcul des doses d'irrigation.
- N° 80 — **Kam M.** (1988) — Simulation physico-chimique de l'évolution hydrothermale des milieux poreux ou fissurés.
- N° 81 — **Trolard F.** (1988) — Physico-chimie des cuirasses latéritiques. Domaines de stabilité des oxydes et hydroxydes de fer et d'aluminium.
- N° 82 — **Duplay J.** (1989) — Géochimie des argiles et géothermométrie des populations minérales de particules.
- N° 83 et 84 — **Gélard J.P et Beauchamp J.** (éd.) (1989) — Colloque franco-marocain de Géologie, Strasbourg, 24-26 mai 1989. Volume I : Cycles précambriens et cycle hercynien. Cycle alpin (début). Volume II : Cycle alpin (fin). Quaternaire.
- N° 85 à 89 — **Farmer V.C. and Tardy Y.** (éd.) (1990) — Proceedings of the 9th International Clay Conference, Strasbourg, 1989. Volume I (n° 85) : Clay-organic interactions. Clay minerals in soils. Volume II (n° 86) : Surface chemistry. Structure and mixed layering of clays. Volume III (n° 87) : Geochemistry of clays. Nuclear waste disposal. Volume IV (n° 88) : Clays in sediments. Diagenesis and hydrothermalism. Volume V (n° 89) : Industrial applications of clays. Analytical techniques and teaching of clay mineralogy.
- N° 90 — **Mertz J.D.** (1991) — Rôle des structures de porosité dans des propriétés de transport. Application aux grès du Buntsandstein et du Brent (Alwyn, Mer du Nord).
- N° 91 — **Benedetti M.** (1991) — Géochimie de l'or : mécanismes de transport et de dépôt.
- N° 92 — **Proust J.N.** (1992) — Expression sédimentologique et modélisation des fluctuations glaciaires. Exemple des dépôts du Protérozoïque terminal au Mali occidental.
- N° 93 — **Orange D.** (1992) — Hydroclimatologie du Fouta Djallon et dynamique actuelle d'un vieux paysage latéritique (Afrique de l'Ouest).
- N° 94 — **Probst J.L.** (1992) — Géochimie et hydrologie de l'érosion continentale. Mécanismes, bilan global actuel et fluctuations au cours des 500 derniers millions d'années.
- N° 95 — **Travi Y.** (1993) — Hydrogéologie et hydrogéochimie des aquifères du Sénégal. Hydrogéochimie du fluor dans les eaux souterraines.
- N° 96 — **Tardy Y.** (1994) — PIRAT. Programme interdisciplinaire de recherche de biogéodynamique intertropicale périalantique.
- N° 97 — **Amiotte Suchet P.** (1995) — Cycle du carbone, érosion chimique des continents et transferts vers les océans.

Editions de l'Institut de Géologie
1, rue Blessig, 67084 STRASBOURG Cedex (France)

Dépôt légal :
2^e semestre 1995

Equipe de réalisation technique : MM. J.M. Bock (impression), A. Wendling et J.P. Schuster (assemblage, reliure)
