



Återförsurning av sjöar

Observerade och förväntade biologiska
och kemiska effekter

B. Ingvar Andersson, Hans Borg, Frida Edberg och Hans Hultberg

MILJÖANALYSDELNINGEN, Miljöeffektenheten
Kontaktperson: Ulla Bertills, Telefon: 08-698 15 02
Författarna svarar ensamma för rapportens innehåll.
Rapporten har fackgranskats.

Omslag: sjön Lysevatten, fotograf Ingvar Andersson

Elektronisk publikation laddas ner som pdf-fil från
Naturvårdsverkets bokhandel på internet
Miljöbokhandel: www.miljobokhandel.nu

ISBN 91-620-5249-7.pdf

© Naturvårdsverket 2002
Internet: www.naturvardsverket.se

Förord

Syftet med föreliggande rapport är att sammanställa och värdera effekterna av att upphöra med kalkning i försurade ytvatten med fokus på de förändringar av biologi – biologisk mångfald som kan uppkomma. Studien har föranletts av att det saknas ett ordentligt kunskapsunderlag om förändringarna när kalkning avslutas i förtid, vilket gör det svårt att bedöma vad en framtida minskning av nuvarande kalkningsverksamhet kan komma att innebära.

En minskad kalkning av försurade ytvatten aktualiserades genom den statliga utredningen om kalkningens effekter och kostnadseffektivitet (SOU 1996:53) och efterföljande propositioner till riksdagen. Den statliga utredningen konstaterade att en nedskärning till föreslagen nivå på 140 miljoner kronor skulle komma att medföra återförsurning och risker för minskad biologisk mångfald i samband med att ett visst antal ytvatten som kalkats skulle hamna utanför kalkningsprogrammet. Ett tilläggsdirektiv om att utreda nivån 80 miljoner kronor ansågs omöjligt att bedöma p.g.a. den omfattande återförsurning som skulle ha blivit resultatet av en sådan drastisk reduktion.

Kalkningen är en fråga som fortfarande engagerar allmänt inom landet och det finns en insikt om att biologisk mångfald i många vatten endast upprätthålls tack vare kalkningsåtgärder. Minskade insatser och därav orsakad återförsurning som leder till biologiska skador har svårt att accepteras, och kalkningsutredningens förslag (140 miljoner kronor) orsakade en omfattande mediadebatt och protester från bl.a. sportfiskeorganisationer, fiskevattenägare, forskare och handläggare på framförallt Länsstyrelserna.

Arbetet har genomförts med stöd från Naturvårdsverkets forskningsanslag och från Stiftelsen miljöstrategisk forskning (MISTRA).

B. Ingvar Andersson
Hans Borg
Frida Edberg
Hans Hultberg

IVL Svenska Miljöinstitutet AB, Göteborg
Institutet för Tillämpad Miljöforskning, Stockholms Universitet (ITM)
Institutet för Tillämpad Miljöforskning, Stockholms Universitet (ITM)
IVL Svenska Miljöinstitutet AB, Göteborg

Innehållsförteckning

FÖRORD	3
INNEHÅLLSFÖRTECKNING	4
SAMMANFATTNING	6
INLEDNING	9
<i>Kort historik</i>	9
GENERELLA EFFEKTER AV FÖRSURNING OCH EFFEKTER VID KALKNING AV FÖRSURADE YTVATTEN	10
<i>Försurningseffekter</i>	10
<i>Kalkningseffekter</i>	11
ÅTERFÖRSURNING AV KALKADE VATTEN	12
<i>Studier av återförsurning i sjöecosystem</i>	13
Sjön Lysevatten	14
Rävekärrens Långevatten	21
Trehörningen, Tyresta	23
Experimentell metallutlakning från sjösediment	26
<i>Andra observationer av biologiska effekter vid återförsurning</i>	28
<i>Kalkningsmetodik och återförsurning</i>	29
Direkt sjökalkning	30
Doseringskalkning i vattendrag	30
Kalkning i våtmarker och på avrinningsområdets jordar	30
<i>Återförsurning och metaller</i>	31
<i>Sammanfattande översikt av återförsurningseffekter</i>	33
Åtverknningar på den biologiska mångfalden	35
SJÖAR I RISKZONEN	37
<i>Utvecklingstrender – deposition av försurande ämnen och metaller</i>	37
Försurningsutveckling	37
Metalldepositionen	39
Försurade och kalkade sjöars pH-utveckling vid återförsurning	40
SLUTSATSER OCH REKOMMENDATIONER	42
<i>Slutsatser</i>	42
<i>Bedömningskriterier för återförsurning av kalkade vatten</i>	43
<i>Prioriterade forskningsinsatser om återförsurning</i>	44
APPENDIX: PERSPECTIVES ON REACIDIFICATION	45
PREFACE	46
SUMMARY	47
INTRODUCTION	48
SURFACE WATER ACIDITY	49
<i>Acidification effects in aquatic ecosystems</i>	49
Effects caused by pH, DOC, and Al-fractions	50
Biological responses and interaction	51
<i>Acidifying factors and processes</i>	54
“Natural” processes	54
Anthropogenic factors (acid rain and forest management)	55
LIMING AS REMEDIAL MEASURE	56

<i>Surface water liming</i>	56
Lakes	56
Wetlands.....	57
Streams	57
<i>Watershed liming</i>	58
LIMING EXPERIENCES.....	59
<i>Duration of a treatment</i>	59
<i>Physical effects</i>	60
<i>Major chemical effects</i>	60
<i>Effects on metals</i>	62
<i>Biological response patterns following liming</i>	63
Macrophytes.....	63
Phytoplankton.....	64
Zooplankton	65
Pelagic invertebrates – “active fauna”	66
Benthos.....	66
Fish.....	67
REACIDIFICATION	68
<i>Observations of reacidification effects</i>	69
<i>General Water chemistry</i>	69
<i>Metals</i>	71
<i>Biological effects</i>	73
Plankton.....	73
Macrophytes	74
Benthos and “active fauna”	75
Fish.....	76
EXPECTED EFFECTS OF REACIDIFICATION	77
<i>Reacidification effects on ecosystem structure and biological interactions</i>	77
Lakes	77
Streams	80
<i>Effects related to toxicity of metals</i>	81
Aluminium	81
Cadmium	81
Lead.....	82
Copper.....	83
Mercury	83
Manganese.....	85
Cobalt.....	85
<i>Evidence / risks for increased metal concentrations during reacidification</i>	85
CURRENT TRENDS RELATED TO LAKES AT RISK FOR REACIDIFICATION.....	87
<i>Acid deposition</i>	87
<i>Metal deposition</i>	87
SYNTESIS AND CONCLUSIONS	88
<i>Number of lakes at risk</i>	89
<i>Conclusions</i>	90
LITTERATUR.....	92

Från projektområdet
Försurande ämnen och marknära ozon
har följande rapporter publicerats:

Marknära ozon – ett hot mot växterna
Redaktör: Håkan Pleijel
Naturvårdsverkets rapport 4969
Engelsk version
Ground-Level Ozone – A Threat to Vegetation
Swedish Environmental Protection Agency Report 4970

Naturens återhämtning från försurning
Redaktörer: Per Warfvinge och Ulla Bertills
Naturvårdsverkets rapport 5028
Engelsk version
Recovery from Acidification in the Natural Environment
– Present Knowledge and Future Scenarios
Swedish Environmental Protection Agency Report 5034

Effekter av kvävenedfall på skogsekosystem
Redaktörer: Ulla Bertills och Torgny Näsholm
Naturvårdsverket rapport 5066
Engelsk version
Effects of Nitrogen Deposition on Forest Ecosystems
Swedish Environmental Protection Agency Report 5067

Vad händer när kalkade sjöar återförsuras?
– En kunskapsöversikt och riskanalys
Författare: Espen Lydersen och Stefan Löfgren
Naturvårdsverket rapport 5074

Deposition of Base Cations in Sweden
Författare: Gun Lövblad, Christer Persson och Elisabet Roos
Swedish Environmental Protection Agency Report 5119

Naturligt sura och försurade vatten i Norrland
Författare: Hjalmar Laudon, Olle Westling,
Antonio B.S. Poléo & Leif Asbjørn Wøllestad
Naturvårdsverket rapport 5144

Skogabyförsöket
– Effekter av långvarig kväve- och svaveltillförsel till ett skogssekosystem
Redaktörer: Tryggve Persson och Lars-Owe Nilsson
Naturvårdsverket rapport 5173

Kritisk belastning för svavel och kväve
Redaktörer: Ulla Bertills och Gun Lövblad
Naturvårdsverket rapport 5174

Sammanfattning

Denna rapport är en översiktlig genomgång av de idag tillgängliga, delvis publicerade, experimentella erfarenheterna av kemiska och biologiska effekter vid återförsurning i ytvatten där kalkning avbrutits. Sammanställningen har genomförts i avsikt att bredda kunskapsunderlaget för diskussioner om tänkbara effekter i samband med att kalkningen upphör i vissa ytvatten. Som bakgrundsdokument är dessutom en litteraturöversikt bifogad, vilken även inkluderar övrig litteratur rörande försurning - kalkning som kan anses ha en viss allmän relevans för kunskapsläget avseende återförsurning av kalkade vatten (se Appendix).

Resultatet från hittills genomförda fältstudier av återförsurning, endast tre stycken av någon större omfattning i Sverige, visade att stora förändringar inträdde snabbt. Utvecklingen gick mot förhållanden liknande de i det sura tillståndet, med både negativ utveckling av ekosystemet och en påtaglig haltökning av aluminium m.fl. metaller i vattnet. Experimentell försurning av vattnet över sedimentproppar visade att tidigare deponerade metaller kan lösas ut från sedimenten. De hittills genomförda återförsurningsstudierna utfördes mestadels i gravt försurningsskadade sjöar, i ett fall också efter relativt kortvarig kalkning, och kan därför vara ett otillräckligt underlag för att kunna generalisera de effekter som kan uppstå vid återförsurning av kalkade sjöar. Många av de observerade biologiska förändringarna sammanfaller med vad som generellt observerats i samband med försurning av sjöar men vissa biologiska förändringar var dock avvikande och i några fall av delvis oväntad natur. Omfattningen och hastigheten i de senare fallen indikerade att de aktuella organismsamhällena saknade vissa reglerande mekanismer (interaktioner) och därför genomgick en utveckling präglad av instabilitet under återförsurningen.

Det sura svavelnedfallet har minskat med ca. 60 % sedan 70-talet vilket medfört en proportionell återhämtning av vattenkemi och även biota i vissa ytvatten inom regioner som haft kortvarigt eller litet överskridande av den kritiska försurningsbelastningen (ringa markförsurning). Däremot har den minskade belastningen på ytvattnen hittills resulterat i små positiva förändringar inom de mest försurade områdena i södra Sverige. Trots en halvering av sulfathalt och surhet i många sjöar och vattendrag, har få biologiska förändringar observerats, då pH värden <5 och toxiska aluminiumhalter fortfarande medför negativa effekter på de flesta känsliga organismer. Modellsimuleringar har visat att återhämtningen inom sådana områden kommer att ta mycket lång tid (10- tals till kanske 100 år) eftersom försurningen av marken varit omfattande. Inom dessa områden, med en låg kritisk belastningsgräns, krävs ytterligare reduktion av belastningen samt i vissa fall t.o.m. kompletterande åtgärder som markkalkning. Även depositionen av flera tungmetaller har minskat kraftigt under de senaste decennierna, särskilt den långdistanstransporterade andelen, men hur stora förändringar detta medfört på ytvattens innehåll av tungmetaller är i dagsläget osäkert, eftersom längre tidsserier från skogssjöar saknas inom miljöövervakningen.

Av de kalkade sjöarna i Sverige, ca. 7500 st, beräknas mer än 1700 sjöar kunna få pH-värden under 5,4 och förlora alkaliniteten om kalkningar upphör i nuläget. De flesta sjöarna som kan komma att återförsuras till pH-värden under 5,4 är belägna inom de områden i sydvästra Sverige som är mest försurningsskadade. Stoppad kalkning i dessa sjöar skulle medföra långtgående återförsurning inom en tidsrymd av ca. 2 - 3 gånger den teoretiska omsättningstiden, för många sjöar motsvarande 3 till 9 år. Sannolikt skulle många av de effekter som observerats i de här genomgångna återförsurningsstudierna uppstå. Även sjöar som skulle återförsuras till pH-värden mellan 5,4 och 6,0 kan riskera att få skador på populationer av känsligare arter. Drygt 4000 sjöar skulle få pH-värden under 6,0 vid en

stoppad kalkning. I sjöar med från början måttlig försurning kan en återförsurning förväntas resultera i tämligen marginella eller inga effekter med hänsyn till minskad försurningsbelastning och ringa markförsurning. Denna grupp omfattar en del av de ca. 3500 sjöar som åtminstone på längre sikt inte skulle riskera att få pH-värden <6,0 vid en stoppad kalkning. I de flesta sådana fall skulle endast de allra känsligaste arternas populationer riskera att påverkas

Surstötter, d.v.s. episodisk tillförsel av markant surare vatten i samband med kraftiga regn, snösmältning eller efter längre torrperioder, utgjorde i försurningens inledningsskede en viktig faktor för uppkomsten av biologiska skador eftersom särskilt höga halter av toxiskt oorganiskt aluminium förekom i sådana situationer. Sannolikt kan surstöterna utgöra ett betydande problem även under återhämtningsfasen, då risk föreligger för fortsatta utflödena av höga aluminiumhalter i många sjöar och framförallt vattendrag inom de områden där markförsurningen kvarstår länge varvid en positiv biologisk utveckling kommer att motverkas. Problemet kan även fortsättningsvis uppträda inom vissa nordligare lågbelastade regioner där främst hydrologiska faktorer samt kraftiga utflöden av organiska syror bidrar till uppkomsten av surstötter med inflöden av förhöjda halter av aluminium. Högre halter av komplexbildande organiska anjoner kan dock i sådana fall bidra till en lägre toxisk effekt.

I denna rapport föreslås en översyn av kalkningsverksamheten, liksom rekommendationer av urvalskriterier för olika ytvatten om det blir aktuellt med åtgärder som medför en minskad kalkning. Slutligen föreslås forskningsinsatser för att belysa en del av de oklarheter som för närvarande råder om effekterna i samband med återförsurning.

INLEDNING

Försurningen kom under början av 1970-talet att framstå som det största enskilda miljöhotet i Sverige, främst genom omfattande påverkan av känsliga ytvatten men även för risker av mer allmänna effekter inom terrestra ekosystem samt korrosionsproblem (jfr Odén, 1968). Påverkan på ytvattnen innebar bl.a. förluster av fisk och andra organismer, och då dessa blev mer allmänt kända restes krav på olika former av motåtgärder. Därefter har under tre decennier försurningen varit en av de stora miljöfrågorna på dagordningen. Omfattande och långtgående motåtgärder har vidtagits, bland vilka den storskaliga kalkningen av försurade ytvatten utgör en högst påtaglig del. Kalkningsverksamheten har engagerat allmänhet och specifikt berörda intresseorganisationer, bl.a. inom sportfisket, vilka ofta har krävt mer insatser och längre gående åtgärder.

I samband med Kalkningsutredningen (SOU 1996:53) aktualiserades för första gången frågan om en mer generell återförsurning. I en nyligen genomförd översyn av verksamheten (nationell kalkningsplan, Naturvårdsverket 1999) förordas ett alternativ som innebär att kalkningar i fortsättningen sker som en åtgärd bekostad till 100 % av staten. Detta alternativ innebär också, trots utökad total statlig finansiering, att ett antal nu kalkade sjöar riskerar att drabbas av återförsurning då de ej prioriterats och utsikterna för en alternativ finansiering i de flesta fall är små. Det finns alltså skäl att närmare utvärdera specifika effekter och den mer generella betydelsen av att kalkade vatten drabbas av återförsurning.

Underlaget för bedömning av olika effekter på ytvattens ekosystem i samband med återförsurning utgörs i denna rapport, dels av en litteratursammanställning (se Appendix) och dels en genomgång av återförsurningsexperimenten i Råvekärrens Långevatten, Lysevatten och Trehörningen, samt laboratorieförsök med sediment. Slutsatserna från dessa fullskaleexperiment sammanvägs med data för kalkade sjöars pH-status före åtgärd (riksinventeringen 1990) och den senaste utvecklingen av depositionen av försurande ämnen och metaller för att belysa omfattningen och effekterna av den återförsurning som kan förväntas. Utifrån dessa perspektiv ges ett antal rekommendationer om kalkningsstrategier för att i möjligaste mån undvika skador till följd av återförsurning samt förslag på ytterligare forskning om effekter i samband med återförsurning i syfte att förbättra nuvarande kunskapsunderlag.

Kort historik

De omfattande skadorna inom ytvattens ekosystem som orsakas av försurningen (jfr Appendix) framstod redan i början på 1970-talet som ett stort hot mot många unika fiskstammar och övriga känsliga organismer. Kalkning, d.v.s. neutralisation av det sura vattnet i en sjö eller ett vattendrag, hade med goda resultat tidigare praktiserats av bl.a. sportfiskeklubbar och sågs därför som en framkomlig väg att mildra de negativa effekterna som försurningen medförde. Vidare sågs kalkningen som en nödvändig förutsättning för att möjliggöra ett ”återställande” av redan gravt skadade ekosystem (jfr. Andersson *et al.*, 1975). Pågående forskning om kalkningens effekter kring mitten av 70-talet visade också genomgående mycket positiva resultat och en försöksverksamhet med statliga medel (10 miljoner årligen) startades 1977. Efter den första större utvärderingen av försöksverksamheten övergick denna 1981/82 i det nationella kalkningsprogrammet som successivt har utvidgats till en årlig omfattning av nära 200 miljoner inklusive intressenters bidrag. Kopplat till

verksamheten har funnits ett begränsat effektövervakningsprogram samt en begränsad forskning. I dagsläget har kalkningarna totalt omfattat ca. 7500 sjöar, varav ca. 6500 kalkas kontinuerligt, och berört i storleksordningen 11000 till 12000 km rinnande vatten. Fram till i dag har vi kalkat ca. 35 - 40 % av de försurningspåverkade sjöarna (areellt dock utgörande en andel av drygt 50 %), medan fortfarande den största andelen av de försurade småvattendragen (totalt i storleksordningen 120000 km) är obehandlade.

Återförsurning av kalkade sjöar har tidigare förekommit inom ramen för kalkningsverksamheten men då setts som ett problem orsakat av brister i den kalkningsstrategi som tillämpats. En mer generell dokumentation av effekterna i samband med denna typ av återförsurning saknas dock. Nuvarande kunskapsläge härrör från ett fåtal experiment som direkt inriktats mot återförsurning, samt från noggranna studier bedrivna i sjöar som engångskalkats, d.v.s. kalkats med en större dos och därefter "lämnats" utan fortsatta åtgärder. Ett vidare perspektiv på möjliga effekter av en omfattande avsiktlig återförsurning av vissa kalkade vatten kan möjligen erhållas genom utvärdering av effekterna av kalkning av försurade ytvatten, genom att återförsurningen helt enkelt antas i stort sett reversera den utveckling som följt på kalkningen.

GENERELLA EFFEKTER AV FÖRSURNING OCH EFFEKTER VID KALKNING AV FÖRSURADE YTVATTEN

Försurningseffekter

Sedan försurningen uppmärksammades som ett stort miljöhot och kalkning startades som en direkt motåtgärd för ytvatten, har tusentals publikationer behandlat effekter på ekosystemen av både försurningen och kalkningen (jfr Cowling och Nilsson, 1995; Appendix). 1981 kom en första större sammanställning av resultaten inom ramen för den svenska försöksverksamheten med kalkning (Fiskeristyrelsen och SNV, 1981), medan den senaste sammanställningen och utvärderingen av denna verksamhet (Henrikson och Brodin, 1995) i huvudsak är baserad på nära 20 år av storskalig svensk kalkningsverksamhet.

Den stora och mest påtagliga effekten av försurningen är skadade och i värsta fall totalt utslagna bestånd av olika fiskarter (Hultberg och Stenson, 1970; Jensen och Snekvik, 1972; Almer *et al.*, 1974; Grahn *et al.*, 1974). Dessa förändringar leder i sin tur, tillsammans med direkta effekter av lågt pH och toxiska aluminiumhalter, till genomgripande förändringar inom lägre trofnivåer (jfr. Stenson, 1985; Carpenter och Kitchell, 1993). Omfattningen av effekterna är beroende av såväl försurningens intensitet och varaktighet som specifika karakteristika för vattnet, dess avrinningsområde och det ursprungliga ekosystemet. Oavsett initialförhållanden har slutstadiet i områden med gravt försurningsskadade ytvatten oftast blivit fisktomma sjöar och vattendrag, med en mycket annorlunda artsammansättning men samtidigt också färre arter, vilket generellt kan ses som en långtgående utarmning av artdiversiteten inom både fauna och flora (t.ex. Stenson *et al.*, 1993; Appelberg *et al.*, 1993; Herrmann *et al.*, 1993).

Grahn *et al.* (1974) framlade en hypotes om att försurningen medförde en oligotrofiering, d.v.s. minskning av produktion och näringsomsättning, inom ekosystemet. Detta har ifrågasatts utifrån experiment med försurning av en sjö (Schindler, 1980), men observationer har dock visat att försurningen medför en minskad omsättning av grövre organiskt material (jfr Andersson, 1985; Stenson, 1985; Henrikson, 1996). Detta tillsammans

med artutarmning och övriga förändringar som expansion av vitmossa och filtartade trådalgsstrukturer (Grahn, 1985; Andersson, 1985) medför i många försurade vatten en långsammare nedbrytning och minskat återflöde av framförallt fosfor, som är det viktigaste begränsande näringsämnet (jfr. Dillon *et al.*, 1979; Blomqvist *et al.*, 1993). Ytterligare bidrag till de sjöinterna förändringarna utgör den minskning i tillförseln av fosfor från tillrinningsområdets starkt försurade jordar som Persson och Broberg (1985) observerade i Gårdsjön (SV Sverige). Även detta har dock ifrågasatts (jfr. Olsson och Petterson, 1993) varför frågan om försurningens inverkan på tillförsel/omsättning av närsalter och totalproduktionen i olika ytvatten behöver belysas ytterligare. Schindler (1999) anser att försurningen av sjöekosystemen innebär en generell minskning av diversitet (struktur) och produktion (funktion) enligt.

Kalkningseffekter

Kalkningen har visats fungera i huvudsak tillfredsställande och effekterna är i allt väsentligt mycket positiva (t.ex. Johansson och Nyberg, 1981; Hultberg och Andersson, 1982; Henrikson och Brodin, 1995). Den förväntade återhämtningen har dock inte alltid blivit den avsedda, vilket har både kemiska och biologiska orsaker. Variationen i alkalinitet och kalciumhalt är större (den intermittenta tillförseln av kalk) än under naturliga förhållanden, och ibland uppnås väsentligt avvikande höga värden (t.ex. Hasselrot *et al.*, 1984; Hultberg och Nyström, 1988; Wilander *et al.*, 1995). Vid en normal sjökalkning kvarstår dessutom en inte obetydlig påverkan genom tillförseln av surt, aluminiumhaltigt vatten från avrinningsområdets sura jordar. Detta innebär, inom sjöarnas strandzoner och särskilt i rinnande vatten, en fortsatt försurningsstress på främst mycket känsliga arter.

Beroende på när i försurningsförloppet en kalkning sätts in kommer utgångsläget för en ”återställande” utveckling att variera. I mindre starkt försurningspåverkade system kan stora delar av den ursprungliga artstrukturen vara kvar och kalkningspåverkan resulterar endast i smärre förändringar och ekosystemet kan snabbt återhämta sig. I de gravt försurningsskadade systemen kan däremot förändringarna efter en kalkning åter bli mycket genomgripande (jfr. Appelberg, 1995), och det kan krävas decennier innan flertalet arter adapterade till den nyskapade miljön har återinvandrat. Avstånd till spridningskällor liksom olika organismers förmåga till spridning inverkar på förloppet, och i vissa fall kan förekomst av fysiska hinder (t.ex. dammar eller naturliga barriärer) försvåra eller helt förhindra ffa. uppströmsspridning av många organismer. Vidare torde artinteraktioner som konkurrens och predation ibland försvåra eller förhindra en återinvandring/etablering av livskraftiga populationer.

I samband med kalkning ökar andelen effektiva littorala fragmenterare vilket ger en ökad tillförsel av framförallt fosfor. Men, vid sjökalkning påverkas inte den minskade tillförseln av fosfor från tillrinningsområdets starkt försurade jordar (Persson och Broberg, 1985) vilket leder till att sjöarna inom de mest försurade områdena förblir oligotrofierade. Omedelbart efter kalkning av en starkt försurad sjö sker dock en snabb nedbrytning av upplagrat grövre organiskt material (Hultberg och Andersson, 1982; Grahn och Sangfors, 1988; jfr. Larsson 1995), vilket kan ge en kortare period av högre produktion, oftast mest markant inom planktonsamhället, då det sjöinterna utbudet av fosfor tillfälligt ökar (t.ex. Eriksson *et al.*, 1983; Hasselrot *et al.*, 1984). Inom några få år återgår dock produktionen till en nivå som sannolikt i huvudsak bestäms av den externa fosfortillförseln (Larsson 1995) även om en successivt ökad biodiversitet också bidrar till en funktionell anpassning på olika

trofinivåer. Observationer har visat att även långvarigt kalkade sjöar generellt var mindre produktiva än jämförbara cirkumneutrala sjöar (jfr. Appelberg, 1995).

Ännu efter flera decennier av kalkning kan tidigare dominantarter av t.ex. växtplankton saknas (Hörnström et al., 1993; Andersson och Hultberg, 1997; Hörnström, 1999). Plankton sprids i huvudsak lätt, men etablering/återkolonisation kan försvåras eller förhindras p.g.a. smärre avvikelser i fysikalisk-kemiska förhållanden jämfört med före försurningen dessutom kan förändrade interaktionsmönster till följd av den avvikande artsammansättningen bidra. I sammanhanget förtjänar också att påpekas att ytvatten är dynamiska system med en naturlig mellanårsvariation och kontinuerlig "omsättning" av viss del av förekommande arter. Stora problem p.g.a. olika fysiska hinder (Bergquist, 1995) medför att tidigare förekommande arter, t.ex. snäckor och musslor, större kräftdjur samt många fiskar, inte kan återkolonisera vissa kalkade ytvatten. Dessutom kan försurningen lokalt/regionalt ha slagit ut vissa arter varför spridning från mer avlägsna källor kan bli betydligt mer tidskrävande, en faktor som framför allt torde vara betydelsefull för arter som är mer sällsynta eller har specifika krav. Åtgärder som undanröjning av vandringshinder måste ibland tillgripas och som en sista utväg kan t.o.m. direkta inplanteringar behöva utföras.

Förhindrad återkolonisation kan leda till ett ekosystem i det kalkade vattnet som saknar eller har förändrade interaktioner. Efter kalkning riskeras framförallt en mer genomgripande förändring av ekosystemet om fiskfaunan inte blir "komplett" eftersom fiskpopulationerna utgör en viktig reglerande faktor som påverkar samtliga trofinivåer i ekosystemet (jfr Stenson, 1985; Stenson *et al.*, 1993; Nyberg, 1998). Därvid finns en risk för ökad instabilitet, medförande ökad känslighet vid påverkan vilket i värsta fall kan leda till snabba och oönskade förändringar vid förnyad stress som t.ex. vid en kraftigare återförsurning (jfr. Alenäs *et al.*, 1991).

Låg strukturell stabilitet (jfr Havens och Carlsson, 1998), som vanligen uppstått inom starkt försurade sjöecosystem, har ibland under en inledningsperiod efter kalkningen resulterat i algbloomningar av "udda arter" (Alenäs, 1986; Larsson, 1988). Inom några år inträder vanligen den successiva förändring av systemet som leder till ökande artantal varvid tidigare försurningsgynnade arter ersätts av arter bättre anpassade till de högre värden på pH och kalcium och det komplexa nät av interaktioner som skapas i en sådan miljö. Trots ibland mycket utdragna återhämtningsförlopp, resulterar ändå utvecklingen så småningom i ett ekosystem med en struktur och med funktioner som kan antas vara liknande (ekvivalenta med) de som förekom innan försurningen påverkade systemet. (t.ex. Hultberg och Andersson, 1982; Eriksson *et al.*, 1983; Hörnström et al., 1993; Henrikson och Brodin, 1995; Lingdell och Engblom, 1995).

ÅTERFÖRSURNING AV KALKADE VATTEN

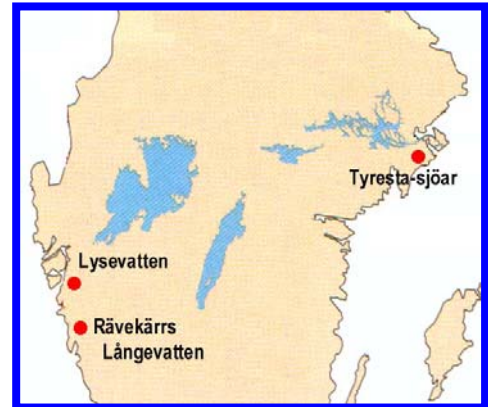
Återförsurning definieras här som en minskad alkalinitet och sänkt pH-värde, med sekundäreffekter såsom ökad halt av toxiskt aluminium, till följd av ett avsiktligt upphörande eller minskning av pågående kalkning. Ett riskscenario som kan aktualiseras via generella nedskärningar av statsbidraget till kalkningsåtgärder eller förändringar av kriterierna för kalkningåtgärder eller kalkningsobjekten. En sådan utveckling måste med nödvändighet också kopplas till någon form av urvalprocess för att definiera objekt baserat på olika karakteristika. Processen kan ske antingen passivt (icke klassificerade sjöar återförsuras) eller aktivt (i kalkningsobjekt uppfyllande vissa kriterier kan kalkning upphöra eftersom "återförsurningen" inte ger några eller endast resulterar i acceptabla skador/förändringar). Beroende på val av

kriterier respektive urvalsprinciper riskerar ett större eller mindre antal av de ca. 6500 regelbundet kalkade objekten att utsättas för en återförsurning som kan komma att resultera i en rad olika biologiska effekter, främst kanske skador på populationer av fisk och försurningskänsliga hotade arter.

En del sjösystem har i dagsläget kalkats regelbundet under ca. 25 år medan de sist åtgärdade objekten har åtgärdats någon enstaka gång under något av de senaste åren. Eftersom kalkning av olika objekt har skett i mycket olika stadier av utvecklingen under försurningen kommer en återförsurning att ske utifrån starkt varierande status med hänsyn till hur vattnens återhämtning efter kalkningen utvecklats. En återförsurning kommer också att resultera i olika slutstadier relaterat till belastningen av försurande ämnen som kan ha ändrats markant sedan första kalkningen (minskad svaveldeposition med ca. 60 % sedan mitten av 1980-talet), men även den ackumulerade försurningen i jordarna inom avrinningsområdet kommer att vara en betydelsefull faktor för den framtida belastningen. Hur utveckling och slutresultatet i de olika fallen kommer att bli är därför oklart, särskilt med beaktande av att den empiriska kunskapen från faktiska studier är mycket ringa. Riskerna för olika effekter kan därför inte baseras enbart på några få direkta observationer utan även mer allmänna observationer av förändringar av ekosystemen relaterat till försurning av olika grad måste vägas in. Efter en fyllig sammanfattning av några experimentella studier sker denna sammanvägning i ett diskussionskapitel.

Studier av återförsurning i sjöecosystem

Endast två väldokumenterade äldre svenska återförsurningsexperiment existerar; Lysevatten (Alenäs *et al.*, 1991; Andersson och Hultberg, 1997) och Råvekärrens Långevatten (Dickson *et al.*, 1995), dessutom pågår sedan ett par år ytterligare några nya studier i Tyresta nationalpark (Edberg *et al.*, 2000). De förstnämnda sjöarna, belägna i västra Sveriges högbelastade områden, är mycket känsliga för försurningspåverkan liksom sjöarna inom Tyrestaområdet som dock påverkats av en lägre belastning (se karta). Ytterligare undersökningar, som kan bidra med kunskap, är laboratorieexperiment med metallutlakning vid experimentell försurning (Wällstedt, 1998, Wällstedt och Borg, 2002).



Figur 1. Återförsurningsstudier.

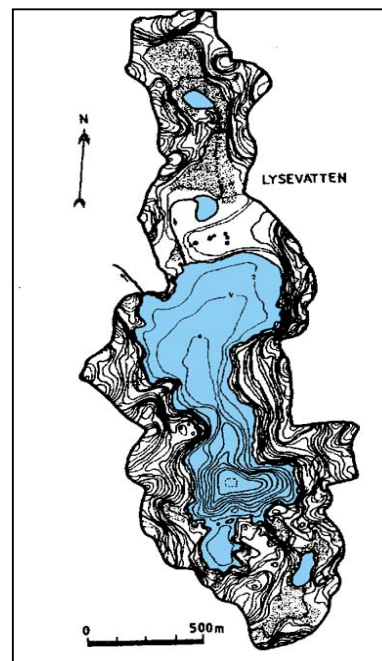
Från Lysevatten, Råvekärrens Långevatten och Tyresta-sjöarna finns ett relativt omfattande dataunderlag i form av tidsserier för både vattenkemi och biologi, innefattande undersökningar under den tid sjöarna var sura, kalkade och slutligen återförsurade. Trots det omfattande dataunderlaget kan det vara tveksamt med alltför långtgående generaliseringar då Lysevatten (Hultberg, 1985a) och Råvekärrens Långevatten försurades kraftigt redan under 1960-talet och kan hänföras till en grupp av de mest försurningskänsliga sjöarna i Sverige. I Lysevatten genomfördes en kalkning med god varaktighet under ca. 6 år medan Råvekärrens Långevatten hade kalkats under 25 år och Trehörningen i Tyresta 12 år innan kalkningarna stoppades. För att belysa en del av de utvecklingstendenser som kan bli möjliga i samband med återförsurning av sjöar sammanfattas resultaten från dessa projekt förhållandevis utförligt nedan

FAKTARUTA

Sjön Lysevatten, 40 ha och omsättningstid 2.5 år, belägen i Svartedalsområdet i Bohuslän (se vidare Hultberg and Andersson, 1982) kalkades 1974 med en dos av ca. 32 g m^{-3} (beräknad varaktighet 10 år). Studier av sjöecosystemet har skett i Lysevatten under åren 1973-1987. I samband med att den positiva utvecklingen efter kalkningen bröts i början av 1980-talet bestämdes att Lysevatten skulle få återförsuras totalt. Detta för att ge perspektiv på den utveckling som kunde förväntas i ett tidigare kalkat sjöecosystem.

Lysevatten

Sjön



Figur 2. Lysevatten

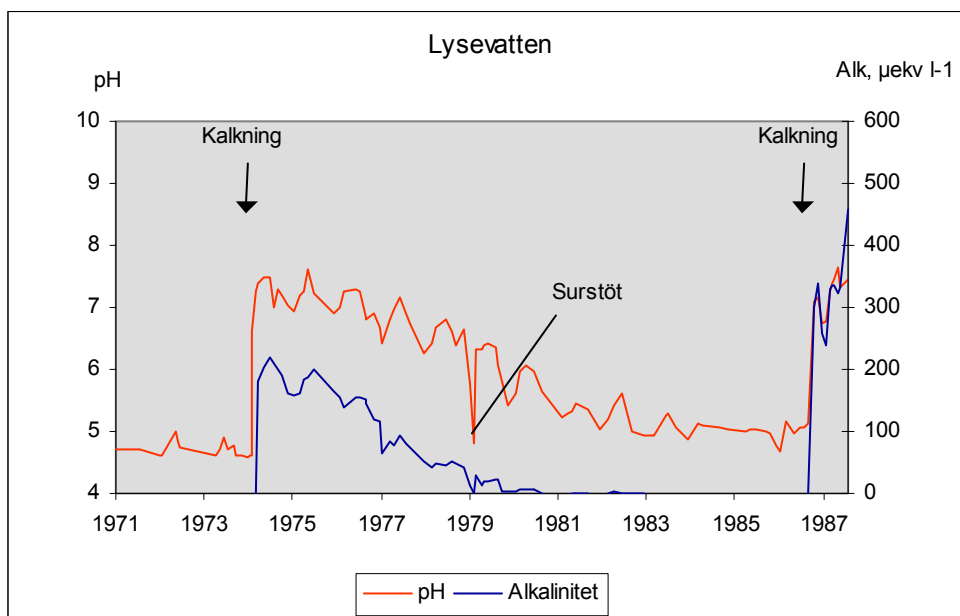
Det försurade sjöecosystemet

Tillfälligtvis insamlade data visar att sjön Lysevatten redan i början av 1960-talet påverkades av mycket omfattande perioder med surt vatten, men under sommarens lågflödesperioder uppnåddes fortfarande pH-värden över 6. Planktonsamhället under denna tidsperiod var sammansatt, både av arter som var känsligare för försurning, och arter som *Mougeotia* sp. vilken senare kom att bli ett karakteristiskt inslag i den försurade sjön. Under det följande decenniet ökade försurningsbelastningen ytterligare och när förmågan i avrinningsområdets jordar att motverka försurningen minskade, blev sjön kroniskt sur med ett pH-värde av ca. 4.7 (figur 3). Under loppet av detta skeende förlorade sjön också stora delar av den kvarvarande populationen av abborre i och med att reproduktionen i stort sett upphörde.

1973 uppvisade Lysevatten ett biologiskt utarmat system karakteriserat av några få arter med tolerans för en sur miljö och dessutom gynnade eller åtminstone ej negativt påverkade av de förändringar i interaktionsmönstren som inträtt. Denna utveckling kunde anas redan 1961/62, men då fanns fortfarande vissa arter av både djur- och växtplankton kvar (t.ex. *Daphnia* spp. och *Ceratium hirundinella*), indikerande den tidigare rikare miljön med en i väsentliga avseenden annorlunda sammansättning av arter anpassade till högre pH-värden och andra interaktionsmönster.

Vidsträckta littorala bottenar, liksom delar av de profundala bottenarna, var 1973 täckta av vitmossa (*Sphagnum* spp.) och/eller en filtliknande struktur med dominans av cyanobakterier som stabiliserade sedimenten på grundare bottenar (jfr. Andersson, 1985). Trådformiga grönalger av släktet *Mougeotia* var ett annat vanligt inslag ffa. i strandzonen. Växtplankton dominerades av några få stora dinophycéer, med *Peridinium inconspicuum* som karaktärsart, andra vanliga arter var *Dinobryon pediforme* och *D. cylindricum*. Djurplankton

dominerades av *Bosmina coregoni*, *Eudiaptomus gracilis* samt några få arter av rotatorier. I pelagialen förekom dessutom skinnbaggar, som *Glaenocoris propinqua*, och nymfer av flicksländor rikligt, indikerande att fiskpredationen vid tillfället var mycket ringa. I Lysevatten fanns 1973 48 äldre abborrar, de flesta tillhörande årsklassen 1969, samt endast 9 st årsungar (Hultberg, 1985a). Bottenfaunan dominerades av fjädermygglarver (gruppen chironomini), dessutom förekom nympher av sävsländan, *Sialis lutaria*, samt arter av flick- och trollsländor, medan sötvattensgråsuggan, *Asellus aquaticus*, ej påträffades.



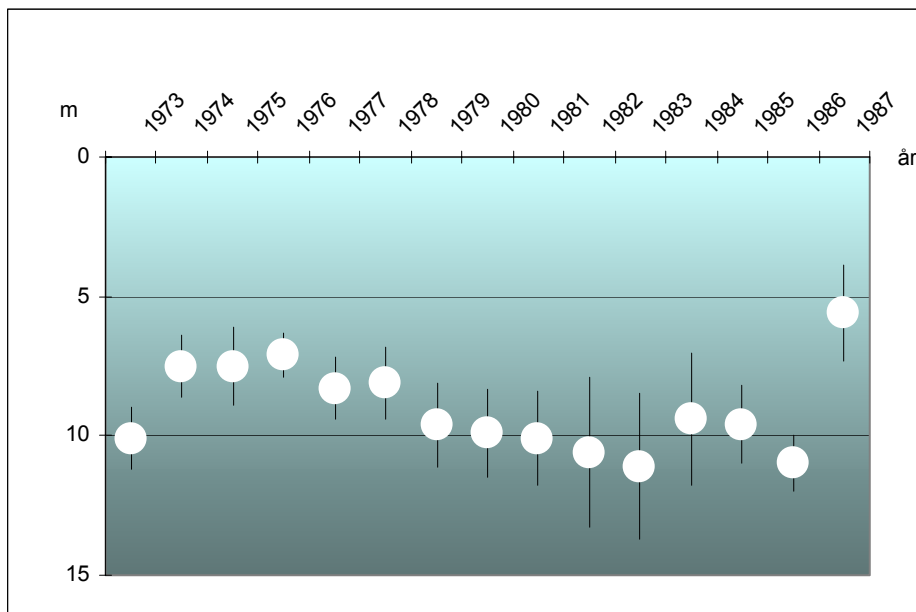
Figur 3. Långtidsutvecklingen av pH och alkalinitet efter kalkningar i sjön Lysevatten. Med surstöt förstås här en förhållandevis kortvarig situation med ett pH-värde som är markant lägre än perioderna innan och efter

Effekter av kalkningen

Med undantag av vissa extremvärden under själva kalkningen, resulterade tillförseln av kalk i ett pH strax över 7 och alkaliniteten uppnådde värden av drygt 0.2 mekv l^{-1} under det första året efter kalkning. Ökningen av kalciumhalten var också förhållandevis hög (drygt 0.3 mekv l^{-1}) och visar att strategin med långvarig effekt (tillförsel av stora doser) i början av varje kalkning resulterar i höga värden om den initiala utlösningen av den tillförda kalken är god. Hältökningarna efter kalkningen medförde en förhållandevis kraftig ökning av sjövattnets ledningsförmåga (ca. 50 % initialt). På det hela taget kan en liknande första kalkning ses som en mycket drastisk förändring av sjöns kemiska miljö och responsen inom biotat kan bli därefter.

Första sommaren efter kalkningen dog *Sphagnum* nästan helt på littoralbottenarna, och en succession startade genom att nya plantor av både notblomster (*Lobelia dortmanna*) och braxengräs (*Isoetes lacustris* och *I. echinospora*) etablerades. Den filtartade strukturen desintegrerade under loppet av det följande året och "resterna" (detritusmaterial som nu icke var sammanvävt) transporterades ut på djupare sedimentationsbottnar. Gäddnate (*Potamogeton natans*) etablerades och tillväxte under åren då alkalinitet och pH var höga. Emellertid överlevde *Sphagnum* plantor kalkningen på vissa profundala bottnar (djup kring 10 m), dock var längdtillväxten endast någon cm och plantornas habitus var mycket tunna jämfört med tillväxten under sura förhållanden (jfr Andersson och Hultberg, 1997).

Vissa växtplanktonarter reagerade negativt på kalkningen men återhämtade sig efter ett kort tag, och på lite längre sikt började förskjutningar i artsammansättning och förekomst bli märkbara, ffa. inom grupperna Chlorophyceae och Chrysophyceae (Hultberg och Andersson, 1982). Ökande antal och biomassor medförde en måttlig men signifikant minskning av siktdjupet som varade några år efter kalkningen. Under återförsurningen ökade sedan siktdjupet succesivt, men kalkningen som avbröt återförsurningen medförde planktonblomning och åter signifikant minskning av siktdjupet (figur 4).

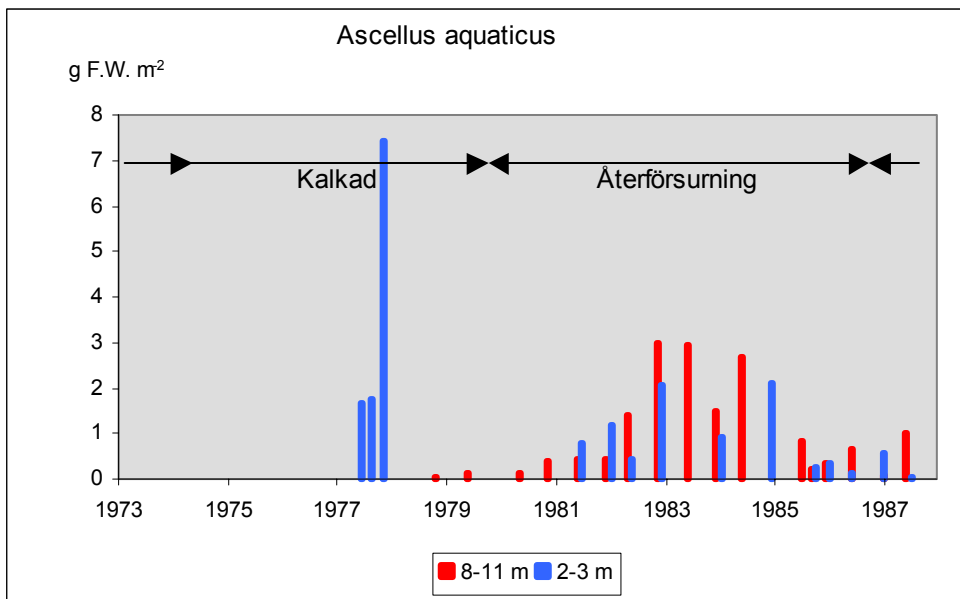


Figur 4. Utvecklingen av siktdjupet i sjön Lysevatten (årsmedel \pm standardavvikelsen.) under perioden 1973 till 1987. Sjön kalkades 1974 och 1986 och återförsurnades i perioden emellan, ungefär från 1980.

Året efter kalkning förändrades dominans och biomassa med flera nytillkomna arter inom djurplanktongrupperna Cladocera och Rotatoria, ibland mycket markant. De stora och snabba svängningarna i abundansen indikerar att reglerande faktorer, såsom predation och/eller konkurrens sannolikt var svagt utvecklade under en initial period. Den generellt positiva utvecklingen med ökande strukturell diversitet pågick fram till 1979, då den bröts i och med vårens markanta "surstöt". Trots en återhämningsperiod med gynnsamma vattenkemiska förhållanden under 5 - 6 år återkom inte vissa arter, bl.a. planktoniska kiselalger vilka innan försurningen varit vanligt förekommande.

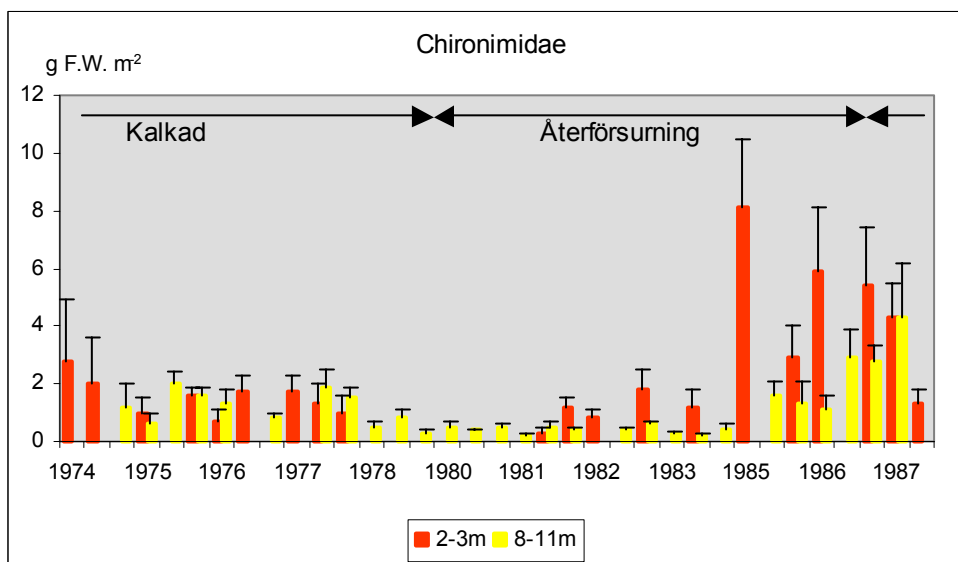
Av de bottenlevande djuren ökade vattengråsuggan (*Asellus aquaticus*) mycket påtagligt från att överhuvudtaget endast ha registrerats som fiskföda. I strandzonens högar av ackumulerad grovdetritus förekom mycket höga biomassor redan våren 1975, och sannolikt bidrog denna täta population till den hastiga fragmentering och nedbrytning som skedde. Några år senare förekom en markant populationstopp på littoralbotten (2 - 4 m) medan arten först 1978 påträffades i profundalen och där nådde en topp 1983 - 84 (figur 5). Skinnbaggen *Glaenocorisa propinqua* och nymfer av flicksländor, vilka reagerat positivt och ökat omedelbart efter kalkningen då predation från fisk saknades, blev viktiga födoobjekt för den öring som inplanterades under 1975 och betades ned tämligen snabbt så att de sällan observerades frisimmande i pelagialen. Succesivt efter kalkningen etablerade försurningskänsliga dagsländor och några arter av nattsländor livskraftiga populationer, t.ex.

förekom dagsländan *Cloëon dipterum* mycket rikligt under åren med goda vattenkemiska förhållanden.



Figur 5. Populationsutveckling hos *Asellus aquaticus* på olika bottenar i sjön Lysevatten efter kalkningen 1974. Sjön kalkades 1974 och 1986 och återförsurades i perioden emellan, ungefär från 1980. Under perioden 1978 till 1982 förekom ingen provtagning i littoralen.

Inplanterad öring och bäckröding hade god tillgång på födoorganismer och uppvisade mycket hög tillväxt ett antal år efter kalkningen. Reproduktion av bäckröding förekom årligen under denna period. Den rikliga födotillgången gjorde att de båda inplanterade fiskarterna inledningsvis och fram till 1979/80 uppvisade god eller mycket god kondition (Fulton's index).



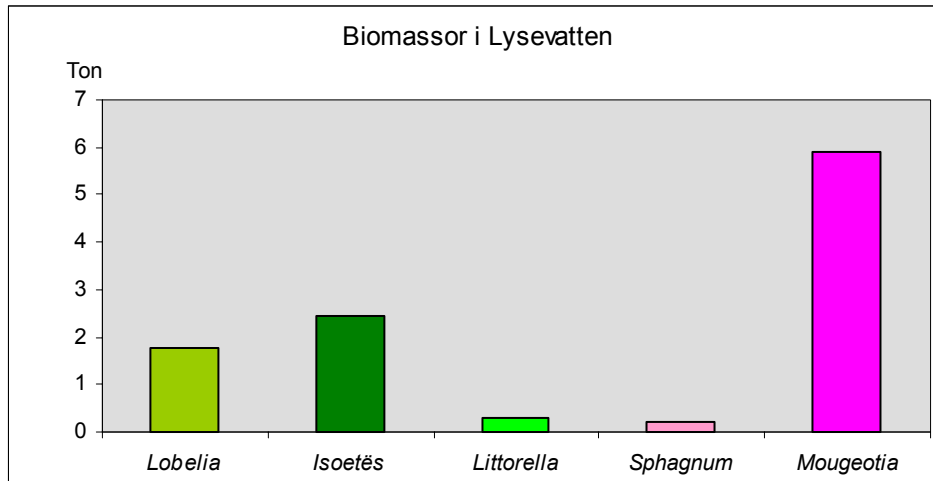
Figur 6. Populationsutvecklingen av fjädermyggor på profundala (8 - 11 m) och littoral bottenar, biomassan ± standardavvikelsen. Sjön kalkades 1974 och 1986 och återförsurades i perioden emellan, ungefär från 1980. Under perioden 1978 till 1982 förekom ingen provtagning i littoralen.

Bottenfaunan förändrades efter kalkningen beroende dels på förändringar av habitatstrukturen då vitmossor och den filtartade algstrukturen försvann på bottenarna, dels som följd av de vattenkemiska förändringarna. Efter kalkningen varierade biomassan av fjädermyggor i profundalen kring knappt 2 g våtvikt m⁻², men under den begynnande återförsurningen minskade biomassan sedan till som lägst ca. 0.5 g m⁻² och en liknande utveckling förekom sannolikt på de grundare bottenarna (figur 6). I slutskedet av återförsurningen (1985/86) ökade biomassorna av fjädermyggor åter mycket markant, och särskilt påtagligt var detta inom områden med riklig växt av *Mougeotia*. Förändringarna av biomassan sammanföll med tydliga förändringar i artsammansättningen.

Kalkningen medförde kraftiga förändringar på kort tid av artsammansättningen i ekosystemet. En hastig nedbrytning av försurningsgynnad växtlighet och ackumulerat grövre organiskt material medförde temporärt ökad tillgång på näring för vissa organismer och förhöjda närsalthalter i vattnet vilket positivt bidrog till förändringarna.

Återförsurningen och biologiska förändringar under denna fas

”Surstöten” 1979 bröt definitivt den generellt positiva utveckling som inletts efter kalkningen, och i slutet av 1980 försvann dessutom kvarvarande alkalinitet varpå pH sjönk under 6. Den tidigaste, och som det så småningom visade sig också mest markanta, förändringen i samband med sjunkande pH under återförsurningsfasen var omedelbart en ökad förekomst av *Mougeotia*. Till att börja med ökade trådalger successivt, oftast inom en smal zon närmast under vattenlinjen, men utvecklingen gick mycket hastigt och redan 1982 förekom trådalger i stor mängd inom djupintervallet 0 - 2 m.



Figur 7. Totalbiomassor av de dominerande makrofyterna i sjön Lysevatten i slutet av återförsurningsfasen (1986). *Sphagnum* och *Mougeotia* är försurningsgynnade.

Med början ungefär 1982 observerades dessutom under några år en påtaglig artfattigdom och ofta mycket låga biomassor av både växt- och djurplankton. Under denna period pågick dock en succession genom att arter försvann (ffa. mer försurningskänsliga), medan andra, delvis nya, arter etablerade populationer vilka ibland blev dominerande, ibland endast förekom helt tillfälligt. Några års återförsurning medförde en omfattande tillväxt av *Mougeotia* över stora områden, främst på de grunda bottenarna. Ökningen av algbiomassan bestod fram till nästa kalkning, men successivt utvecklades ett mer kompakt växtsätt över mjukbottenarna (metafyton). Inom denna struktur (habitat) förekom ofta stora mängder

fjädermyggor (≥ 10 g våtvikt m^{-2}) vars byggen av ”borör” och födointag ihop med andra arters aktivitet sannolikt bidrog till den observerade förändringen av växtsättet hos *Mougeotia*.

Från 1984 observerades också *Sphagnum* på grunda bottnar, säkerligen utvecklade från sporer som legat i sedimenten eller som intransporterats från omgivningarna. Den årliga tillväxten av *Sphagnum* ökade snabbt (jfr. Andersson och Hultberg, 1997) medan den efter kalkningen uppblommande gäddnaten (*Potamogeton natans*) försvann under denna period. I slutskedet av återförsurningen uppskattades makrofytbiomassan i hela sjön till drygt 10 ton torrsvikt helt dominerad av *Mougeotia* med 5.8 ton (tabell 1 samt figur 7 ovan) i motsats till förhållandena i den försurade sjön före kalkningen 1974. I detta skede dominerade *Sphagnum* på bottenarna med en biomassa i storleksordningen 4 till 5 ton, mot ca. 0.2 ton 1986, i huvudsak avhängigt den längre tiden för tillväxt före 1974.

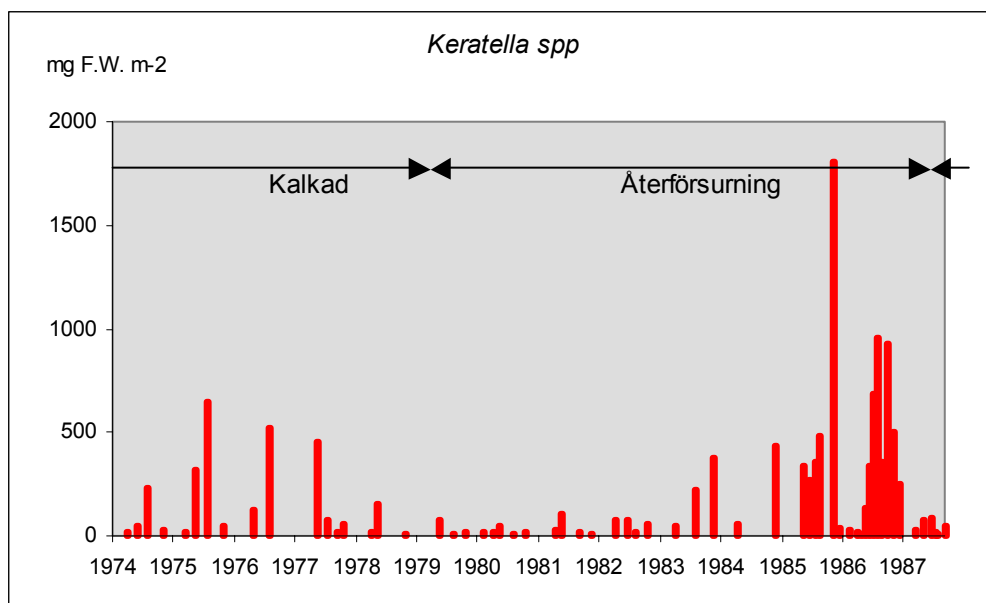
Tabell 1. Biomassor av makrofyter efter återförsurning i sjön Lysevatten 1986 jämför också figur 7.

Art	Biomassa i täthetsklassen			Medelbiomassa på koloniserad yta (g m^{-2})	Medelbiomassa i hela sjön		Totalbiomassa i sjön (kg)
	1	2	3		(g m^{-2})	(g C m^{-2})	
<i>Lobelia dortmanna</i>	10.6 ±7 (n = 7)	43.5 ±4 (n = 5)	102 ±23 (n = 5)	21.4 (8.3 ha)	4.3	2.0 #	1770
<i>Isoëtes lacustris</i>	5.5 ±5 (n = 5)	18.7 ±6 (n = 6)	55.1 ±9 (n = 5)	25.6 (9.6 ha)	6	2.8 #	2450
<i>Littorella uniflora</i>	7.7 ±6 (n = 10)			7.7 (3.9 ha)	0.74	.34 #	300
<i>Sphagnum</i> sp.	3.2 ±2 (n = 18)			3.2 (5.5 ha)	0.44	0.15 ##	180
<i>Mougeotia</i> sp.		23.4 ±7 (n = 9)		23.4 (25 ha)	14.4	6.6 #	5850
Totalt					25.9	11.9	10500

#, 46% C av torrsvikten;##, 35% C av torrsvikten.

Successivt förändrades planktonsamhället genom att arter som gynnats av kalkningen minskade och försvann, t.ex. alger av släktet *Kephyrion*, vissa *Dinobryon*-arter och flera grönalgsarter, bland rotatorierna t.ex. *Conochilus unicornis* och *Asplanchna*-arter och de ofta tillfälligt observerade hinnkräftorna av släktet *Daphnia*. Andra arter uppvisade mer varierande reaktioner, och i slutfasen av återförsurningen ökade åter vissa arter. Exempel utgör rotatorier av släktet *Keratella* vilka ökat efter kalkningen 1974 men som under återförsurningen oftast hade låg abundans (figur 8), samt hinnkräftan *Diaphanosoma brachyurum*.

Populationsförändringarna sent under återförsurningen indikerade högre näringtillgång men också ändrade interaktionsmönster i samband med att fiskens betydelse som predator i sjön i stort försvunnit. Den förnyade kalkningen 1986 medförde en markant abundansminskning av *Keratella* i motsats till utvecklingen efter kalkningen 1974. Det är oklart i vilken utsträckning detta berodde på den annorlunda utvecklingen av populationerna innan kalkningen, eller av de specifika konkurrens- och predationsförhållandena under 1987, med en ökning av fiskpredationen via en extremt riklig population av 0+ abborre. Ökningen av näringstillgång, och tillgång på gynsamma habitatstrukturer, var än mer påtagligt för bottenfaunan, där fjädermyggor åter ökat inom främst de algdominerade bottenarna tillsammans med olika nattsländearter. Mot slutet av återförsurningen blev algen *Peridinium inconspicuum*, karaktärsart i den försurade sjön, åter dominerande samtidigt som ett flertal arter, vilka varit vanliga åren efter kalkningen, helt försvann.



Figur 8. Utvecklingen av biomassan (vägt sjömedel) hos rotatoriesläktet *Keratella*, ffa. arten *cochlearis*, i Lysevatten. Dessa djurplankton ökade under slutet av återförsurningen, men visade motsatt reaktion efter kalkningen 1986 då abundansen minskade påtagligt i motsats till utvecklingen efter kalkningen 1974 (jfr. också texten).

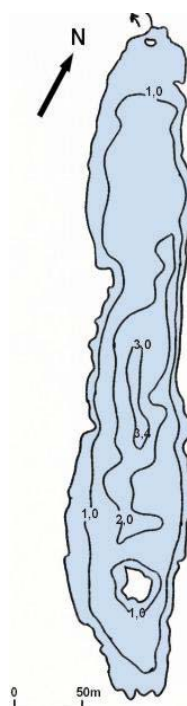
Den successivt allt surare miljön påverkade också fisken negativt, vilket blev uppenbart först under åren efter den kraftiga ”surstöten” 1979. Fulton’s index för konditionen hos inplanterade öringstammar sjönk drastiskt under dessa år (Alenäs *et al.*, 1991). Ett försök att inplantera en ny årsklass av en känslig öringstam 1982 misslyckades totalt p.g.a. lågt pH och allmänt förhöjda halter av aluminium, samtidigt misslyckades också rekryteringen till den inplanterade (men självreproducerande) bäckrödingpopulationen trots massiva kläckningar, som t.ex. våren 1980. Vid ett par tillfällen under dessa år kunde observeras hur enstaka märkta öringar med i huvudsak fiskdiet p.g.a. födobrist minskade 30 - 40 % i vikt. Parallellt med denna utveckling kunde fram till slutet av återförsurningen (1986) enstaka 10 åriga öringar (1.5 - 2 kg) fångas vilka uppvisade mycket god kondition.

Sammanfattningsvis kan konstateras att en serie externa förändringar (försurning / kalkning / återförsurning / kalkning) medfört genomgripande artförändringar i sjön Lysevatten. Vad avser återförsurningen förekom förändringar av delvis oväntad karaktär, t.ex. den tidiga och så småningom mycket kraftiga biomasseökningen av trådalgen *Mougeotia* sp., vilket också innebar nya förändringar av strukturen över vidsträckta grundare bottenar jämfört med förhållandena efter kalkningen. En viktig orsak till observerade förändringar torde vara den låga diversiteten p.g.a. långtgående försurningskador inom samtliga trofinivåer, och endast partiell återhämtning efter kalkningen, vilket resulterade i färre interaktioner (minskad reglering) inom ekosystemet. Den snabba återförsurningen kan ses som en extrem påverkan, resulterande i omfattande habitatförändring varvid slumpmässigt vissa arter gynnas / missgynnas och andra populationers abundans förändras sekundärt via de olika interaktionsmönstren som uppstår i det störda ekosystemet.

Rävekärrens Långevatten

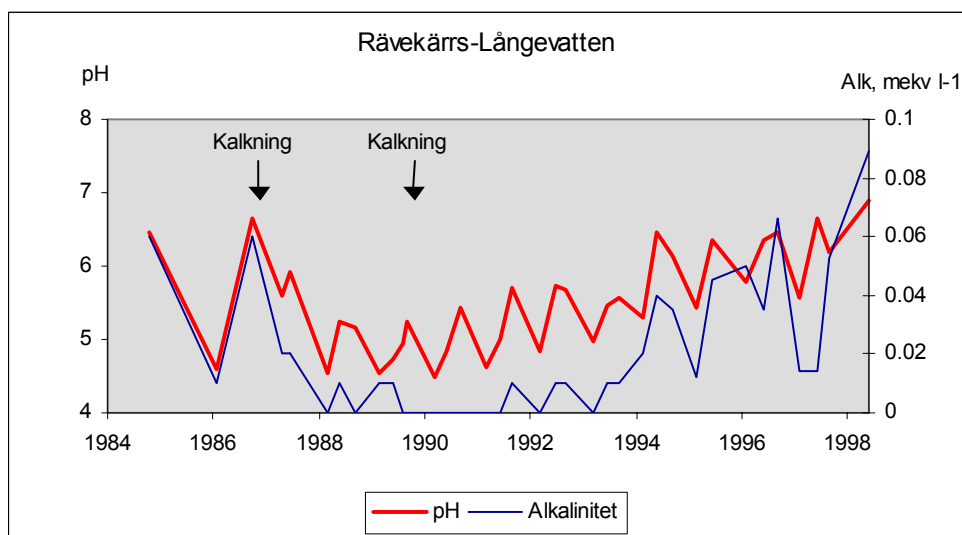
FAKTARUTA

Rävekärrens Långevatten är en liten grund sjö på 3,4 ha utanför Göteborg, med ett tillrinningsområde på drygt 17 ha som domineras av gneiss med små inslag av våtmarker. Omsättningstiden är knappt ett år. Den årliga syradepositionen i området var hög under 60-70 talen, 30 kg S ha⁻¹ år⁻¹, och pH-värdet i sjöns vatten var 4,2 under vintern. 1995 hade syrabelastningen minskat med ca. 50 % och sulfathalten i sjövattnet från 0,30 till 0,15 mekv l⁻¹. Sjön har kalkats regelbundet sedan 1961 med årliga doser på 20 g m⁻³ (80 kg ha⁻¹ tillrinningsområde).



Figur 9. Rävekärrens Långevatten

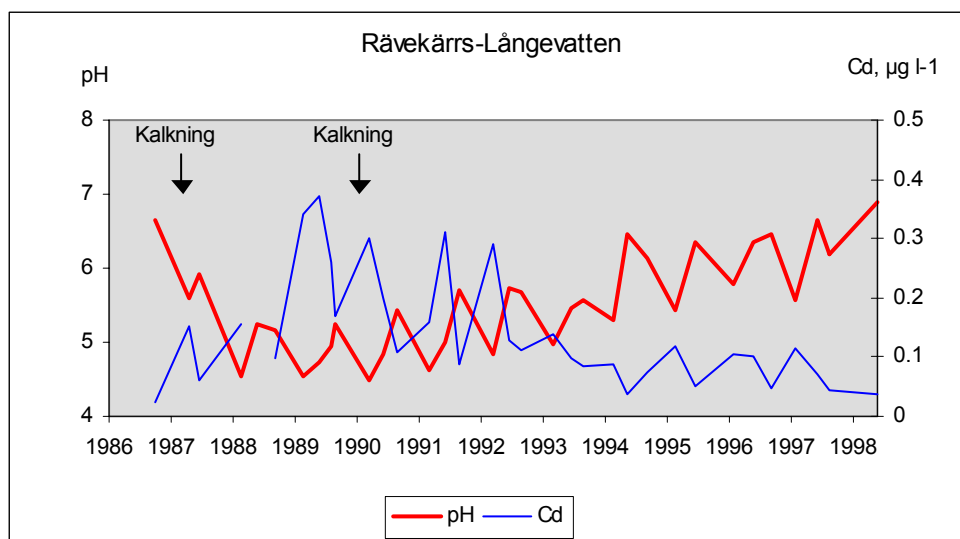
Under slutet av 70-talet observerades syrebrist i bottenvattnet under vintern och ökande fosfor- och ammoniumhalter. Samtidigt började makrofyter breda ut sig, framförallt hårslinga, *Myriophyllum alterniflorum*, vilken 1987 täckte 42 % av sjöytan. Även vattenpest (*Elodea canadensis*) och gäddnate (*Potamogeton natans*) expanderade. Kalkningarna upphörde 1986 och tre år framåt i ett försök att minska utbredningen av vegetationen. 1990 återupptogs kalkningarna igen men då behandlades våtmarkerna i tillrinningsområdet.



Figur 10. pH och alkalinitet i Rävekärrens Långevatten, 1984 - 1998.

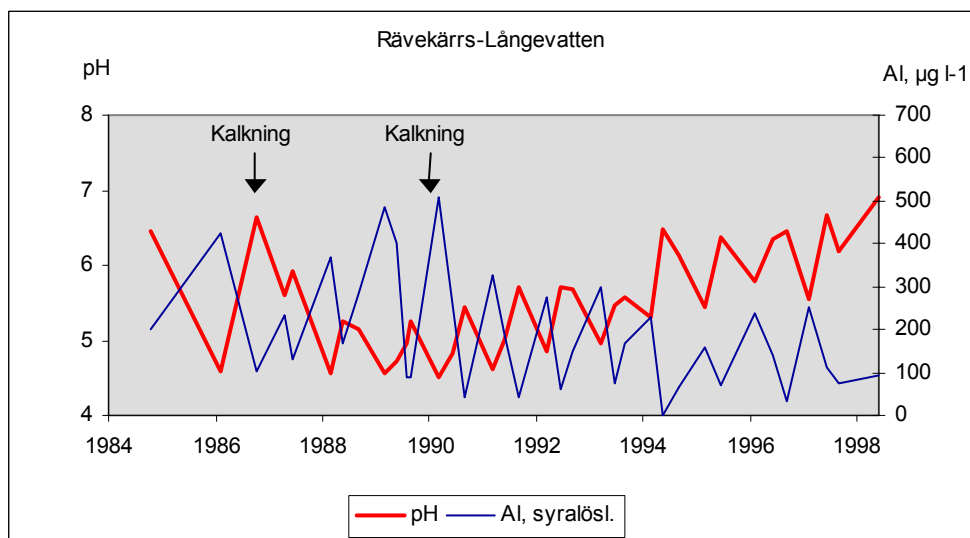
När kalkningarna upphörde minskade pH successivt från ca. 6,5 under den kalkade perioden till ca. 5 under sommaren och ca. 4,5 under vintern efter 2 år (figur10). Samtidigt ökade halterna av aluminium i ytvattnet till 200 µg l⁻¹ på sommaren och 500 µg l⁻¹ under

vintern (se figur 12). Zinkhalten ökade från ca. $10 \mu\text{g l}^{-1}$ till $40 \mu\text{g l}^{-1}$ och kadmiumhalten ökade från $0,05 \mu\text{g l}^{-1}$ till $0,2 - 0,4 \mu\text{g l}^{-1}$ (figur 11 och 12.).



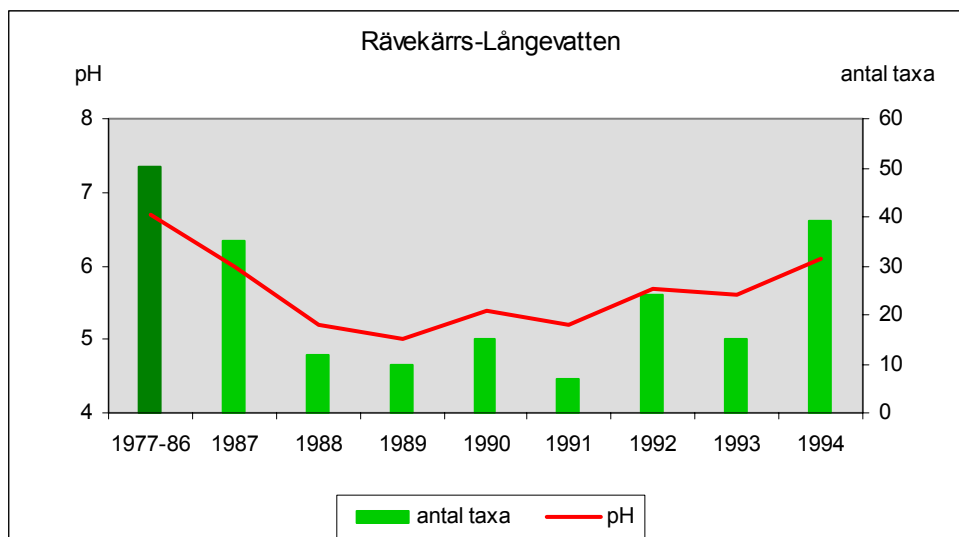
Figur 11. pH och Cd i Rävекärrs Långevattnen, 1986 - 1998.

Ytsedimenten hade efter den kalkade perioden höga halter av Zn och Cd. Efter 2 års återförsurning noterades samma eller något lägre halter. pH i ytsedimentets porvatten hade 1990 minskat till 5,3 vilket var samma nivå som i det bottennära vattnet. I bottennära vattenskiikt observerades även mycket höga Zn och Cd-halter, $1000 \mu\text{g l}^{-1}$ respektive $10 \mu\text{g l}^{-1}$ vilket kan tyda på en utlakning av metaller från sedimentet. Fosforhalterna i sjövattnet minskade från ca. 15 till $10 \mu\text{g l}^{-1}$ och nitratförbrukningen under sommaren avtog (Dickson *et al.* 1995).



Figur 12. pH och aluminium i Rävекärrs Långevattnen. Återförsurning 1986 - 1989. 1990 påbörjades våtmarkskalkning och denna har sedan fortgått.

Antalet växtplanktonarter under den kalkade perioden varierade mellan 41 - 58 arter med flest arter av chlorophyceae, men minskade under återförsurningsfasen i takt med pH ($r=0,94$, $p<0.001$) till sju arter (figur 13). När antalet arter var som lägst utgjordes de av ffa. chrysophyseer, dominerade av den acidofila arten *Dinobryon pediforme*. Antalet arter minskade speciellt markant då pH gick under 5,8. Djurplankton som under den kalkade perioden bestod av flera arter av rotatorier dominerades helt under den återförsurade perioden av en art, *Keratella cochlearis*. Hoppkräftor av släktet *Cyclops* minskade märkbart medan hinnkräftan *Diaphanosoma brachyurum* och hoppkräftan *Eudiaptomus gracilis* ökade sina andelar av biomassan.



Figur 13. Antal växtplanktonarter i augusti (staplar) och augusti-pH i Rävekärrs Långevatten. Återförsurning 1986 - 1989. Våtmarkskalkning 1990 och framåt.

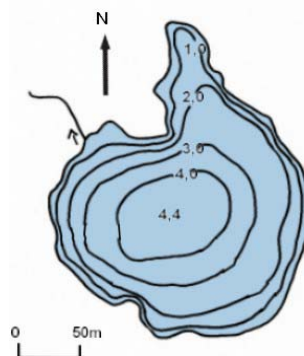
De täta bestånden av *Myriophyllum*, som utvecklades under den kalkade perioden, försvann helt under 1987 - 1990, liksom *Elodea* och *Potamogeton*. I stället ökade den syratoleranta bentiska rödalgen *Batrachospermum* sp. Efter fyra års våtmarkskalkning hade *Myriophyllum* ännu inte börjat öka igen (Dickson *et.al.*, 1995).

Trehörningen, Tyresta

FAKTARUTA

I Tyresta nationalpark utanför Stockholm har ett sjösystem studerats sedan 1977, ett år innan kalkningar startades i området.

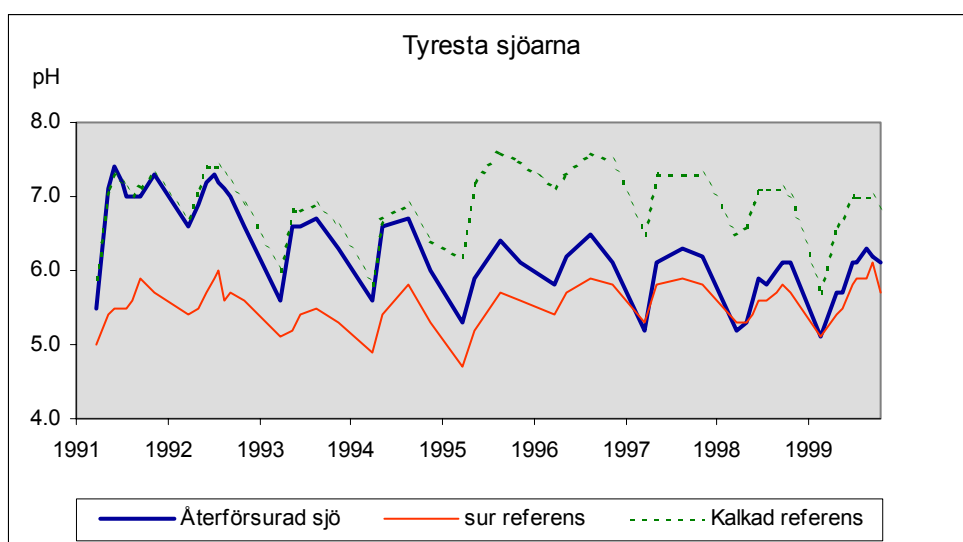
I sjön Trehörningen (yta 4 ha, omsättningstid 0,4 år) upphörde kalkningarna 1991 och återförsurningseffekterna har studerats perioden 1991-1999. Som referenser studerades den även fortsättningsvis kalkade sjön Långsjön (10 ha, 0,8 år) och den sura, aldrig kalkade sjön Årsjön (16 ha, 1,4 år) i samma siösystem.



Figur 14. Trehörningen.

I ett sjösystem i Tyresta nationalpark, 20 km utanför Stockholm pågår sedan 1991 återförsurningstudier. I sjön Trehörningen (figur 14) har kalkningarna upphört och två andra sjöar i samma sjösystem studeras parallellt; Långsjön, kalkad referens och Årsjön sur referens (aldrig kalkad). Sjöarna i systemet är små skogssjöar med avrinningsområden dominerade av svårvittrad gneis-granit och är känsliga för försurning. Sjösystemet har studerats sedan 1977 och Trehörningen och Långsjön började kalkas 1978. Kalkningarna upprepades med 3 - 5 års intervall till 1991 då kalkningen i Trehörningen upphörde (Långsjön kalkades 1995).

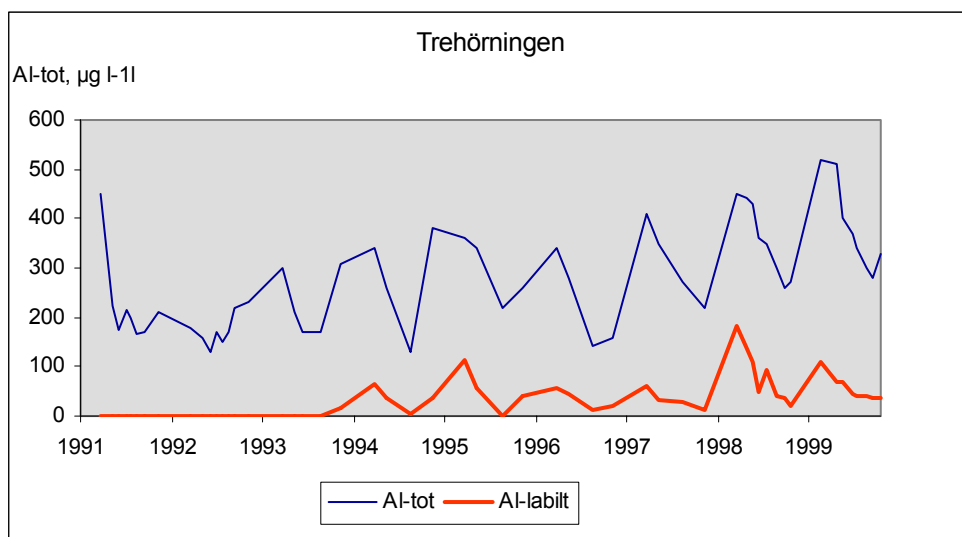
Innan kalkningarna startades låg årsmedianen av pH i sjöarna på 4,7 - 5,2 och alkaliniteten var under detektionsgränsen ($<0,01$ mekv l^{-1}). I och med kalkningarna i Trehörningen och Långsjön överskred pH 6,0 och alkaliniteten $0,1$ mekv l^{-1} och dessa värden har upprätthållits med få undantag under den kalkade perioden. Under denna period har även metallhalter i vattnet minskat, t.ex. Cd. Före kalkningen 1978 kunde man bara hitta 12 - 29 växtplanktonarter i Trehörningen och Långsjön och 20 - 35 i den sura referenssjön Årsjön. I och med kalkningarna ökade antalet arter successivt till 40 - 50 st. i Trehörningen, och i Långsjön var utvecklingen likartad. Bland djurplankton ökade antalet rotatoriearter under 1978 - 1989, förmodligen p.g.a. ökad primärproduktion och föda som följd av ökad transport av näringsämnen. Antalet cladocerer ökade också ett antal år efter att kalkningarna startats (Edberg *et al.* 2001).



Figur 15. pH-variation i Trehörningen (återförsurad), Långsjön (kalkad referens) och Årsjön (sur referens).

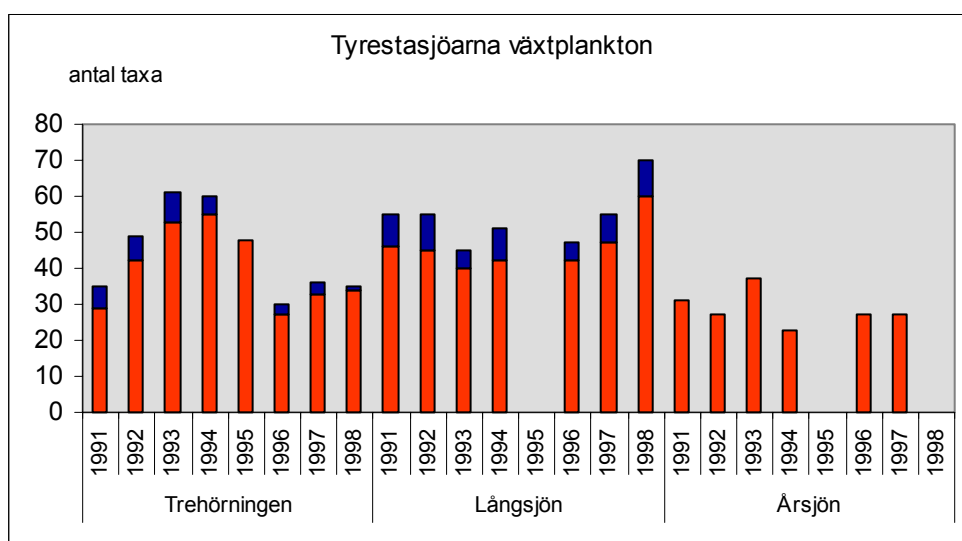
Efter sista kalkningen i Trehörningen 1991 sjönk pH-värdet från årsmedian 7,1 1991 till 6,1 1999 och som lägst 5,8 1998 (figur 15). pH i referenssjöarna 1991 - 1999 varierade mellan årsmedian 6,6 - 7,1 i Långsjön och 5,2 - 5,8 i Årsjön. Alkalinitet och kalciumhalt minskade också i Trehörningen medan halten av TOC (totalt organiskt kol) och vattenfärg inte förändrades nämnvärt (Edberg *et al.* 2001).

Samtidigt som pH minskade i Trehörningen ökade halterna av mangan och totalaluminium signifikant (Edberg *et al.* 2001) särskilt efter 1995 då årsmedianen av pH sjönk till 6,0 (figur 15 och 16). Zn, Cd och Al_i (labilt oorganiskt Al) nådde de högsta halterna under 1998 då även de lägsta nivåerna för pH (årsmedian) under perioden observerades (figur 16). Inga signifikanta ökningar av metallhalter observerades i den kalkade sjön eller i den sura referenssjön under perioden.



Figur 16. Halter av totalt aluminium (Al-tot) och labilt oorganiskt aluminium (Al-labilt) i Trehörningen.

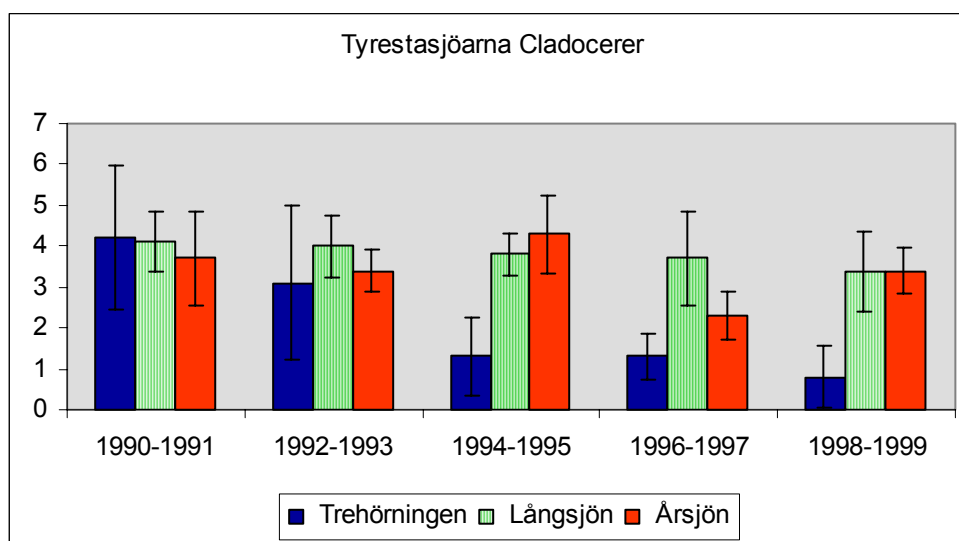
Efter den sista kalkningen 1991 i Trehörningen varierade antalet växtplanktonarter mellan 30 - 61 med det största antalet 1993 - 94 (figur 17). Med sjunkande pH minskade det totala antalet växtplanktonarter till 30 - 36 under perioden 1996 - 98. Under denna period saknades även de försurningskänsliga arterna, t.ex. *Scenedesmus spp* i Trehörningen medan de fortfarande förekom i den kalkade referenssjön Långsjön. I den sura referenssjön Årsjön förändrades inte antalet växtplanktonarter nämnvärt under motsvarande period.



Figur 17. Totalt antal arter av växtplankton i Trehörningen (återförsurning), Långsjön (kalkad) och Årsjön (sur referens), under somrarna 1991 - 2000. Blått anger antalet försurningskänsliga arter.

Bland djurplankton i Trehörningen minskade ffa. cladocerer (figur 18) markant i takt med sjunkande pH. 1990 - 91 dominerade *Daphnia longispina* och *Holopedium gibberum* tillsammans med *Diaphanosoma brachyurum* och *Ceriodaphnia quadrangula*, varav de förstnämnda inte förekom innan kalkningarna startades. Från 1993 förekom inte *Ceriodaphnia* och frekvenserna av *Holopedium*, *Daphnia* och *Diaphanosoma* minskade markant, och *Bosmina* blev mycket sällsynt. Eftersom dessa arter även förekommer i sura

sjöar beror minskningen förmodligen på sekundära effekter som förändrat predatortryck och tillgång på föda (Edberg *et.al* 2001).



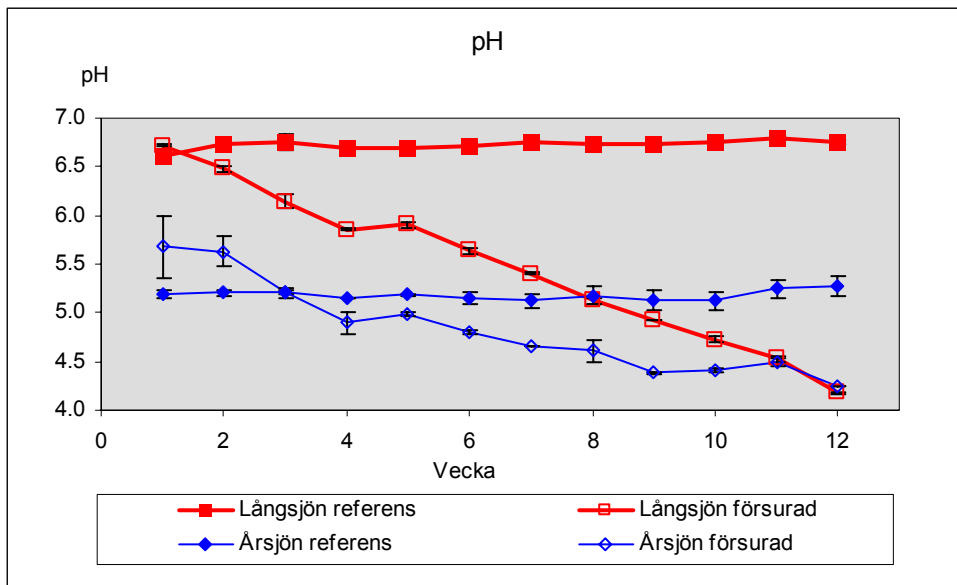
Figur 18. Antalet arter av cladocerer (medel under maj – sept. med standardavvikelse).

Många av förändringarna i Trehörningen liknar de i Råvekärrens Långevatten med t.ex. minskande antal växtplanktonarter och ökande metallhalter. Men förändringarna har gått långsammare sannolikt beroende på att vattnets humushalt är betydligt högre, samt att en tidigare våtmarkskalkning har medfört längre varaktighet av kalkbehandlingen. Den kontinuerligt minskande svaveldepositionen kan också ha bidragit till det långsammare återförsurningsförloppet genom att belastningen på ytvattnet minskat påtagligt. Denna faktor blir särskilt betydelsefull med hänsyn till en mer måttlig initial försurning av avrinningsområdets jordar orsakad av jämförelsevis lägre belastning än på Västkusten.

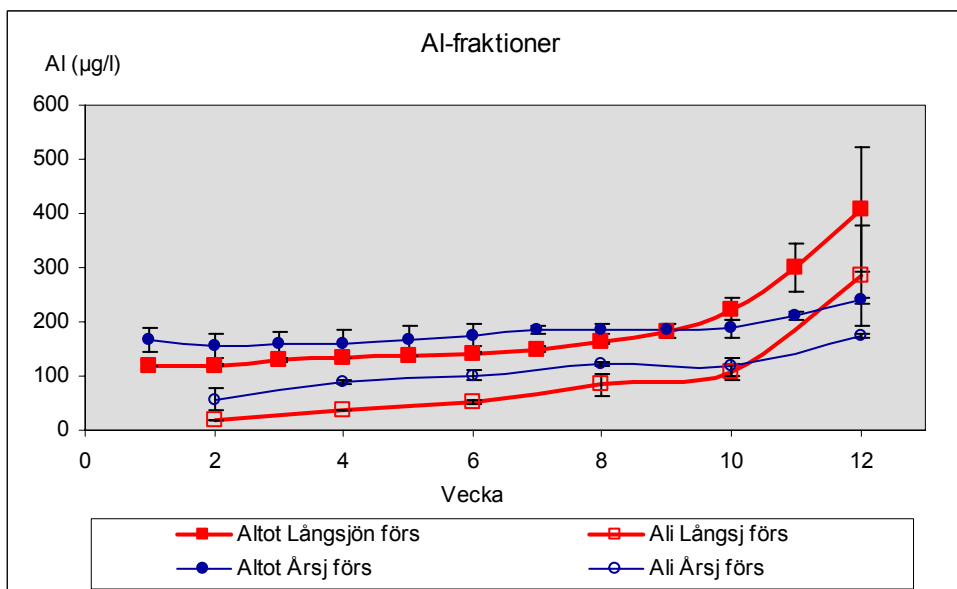
Experimentell metallutlakning från sjösediment

För att studera hur förändringar av pH påverkar utlakningen av metaller ur sjösediment gjordes ett laboratorieförsök med experimentell försurning. Sedimentproppar med överstående vatten togs med rörhämtare typ Willner i Långsjön (kalkad) och Årsjön (sur referens), i Tyresta nationalpark. Det överstående vattnet i två proppar från varje sjö försurades successivt ner till pH 4,2 under tre månader under försiktig omrörning med hjälp av luftning, medan två proppar från varje sjö hölls som referenser (figur 19). Prover av det överstående vattnet togs kontinuerligt för analys av metaller (Fe, Mn, Zn, Cu, Pb, Cd och Al inklusive fraktioner) och andra vattenkemiska parametrar. I slutet av experimentet mättes sediment-pH och redoxpotential i sedimenten.

Bestämning av redoxpotential och sediment-pH visade att de översta 2 - 3 cm påverkades av syratillsatsen. Under experimentet ökade utlakningen av metaller från sedimenten i takt med sjunkande pH i det överstående vattnet. Detta gällde särskilt Zn, Cd, Mn och Al, vars rörlighet är starkt pH-beroende. Koncentrationen av Al, Mn och Zn ökade signifikant i det överstående vattnet i de försurade propparna från både Långsjön och Årsjön, medan Cd ökade endast i den kalkade Långsjön (figur 20 och 21). Högre slutkoncentrationer av dessa metaller uppnåddes i propparna från Långsjön och redan vid pH 5,4 var



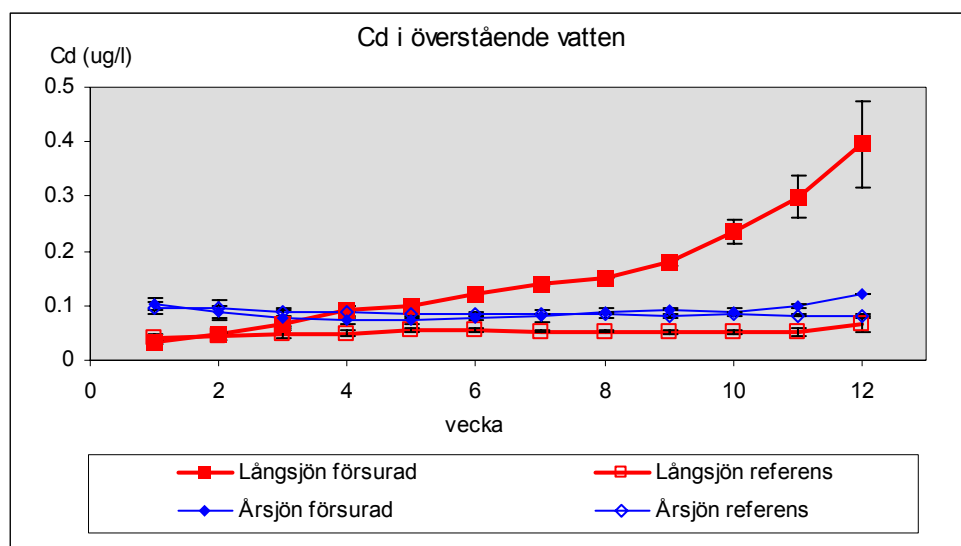
Figur 19. pH i det överstående vattnet i två experimentellt försurade proppar och två referensproppar från Långsjön (kalkad) och Årsjön (okalkad) i Tyresta nationalpark. Medel och max-min.



Figur 20. Förändring av totalt (syralösligt) aluminium (Altot) och labilt oorganiskt aluminium (Ali) i det överstående vattnet i två experimentellt försurade proppar och två referensproppar från Långsjön (kalkad) och Årsjön (okalkad) i Tyresta nationalpark. Medel och max-min.

koncentrationen av dessa metaller högre i vattnet i dessa försurade proppar än de var i Årsjövatten i början av experimentet. För de mindre pH-beroende metallerna Fe och Cu var koncentrationerna konstanta eller minskande under försöket. För Pb var koncentrationen konstant de första två månaderna, men ökade i de försurade propparna då pH gick under ca. 5. Ingen motsvarande utlakning uppmättes under försöksperioden från de referenssediment som inte syrabehandlades, förutom för kadmium som ökade något i referenspropparna från Långsjön. För Al blev den labila oorganiska fraktionen (Al_i) allt större vartefter pH sänktes. Vid slutet av experimentet stod denna fraktion för ungefär 70 % av det totala aluminiuminnehållet i de försurade proverna.

För att sänka pH tillsattes utspädd saltsyra (HCl). Detta innebar att kloridkoncentrationen i det överstående vattnet ökade från 0,1 mM till 0,3 resp. 0,4 mM i de försurade proverna från Årsjön resp. Långsjön. Dessa koncentrationer är dock försumbara med avseende på bildning av metallkloridkomplex och jämviktskemiska beräkningar visar att kloridkomplex utgör mindre än 1 % av den totala metallkoncentrationen i det aktuella pH-intervallet. Bildning av kloridkomplexen kan därför inte ha bidragit till en frigörelse av metaller från sedimenten i någon nämnvärd grad. Den mängd syra som tillsattes i försöket för att sänka pH i Långsjöproverna till pH 5,4 (alkalinitet = 0) motsvarar omkring 4.5 års direktdeposition i Tyrestaområdet och runt 2.5 års direktdeposition på den svenska västkusten.



Figur 21. Förändring av Cd i det överstående vattnet i två experimentellt försurade proppar och två referensproppar från Långsjön (kalkad) och Årsjön (okalkad) i Tyresta nationalpark. Medel och max-min.

Försurningsförloppet i detta försök var starkt forcerat och resultaten kan inte direkt jämföras med återförsurning av en naturlig sjö. Resultaten visar ändå att metaller kan lakas ut från sedimenten i tidigare kalkade sjöar och därmed ge ett potentiellt bidrag till ökade koncentrationer av vissa metaller i vattenfasen under återförsurning (Wällstedt 1998, Wällstedt och Borg 2002).

Andra observationer av biologiska effekter vid återförsurning

Återförsurning i varierande grad har naturligtvis drabbat vissa objekt under den omfattande svenska kalkningsverksamheten. Detta har dock betraktats som tillfälliga misslyckanden, oftast förorsakade av en mindre väl genomtänkt strategi för utförandet av en första kalkning, varför problemet oftast har åtgärdats i samband med nästa kalkspridning. Utvecklingen av kalkningsmetodik och kalkningsstrategier anpassade för specifika vattensystem har skett just med avsikt att undvika denna typ av "återförsurning", vilken a priori ansetts vara negativ för den biologiska utvecklingen efter kalkning. Dokumentation saknas dock i stort sett från dessa "misslyckade kalkningar", och effekterna av dessa "återförsurningar" är inte relevanta för den problematik som nu är aktuell. En initialt mer eller mindre misslyckad kalkning resulterar naturligtvis endast i ringa eller temporära förändringar av sjöns biota varför inte mycket förändras då pH och alkalinitet ånyo sjunker. Detta i motsats

till de positiva förändringar av biologin som skett i långvarigt eller t.o.m. mycket långvarigt (>20 år) kalkade objekt. I dagens situation med ett möjligt stopp av sådana kalkningar riskerar dessa sjöar att drabbas av en återförsurning vilken på nytt medför stora förändringar av negativ karaktär.

Förutom i Sverige bedrivs storskalig operationell kalkning endast i Norge. Den norska verksamheten startade med begränsade försöks- och forskningsprojekt och liknande verksamhet bedrevs en tid i USA och Kanada och från denna verksamhet finns några väldokumenterade studier omfattande hela sjöecosystem i engångskalkade sjöar. Kalkningarna har skett i forskningssyfte och har därför vanligen omfattat endast en initial åtgärd vilken sedan följts av en mer eller mindre långtgående återförsurning. Dessa kalkningar liknar delvis experimentet i Lysevatten, och kan därför bidra med relevant information om effekter framförallt på biotadeln av ekosystem med en ibland väsentligt annorlunda artuppsättning. Exempel på sådana studier är: Hovvatn i Norge (cf. Raddum *et al.*, 1986; Barlaup *et al.*, 1994), Bowland Lake i Sudbury regionen i Kanada (Jackson *et al.*, 1990; Keller *et al.*, 1992), samt sjöar inom LAMP-projektet bl.a. Woods Lake i Adirondack, USA (Porcella, 1989; Driscoll *et al.*, 1996). Resultatet av kalkningarna har i dessa fall i stora drag blivit en typisk positiv utveckling som i mycket påminner om de svenska erfarenheterna av sjökalkning (Henrikson och Brodin, 1995). I artfattiga och delvis starkt förändrade system har en signifikant återhämtning respektive återkomst observerats för känsliga populationer av fisk, inom olika grupper av bottenlevande evertrebrater, växt- och djurplankton samt, särskilt i Bowland Lake, förändringar av makrofytvegetation inklusive trådalger. De fortsatta studierna har sedan resulterat i observationer av ekosystemförändringar relaterat till en mer eller mindre långtgående återförsurning, vilket redovisas mer utförligt i litteraturgenomgången (se Appendix).

Kalkningsmetodik och återförsurning

Kalkning för att motverka försurning av ytvatten kräver goda kunskaper om hydrologi och andra faktorer av betydelse för försurningen och bör baseras på en genomtänkt strategi för spridning relaterat till en klar biologisk målsättning. För att neutralisera surt vatten eller sur tillrinning kan spridning, hittills vanligen av olika malda kalkstensprodukter, göras enligt någon av följande metoder:

- direkt kalkning på sjöytor
- dosering till vattendrag
- spridning i våtmarker längs småbäckar
- spridning över stora delar av avrinningsområdets jordar

För att optimera effekten relaterat till biologiska målsättningar kombineras numera vanligen två eller flera spridningsmetoder, utifrån kalkningsobjektets komplexitet, (jfr. Dickson och Brodin, 1995). Utnyttjandet av metodik och använd strategi påverkar i hög grad olika kalkade objekts känslighet för återförsurning. Skillnaden i tid mellan den gradvisa initiala försurning som skett under lång tid och ett återförsurningsförlopp kan bli mycket stora. Den hastighet varmed återförsurning kan komma att ske i många vattensystem har dessutom sannolikt betydelse för den biologiska responsen. Observationerna från Lysevatten (kraftig tillväxt av *Mougeotia* sp) antyder att de biologiska effekterna i form av förändrade abundansförhållanden kan visa sig oväntat snabbt och omfattande i samband med hastig återförsurning. Liknande, dock ej fullt så kraftig, respons observerades i de olika

trädalgssamhällena i Bowland Lake (Jackson *et al.*, 1990) och responsen beror sannolikt på att reglerande mekanismer/processer inte hinner utvecklas i motsvarande takt.

Direkt sjökalkning

Kalkning direkt på sjöytor utfördes ursprungligen något schablonartat liksom i sjön Lysevatten, d.v.s. för sjöar med omsättningstider $>1 - 2$ år beräknades varaktigheten vanligen för 5 år eller mer (för Lysevatten 10 år). Spridning utfördes i huvudsak inom littoral områden med exponerade hårbottenar. Resultatet blev förråd av ej utlöst kalk liggande på dessa bottenar, och utlösningen från dessa förråd kunde alltså motverka återförsurningen under viss tid och i viss grad (jfr. Sverdrup, 1985; Wilander *et al.*, 1995; Andersson och Hultberg, 1997). Numera sker dock kalkning med kortare tidsintervall och mindre doser som beräknas lösas initialt i stor utsträckning, varför utlösning från kalkdepåer på bottenarna förekommer i mindre omfattning. Det har dock via beräkning av kalciumbudgetar uppskattats att i Gårdsjön i Bohuslän kvarhålls ca. 15 % av varje enskild kalkdos, trots ändringen av kalkningsstrategin (Ulf Nyström, pers. medd). Vissa mätdata tyder på att kalcium kan ha diffunderat ned flera decimeter i de äldre underliggande sedimenten. Vid avbrytandet av kalkning är det därför osäkert om och i vilken utsträckning detta kvarhållna ”förråd” verkligen kan bidra till att fördröja återförsurningsförloppet i sådan grad att det får betydelse för biologin.

I Lysevatten förmådde inledningsvis de stora kalkförråden motverka försurningsbelastningen, men successivt minskade utlösningen och efter ca. två år var utlösningen inte tillräcklig för att balansera det sura tillflödet, vilket vid tidpunkten torde ha varit i storleksordningen $>20 \text{ kg S ha år}^{-1}$ (Andersson och Hultberg, 1997). Baserat på modeller och empiriska data kan tiden för återförsurning beräknas till någonstans mellan 2 - 5 omsättningstider (Sverdrup, 1985). Detta innebär för många sjöar endast några få år, och för sjöar i områden med fortsatt hög belastning ($>10 \text{ kg S ha år}^{-1}$) från försurade marker kan pH sannolikt sjunka flera enheter på denna tidsrymd.

Doseringskalkning i vattendrag

Dosering av kalk med någon typ av utrustning till rinnande vatten sker antingen direkt för vattendraget i sig eller för att neutralisera en sjö nedströms. I det förstnämnda fallet så kommer ett avbrytande av kalkningen att på mycket kort tid resultera i mycket långtgående återförsurning. I olika sammanhang har det dock visats att en viss mängd olöst kalkningsmedel ofta ligger på bottenarna nedströms och att begränsad utlösning av denna ackumulerade kalk sker vid kontakt med surt vatten (jfr. Hindar, 1987). Effekten av en sådan utlösning kan möjligen undantagsvis moderera återförsurningen men är i alla händelser endast kortvarig. Är det en nedströms sjö som kalkas kommer framförallt eventuella kompletterande insatser direkt i sjön att ha betydelse för att påtagligt fördröja återförsurningen, vilken annars förlöper i stort i enlighet med vattenomsättningenn. Dock kommer förhöjda aluminiumhalter i det tillrinnande vattendraget att omedelbart påverka sjöns biota.

Kalkning i våtmarker och på avrinningsområdets jordar

De båda spridningsmetoderna som utnyttjar olika delar av avrinningsområdets jordar innebär ofta högre doser och kvarliggande förråd, även om numera också våtmarkskalkning sker för kortare tidsperioder (lägre doser). Fördelen med båda dessa metoder är ju bl.a. att en särskilt eftersträvd utfällning av aluminium (och delvis övriga metaller) sker på land istället för i sjön eller vattendraget. Detta minskar tillförseln till sjön eller vattendraget och därmed framförallt halten i vattnet men även ackumuleringen i sedimenten. Stora mängder utfällt aluminium kommer därför att finnas inom våtmarker som kalkats. En mer eller mindre

heltäckande kalkning av avrinningsområdets jordar innebär att vanligen höga eller mycket höga doser (storleksordningen 3 till 5 ton ha⁻¹) distribueras, men en sådan behandling måste ofta inledningsvis kombineras med annan åtgärd (sjö eller våtmark) för att bli effektiv även kortsiktigt. Metodiken innebär en engångsinsats, som resulterar i låg årlig utlösning men längre kvarstående effekt, och om den är tillräcklig för att neutralisera avrinningsvattnet så kommer återförsurning inte att ske. Uppnås inte detta mål blir dock återförsurningsförloppet mycket utdraget och särskilt utläckaget av aluminium motverkas under lång tid, varför den direkta biologiska effekten sannolikt kan bli försumbar eller tämligen ringa (Andersson *et al.*, 1982; Wilander *et al.*, 1995; Traaen *et al.*, 1997).

Målsättningen med alla fyra åtgärdsmetoderna är primärt att motverka försurningens biologiska effekter i form av skador på känsliga organismer eller fiskpopulationer. Eftersom en stor del av dessa förändringar sammanhänger med de toxiska effekterna av oorganiskt labilt aluminium (se t.ex. Rosseland och Staurnes, 1994; Havas och Rosseland, 1995) så är metodernas effektivitet att fälla ut aluminium (reducera toxiciteten) av stor vikt för hur de positiva förändringarna av kalkningen utvecklas. Vid direkt sjökalkning och dosering i vattendraget sker denna utfällning i vattensystemet och eftersom det ibland är en tidskrävande process så kommer s.k. blandzoner att uppstå. Studier i framförallt norska älvar har visat att i dessa zoner är toxiciteten högre än i det obehandlade sura vattnet (Rosseland och Hindar, 1991; Rosseland *et al.*, 1992). Liknande blandzoner finns kanske alltid i viss utsträckning i samband med surstötter i vattendrag och i kalkade sjöars littoralzon (jfr. Hultberg, 1977; Hasselrot *et al.*, 1987) och kan antas utöva en påtagligt negativ faktor för känsliga organismer (Hagen och Langeland, 1973; Hultberg och Andersson 1982; Henrikson, 1988; Barlaup *et al.*, 1998). Förekomsten av dessa blandzoner bör alltså uppmärksammas och minimeras i samband med operationell kalkning. I ett inledande skede av en återförsurning finns risk för att blandzonerna kan bli mer omfattande, både till sin utbredning och tidsmässigt. Fenomenet kan bli särskilt påtagligt i områden med kvarvarande kraftig markförsurning där inflödet av vatten med höga aluminiumhalter kan komma att drabba större områden närmast stränderna och medföra effekter på känsliga organismer.

Återförsurning och metaller

Många metallers koncentration i vatten är starkt beroende av pH. Vid sjunkande pH förändras proportionen av olika förekomstformer mot en större andel lösta former, vilket även medför ökade totalhalter i vattenfasen. I samband med försurningen av sjöar och vattendrag har därför ofta förhöjda halter av många olika metaller observerats både i vatten och i organismer. Framförallt är det Al, Mn, Zn, Cd och Pb som uppvisat förhöjda halter, medan även Fe har ökat i extremt sura vatten. I allmänhet minskar halterna av ovannämnda metaller efter kalkning (Dickson, 1980; Borg, 1983; Borg och Andersson, 1984; Borg *et al.*, 2000, Molot *et al.*, 1990a). Eftersom de minskade halterna beror på utfällning inom vattensystemet i många direkt kalkade vatten, så kan en återförsurning förväntas innebära ökade halter genom minskad utfällning och sedimentation av tillförda metaller. Detta motverkas delvis vid våtmarkskalkning och ffa. i samband med mer omfattande kalkningar av avrinningsområdets jordar, eftersom metaller då fastläggs i marken. I direkt kalkade system tillkommer dessutom en risk för att metall deponerad i sedimenten ska lösas ut i samband med att vattenfasen blir surare. Som tidigare beskrivits, ökade både zink- och kadmiumhalterna i vattnet 4 till 6 ggr då den tidigare kalkade sjön Råvekärrs Långevatten återförsurades (Dickson *et al.*, 1995). Om detta beror på utlakning från sedimenten är dock inte klarlagt. I samband med sjunkande pH har även en ökning av labilt oorganiskt aluminium noterats både i fält och laboratoriestudier (se vidare under avsnittet ovan om återförsurningsstudier).

Ökningen av metallhalter i vattenfasen p.g.a. återförsurning torde dock inledningsvis kunna motverkas av kvarvarande kalkdepåer i sedimenten. Hindar och Lydersen (1997) har värderat detta för aluminium, som har stor benägenhet att fällas ut till sediment och bindas i våtmarkskalkade områdens ytliga humusrika jordar. De postulerar att några starkt förhöjda halter inte är att förvänta p.g.a. utlösning av aluminium från sådana "förråd" vilka ackumulerats under tiden för kalkning. Laboratiestudier med sediment har dock visat att Al, Zn, Cd, Mn, och i viss mån Pb kan lösas ut från sedimenten vid sjunkande pH i vattenfasen (se tidigare avsnitt). Den ekotoxikologiska relevansen av dessa förhöjda halter, dvs den dos av metaller som vatten- och sedimentlevande organismer skulle komma att utsättas för återstår dock att klarlägga. Sådana metalleffekter torde främst kunna förväntas inom områden med kraftig markförsurning, där kvarstående försurningsbelastning på ytvattnen kommer att vara relativt hög under lång tid och resultera i låga pH-värden. Förekomsten av toxiska aluminiumformer i försurade vatten är en huvudorsak till de skador som uppkommer i sjöekosystemet (t. ex. Baker och Schofield 1980; Driscoll *et al.* 1980; Rosseland och Skogheim 1986; Herrmann *et al.* 1993; Rosseland och Staurnes 1994; Havas och Rosseland, 1995;), varvid bidraget från bottarna sannolikt har mindre betydelse jämfört med den stora tillförsel som sker via avrinningsvattnet från de försurade markerna.

Problemet med kvicksilverbelastningen på fisk är en annan fråga, som kan vara av betydelse vid återförsurning. Den effektiva bioackumuleringen och biomagnifieringen har medfört att belastningen i biota är högre i försurade sjöar med utarmad och förändrad näringsväv, t.ex. där mörten har dött ut (Björklund *et al.*, 1984; Nilsson *et al.*, 1989), vilket framförallt är tydligt hos en toppredator som gädda. Efter kalkning har oftast resultatet blivit minskade Hg-halter i gäddan, även om variationen ibland varit stor, och ibland har t.ex. hos yngre abborre observerats signifikanta tillfälliga haltökningar (Andersson och Kärrhage, 1984; Hasselrot, 1985; Andersson *et al.*, 1995; Meili, 1995).

Fortfarande finns betydande osäkerheter om hur olika kalkningsmetoder påverkar transport och omsättning av kvicksilver såväl inom vattensystemen som vilken betydelse den externa belastningen från tillrinningsområde och direktdeposition har i olika situationer. Olika beräkningar baserade på observationer från ett fåtal platser ger varierande resultat, men även i det typfall (det kraftigt försurade Gårdsjöområdet) där den externa belastningen antas vara den dominerande faktorn för belastningen på biota kan sjöintern produktion av metylkvicksilver fortsatt vara betydelsefull (jfr. Hultberg *et al.*, 1995; Rudd, 1995). Förändringar i sjöarnas ekosystem som påverkar produktion, omsättning samt bioackumulering kan alltså vara viktiga för den aktuella belastningen av kvicksilver i fisken liksom också den externa tillförseln, vilken dessutom kan påverkas av ändrade förhållanden inom avrinningsområdet (jfr. Hultberg och Munthe, 2001). Observerade förändringar, bl.a. i sjöintern processer, indikerar att flera olika processer kan bidra till att öka koncentrationen av metylkvicksilver i fisk i samband med försurning (Schindler 1999) och kalkning kan därvid förväntas reversera dessa processer resulterande i sjunkande halter i fisk, som följaktligen ånyo skulle kunna öka i samband med återförsurning.

Kunskap om hur den externa tillförseln av metylkvicksilver påverkas av olika behandlingsmetoder i tillrinningsområdet är för närvarande mycket bristfällig. Vissa observationer finns dock där våtmarkskalkning har givit ökade halter i fisk, men det kan inte uteslutas att direkta och indirekta sjöinterna processer också varit betydelsefulla i dessa sammanhang (jfr. resonemanget ovan; Meili, 1995). Med reservation för kunskapsbrist om eventuella förändringar av den externa tillförseln kopplat särskilt till våtmarkskalkning kan ändå antas att, oberoende av kalkningsmetodik, sjöinterna processer alltid kan vara mycket

viktiga för halterna av kvicksilver i sjöars fiskfauna (jfr. Rudd, 1995). Liksom för den externa tillförseln saknas mer generellt observationer över hur den sjöinterna produktionen av metylkvicksilver påverkas av försurning respektive kalkning.

En kraftig försurning leder vanligtvis till stora förändringar av biomassor och produktion och en fungerande kalkning syftar a priori till ett återställande av dessa förändringar. I båda fallen påverkas de trofiska relationerna mer eller mindre vilket skulle kunna vara en viktig mekanism för de skillnader som observerats i olika sjöecosystem. Förkortade och delvis förändrade näringskedjor samt en mycket mindre total fiskbiomassa i sura sjöar skulle alltså kunna resultera i en högre halt hos gäddan i ett system med oförändrad belastning av metylkvicksilver. Höga Hg-halter i gädda har ofta observerats i sura sjöar där mörten har dött ut varvid gäddan vanligen har utnyttjat alternativ, t.ex. abborre, som dominerande födoresurs. Abborren har vid samma storlek högre kvicksilverhalt än mörten (Björklund *et al.* 1984) och ackumuleringen av kvicksilver i gäddan accelererar vid ett sådant skifte. Än mer markant kan denna effekt bli i särskilda fall där större gäddor sannolikt i högre grad uppträder som en kannibalistisk toppredator vilket kan resultera i mycket hög kvicksilverhalt (Hultberg, opubl.). Situationen förändras ofta genomgripande vid kalkning då befintliga populationer utvecklas och ibland tillkommer nya fiskarter, varvid såväl tillväxthastighet hos gäddan som den totala fiskbiomassan ökar. Liknande utveckling sker för en del andra organismgrupper och sjöns ekosystem blir slutligen mer komplett och komplexiteten ökar till en mångfacetterad "näringsväv". En återförsurning riskerar, enligt ovanstående resonemang, att åter kunna leda till ökande halter av kvicksilver i gädda med en fördröjning på några år relaterat till att fisk ibland har en ansevärd livslängd, och effekten skulle vanligtvis bli tydlig först när de nya generationerna av fisk kommer att dominera i populationerna.

Förutom kvicksilver och aluminium finns det även belägg för att zink och kadmium i många sjöar i försurade områden i Sverige förekommer i haltnivåer i sjövattnet som ligger nära de lägsta kända effektnivåerna (20 respektive $0,1 \mu\text{g l}^{-1}$, Naturvårdsverket 1999). Detta kan således förväntas även vid en långt gången återförsurning i tidigare kalkade vattensystem. När det gäller kadmium finns också resultat som pekar på en minskad bioackumulering vid lägre pH, jämfört med neutrala förhållanden (se vidare Appendix).

Riksinventeringen 1995 (Wilander *et al.* 1998) visade på relativt låga halter av metaller i svenska sjöar (Cd t.ex. median $0,01 \mu\text{g l}^{-1}$), men med högre halter av både kadmium och bly i surare vatten. Det bör dock noteras att riksinventeringen, som är en engångsundersökning, denna gång genomfördes under hösten, en period på året när metallhalterna i vattenfasen ofta är lägre än under vintern och våren, p.g.a. den högre partikelbildningen och sedimentationen under sommaren. Som regel kan en tydlig temporalvariation i sjöar konstateras, med högre halter under vintern och våren (se t.ex. Borg 1987; Andersson och Borg 1988; Lithner 1989, Borg *et al.* 1989). Data från riksinventeringen är därmed inte helt representativa för metallkoncentrationen i sjövattnen genomsnittligt under året.

Sammanfattande översikt av återförsurningseffekter

Försurning - kalkning möjligen följt av återförsurning utgör i många fall omfattande förändringar av ytvattenkemin och påverkar såväl direkt som indirekt biotat i de drabbade

ekosystem. Befintliga svenska observationer av återförsurning är mycket få och detta begränsade empiriska underlag kan dessutom endast kompletteras med resultat från något enstaka försök i Norge respektive Nordamerika (jfr. Appendix). Denna idag tillgängliga kunskap om effekterna i samband med återförsurning av kalkade sjöar kan dock kompletteras med mer generell kunskap från framförallt de omfattande skandinaviska studierna av effekter vid försurning och kalkning. En serie olika effekter kan förväntas uppträda i samband med en kraftig återförsurning ($\text{pH} < 5.4$) av tidigare kalkade sjöar vattendrag (för vattendrag är dock kunskapsbristen i det närmaste total vad gäller biologin). Utgående från ovanstående underlag kan följande hypoteser om förändringar vid en sådan återförsurning formuleras:

- ökad rörlighet av många metaller (framförallt de som förekommer som katjoner), förändrad förekomstform i riktning mot mer biologiskt tillgängliga och därmed mer giftiga former (t.ex. aluminium)
- ökad kemisk/biologisk fastläggning och minskad återcirkulation av fosfor från bottenarna (oligotrofiering)
- förändringar inom främst de lägre trofinivåerna samverkar och medför en minskad cirkulation av näringsämnen vilket bidrar till oligotrofieringen av pelagialen
- trofiska interaktioner som predations- och konkurrensmönster förändras när fiskpopulationer förändras, minskar och slutligen försvinner helt
- återförsurningens snabba förlopp medför risk att ”icke förutsebara” kemiska och/eller biologiska effekter kan uppstå.

Trots att flera studier har initierats under de senaste åren ska de i nuläget observerade effekterna (jfr. nedan och beskrivningen av experimenten) kanske snarare ses som indikationer på reaktionsmönster (jfr. hypoteserna ovan) vilkas validering endast kan ske genom ytterligare forskning och övervakning. De båda äldre studierna, Lysevatten och Råvekärrens Långevatten, behandlar dessutom gravt försurnings-skadade sjöar. Specifikt för dessa sjöar är att de är belägna inom de områden på Västkusten som utsatts för långvarig försurningsbelastning långt över den kritiska nivån och därför har en omfattande markförsurning i tillrinningsområdena. Det sista postulatet nedan, liksom även den sista hypotesen ovan, relaterar till utvecklingen av trådalgläktet *Mougeotia* i Lysevatten till en klar olägenhet med problem för såväl bad som fiske under några år. Erfarenheterna från dessa äldre studier är dock i linje med både hypoteserna ovan och de generella resultaten från försurnings- och kalkningsstudier. Sammanfattningsvis har följande effekter observerats:

- förändrad vattenkvalitet medför minskad sedimentation av metaller med högre halter i vattnet som följd, utlösning från sedimenten bidrar i varierande grad
- ökade metallhalter i sjövattnet resulterar i ökad transport till nedströms belägna vattendrag och sjösystem (inom vissa system slutligen kusthavet)
- försurningskänsliga växt- och djurplankton minskar och ersätts delvis av nya tåligare arter
- försurningskänsliga bottenlevande evertebrater minskar och försvinner slutligen andra tåliga arter tillkommer eller ökar
- fiskpopulationer minskar och försvinner till sist, genom störningar av reproduktion och rekrytering
- fiskens kondition minskar liksom fångstbarhet i överlevande fiskpopulationer
- beroende på utgångssituationen kan de strukturella förändringarna ge instabila ekosystem, vilket kan resultera i oönskade biologiska förändringar

Våtmarkskalkning används under speciella hydrologiska villkor men de biologiska förändringarna och effekter på intern näringscirkulation förväntas i övrigt att vara desamma som vid återförsurning efter vanlig sjökalkning. Kalkspridningen sker dock koncentrerat med höga doser varför återförsurning av sådana kalkningsobjekt kommer att medföra några särskilda karakteristika. I en pågående studie i Lofsdalen (se appendix) har följande specifika effekter observerats:

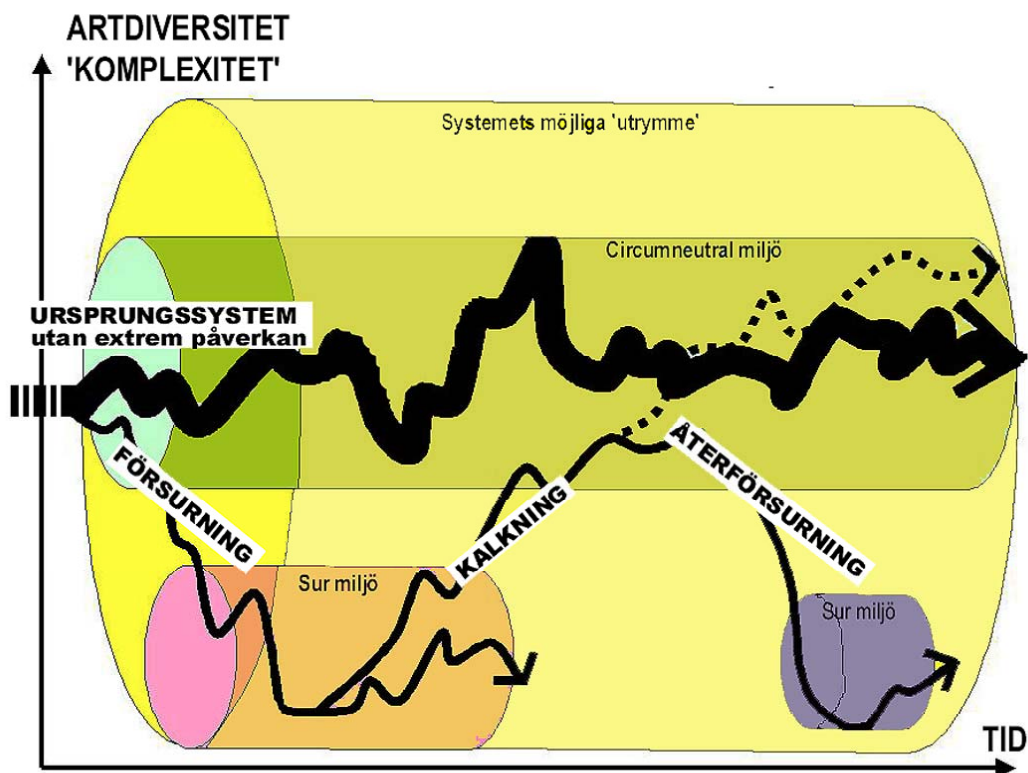
- ökad metallrörlighet i ytliga skikt av våtmarkerna, särskilt för aluminium (ändrade förekomstformer med ökad andel labilt oorganiskt aluminium)
- ökat utläckage av vissa fraktioner av humusämnen (fulvosyror) medför ökad vattenfärg och ökad utlösning från förråd av tidigare utfällda metaller
- ökad risk för utfällning av utlakat järn och mangan på vattendragens botten längre nedströms där pH-värdet återigen är högre, medför 1) försämrade livsvillkor för bottenfauna och växtlighet i strömmande vatten och 2) förstörda lekbottenar för fisk i både sjöar och strömvatten

I sjöar och vattendrag med från början ringa eller måttlig försurning kan en återförsurning (sällan till pH-värden mycket <6,0) förväntas resultera i mer marginella effekter särskilt med hänsyn till den fortgående minskningen av belastningen. I de flesta fall kommer endast de allra känsligaste arternas populationer riskera att påverkas. Inom vissa regioner utgör dock surstötter med inflöden av temporärt förhöjda halter av oorganiskt aluminium fortsatt ett hot som kan resultera i mer omfattande, men vanligen tillfälliga, effekter. Mer regelbundet uppträdande surstötter riskerar dock, särskilt i de fall fiskpopulationer påverkas negativt, leda till mer bestående effekter beroende på förändringar av interaktionsmönster. Surstöterna riskerar dessutom mera allmänt att utgöra ett allvarligt problem i många vatten under den långa återhämtningsfasen, vilken startat genom att den försurande depositionen minskat, men som i de mest extremt försurningspåverkade områden kommer att pågå åtskilliga decennier.

Ett särfall utgör de vatten som, framförallt i nordligare lågbelastade områden, kalkats såsom varande sura, men där dagens kunskap i många fall visat att den viktigaste faktorn är en naturlig försurning via tillförsel av ansevärd mängder organiska syror under högflöden (t.ex. Bishop och Pettersson, 1996; Laudon, 2000). En slopad kalkning resulterar naturligtvis även i dessa system i en återförsurning, till en situation som möjligen utgör den ”naturliga”, varvid kalkning kanske har skett utifrån fel kriterier. Denna problematik hanteras dock bäst i samband med den översyn av kalkningarna som föreslås nedan (jfr. i avsnittet om ”Bedömningskriterier för återförsurning av kalkade vatten”).

Återverkningar på den biologiska mångfalden

En återförsurning av sjöar och vattendrag innebär i huvudsak att en utveckling startas i riktning mot ett försurat ekosystem vars särdrag slutligen beror av såväl försurande belastning (slut-pH) som hastighet i förloppet samt systemets initiala status (artstruktur och funktion). Utvecklingen av ekosystemets artdiversitet kan åskådliggöras genom nedanstående schematiska figur. Konceptet bygger på resultaten från studier i försurade och kalkade vatten (Henrikson och Brodin, 1995; Hindar, 1997) men med tillägg av ytterligare ett utvecklingssteg, nämligen den återförsurning som diskuterats i föreliggande rapport.



Figur 22. Schematisk beskrivning av ett sjöecosystems diversitet (artantal och komplexitet i interaktioner) under "normala" (ursprungliga systemet) förhållanden samt vid stark extern påverkan såsom försurning, kalkning och återförsurning. Cylindrarna återger områden inom vilka systemet är stabiliserat och med hög resistens mot måttlig påverkan från externa krafter eller interna förändringar. Tjock pil åskådliggör en tänkbar utveckling systemet kan genomgå via slump och normal mellanårsvariation, medan de tunna pilarna visar utveckling från ett stabilt system till ett annat vid stark extern påverkan.

Ett ursprungligt (av större externa krafter opåverkat) system kommer vid olika tidpunkter att ha en något varierande artstruktur (den kraftiga våglinjen) men ofta med ungefär samma antal arter år från år (figur 22). Långsiktigt kan dock en avsevärd artomsättning förväntas ske, denna sker dock så att viktiga funktioner hela tiden uppehålls av "komplementära arter" (jfr. Havens och Carlsson, 1998). Försurningen orsakar sedan en kraftig utarmning av arter, men inom ett relativt brett spektrum beroende på hur långtgående påverkan är. Genom kalkning initieras en utveckling mot en återgång, återigen dock inom ett vitt spektrum varför avvikelserna mot det tänkta ursprungliga cirkumneutrala systemet kan vara relativt stora. En återförsurning skulle ånyo medföra en artutarmning, men artstrukturen kan avvika (delvis markant) från den som förekom i det initialt försurade systemet eftersom utgångsläget i det kalkade systemet kan vara mycket annorlunda. I de fall där en viss försurningsåterhämtning dessutom gör sig gällande skulle detta innebära att det återförsurade ekosystemet kommer att kunna vara påtagligt mindre surt än för 30 år sedan, varvid ffa. ett högre pH skulle påverka såväl artsammansättning som total diversitet olika beroende på inom vilket pH-intervall återhämtning skett. Mycket långsiktigt kan dessutom även återförsurade system komma att sakta påverkas av pågående minskande försurningsbelastning (medför högre ANC och pH samt lägre Al-halt) och därvid att genomgå en gradvis förändring av artsammansättningen mot en struktur som är mer typisk för vatten med högre pH-värden. För att ge perspektiv på återhämtningen kan här anföras att särskilt betydelsefullt torde vara att pH-värden över 5.5 och en viss alkalinitet uppnås, varvid ett mer komplett ekosystem med flera fiskarter kan utbildas. Motsatsen utgörs av system där en kraftigt minskad belastning

visserligen resulterar i att pH ökar från t.ex. 4.5 till 5 men där även en sådan markant återhämtning av vattenkemin fortfarande i de allra flesta fall omöjliggör återkolonisering av de flesta fiskarter och systemets diversitet och funktion förblir därvid även fortsättningsvis markant förändrat med en fortsatt evertebratpredation som viktig faktor.

De förändringar som skisserats ovan innebär att ekosystemet i vissa skeden har en delvis utarmad artsammansättning och samtidigt är interaktionsmönstren i systemet påverkade i varierande grad (jfr. Schindler, 1990, Havens 1993, 1994). I sådana situationer kan en kraftig extern stress (kalkning respektive återförsurning) medföra att stora förändringar av artsammansättning och abundans kan uppstå. Förändringarna sker dock vanligen inom ett visst register av arter som är någorlunda väl anpassade till den normala variationen inom det aktuella akvatiska ekosystemet. Undantagsvis, och då för kortare perioder, kan en radikalt annorlunda systemstruktur uppstå. Sådana händelser har observerats, t.ex. blomning av planktonalger i samband med kalkning (Alenäs, 1986, Larsson 1988) eller massförökning av trådalger i samband med återförsurning (Andersson och Hultberg, 1997). Orsaken är sannolikt av att de redan stressade ekosystemen ifråga åtminstone tillfälligt har låg förmåga att anpassa sig till förändringen. Inom ett system med mycket få arter är komplementariteten låg, vilket kan innebära att bortfall av någon art medför förlust av en viktig funktion eller reglerande interaktion. Som följd kan till synes slumpmässigt en ofta "udda"art expandera och totalt dominera systemet under en tid. En inte minst tidsmässig utveckling av den nya situationen ger möjlighet för anpassade arter att kolonisera eller expandera varvid fler regleringsmekanismer återskapas och succesivt förändras systemet i riktning mot en mer "normal struktur och funktion innebärande en stabilisering, vilket också kan innebära ökad förmåga att motstå ytterligare extern stress.

SJÖAR I RISKZONEN

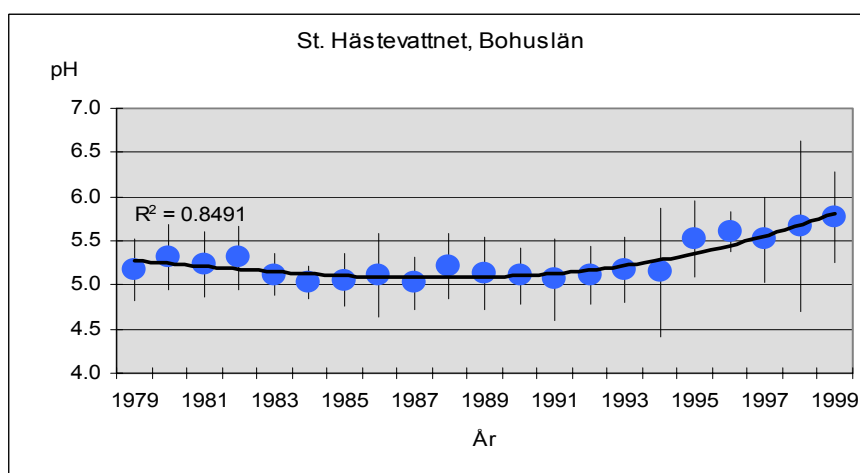
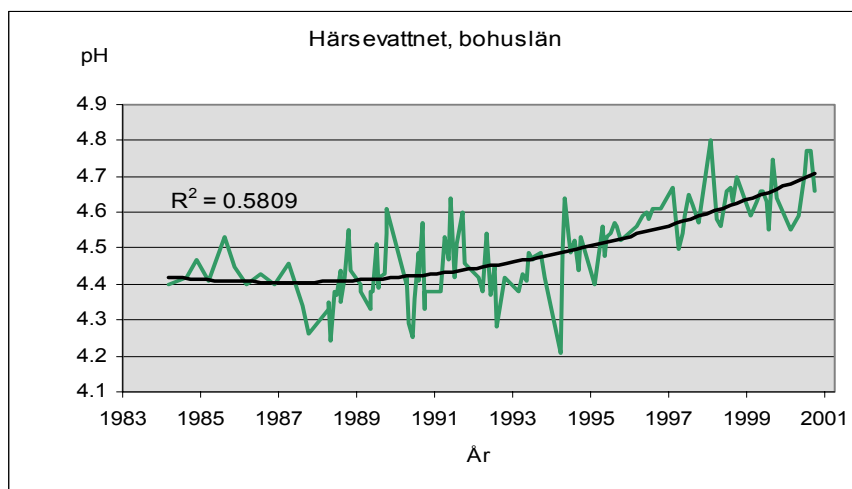
Utvecklingstrender – deposition av försurande ämnen och metaller

Försurningsutveckling

Under tidsperioden från ca. 1970, då kalkning av sjöar påbörjades, har de svenska utsläppen av svavel minskat med drygt 80 % (Ågren, 1993). När så småningom även de europeiska utsläppen minskade påtagligt har detta, främst under det sista decenniet, resulterat i en ca. 60 % reduktion av det sura nedfallet (Ferm och Hultberg, 1998). På Västkusten innebär detta en minskning från storleksordningen 25 - 30 kg S ha⁻¹ år⁻¹ till ca. 10 kg S ha⁻¹ år⁻¹ i gammal granskog. Minskningen kommer att förtgå enligt Göteborgsprotokollet så att en ca. 80 % reduktion av utsläpp och nedfall beräknas kunna ske räknat från 1990 till år 2010 (jfr också Lövblad *et al.*, 1995; Amann *et al.*, 1998). Någon liknande minskning av kvävenedfallet har hittills inte skett, utan minskningen av kvävenedfallet är mycket mindre och startade långt senare. Riskerna för en kvävemättnad, utlakning av nitrat, och därmed direkta bidrag till försurningen (jfr. Henriksen *et al.*, 1997) är dock liten för de flesta svenska ytvatten som påverkats markant av försurningen.

Reduktionen av det sura nedfallet har medfört att för en hel del ytvatten underskrids numera den kritiska belastningen, och en återhämtning kan ske utan kalkningsåtgärder. Dock överskrids fortfarande den kritiska belastningen i de mest känsliga systemen och kommer så att göra även när nu beslutade reduktioner uppnåtts, varför ytterligare reduktion av emissionerna krävs. Många av dessa känsliga system utgör de som påverkats mest och de utgör dessutom huvuddelen av kalkningsobjekten. Trots markanta minskningar av sulfathalterna har inga eller endast små förhöjningar av pH skett samtidigt som både

basketjoner och aluminiumhalt dock minskat ungefärligen proportionellt (jfr Wilander *et al.*, 1998).



Figur 23. Utvecklingen av pH i ytvattnet från den kraftigt försurade Häarsevatten (PMK-data, Inst. för Miljöanalys, SLU), samt i utloppet från norra delen av St. Hästevatten (årsmedel och 95% signifikansintervall). Alla data från 0.1 - 2.0 m djup).

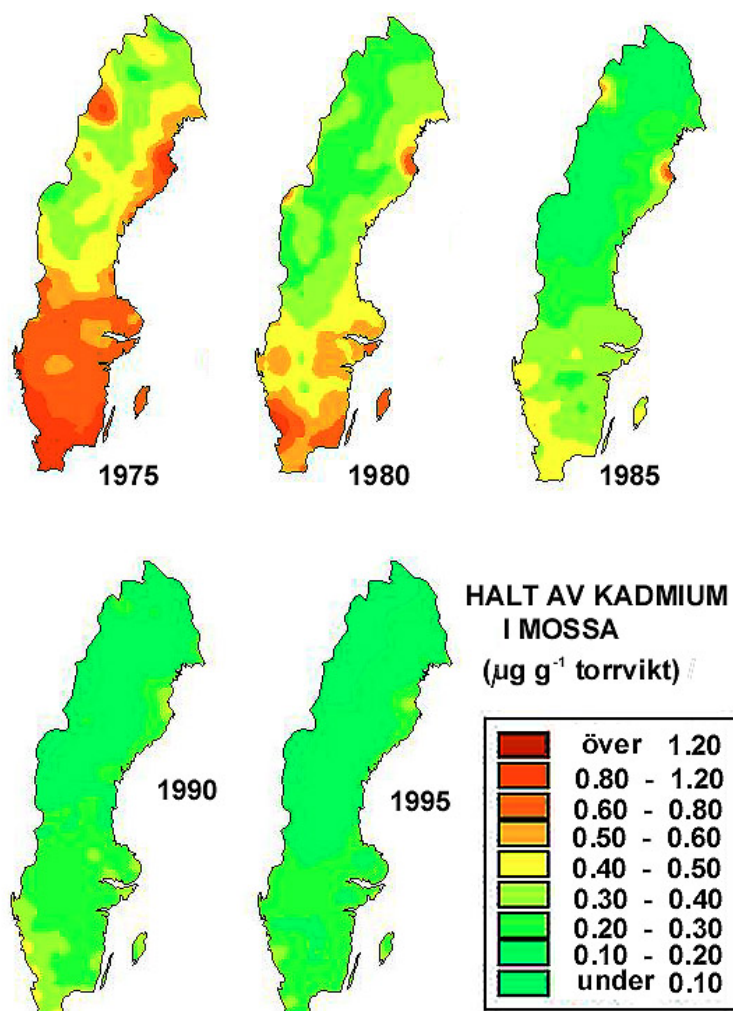
Återhämtningen i många sjöar kan förutses bli mycket långvarig beroende på ackumuleringen av svavel och förluster av basketjonförråd i jordarna, och i vissa fall finns risken att en full återhämtning överhuvudtaget inte kommer att kunna ske (Moldan *et al.*, 1999). I de fall en återhämtning inte kan förutses finns ett klart behov av andra insatser t.ex. markkalkning för att höja basmättnadsgraden och därmed uppnå de ursprungliga vattenkemiska förhållandena. Inom de hårdast försurningsskadade och extremt känsliga områdena (främst inom sydvästra Sverige) kommer alltså ett stopp av kalkningarna att leda till långtgående återförsuring ($\text{pH} \ll 5,4$) med på några års sikt avsevärda biologiska effekter. Även inom dessa områden har dock ibland signifikanta förändringar av vattenkemin skett som i Häarsevatten och den närbelägna mindre försurade St. Hästevattens norra del (figur 23). Den senare skulle vid återförsurning kunna fortsatt hysa fisk, medan den förra behöver lång tid och ytterligare depositionsminskning för att även tåliga fiskarter ska överleva.

Inom många områden är försurningskänsligheten lägre (bl.a. områden i norra Sverige), och där underskrids den kritiska belastningsgränsen redan eller kommer att underskridas,

varvid en återhämtning kan förväntas ske under de närmaste decennierna (jfr Ek *et al.*, 1995). Ett stopp för kalkning i objekt inom de senare områdena kommer alltså att få avsevärt mindre biologiska effekter och förmodligen mestadels att bli av mer temporär karaktär innan återhämtningen skett även inom avrinningsområdets jordar

Metalldepositionen

Depositionen av luftburna metaller har minskat under de senaste decennierna, särskilt kraftig är minskningen av de metaller, bly och kadmium, som i huvudsak härrör från avlägsna källor och förs till Skandinavien via långdistanstransport med förorenade luftmassor. Enligt mosskarteringarna i Skandinavien minskade både bly- och kadmiumnedfallet med ca. 50 % under tidsperioden 1975 till 1985, och med ytterligare 30 % respektive 15 % fram till 1990 (Bernes, 1987; Rühling *et al.*, 1987, 1992). Blynedfallet har minskat ytterligare fram till 1995, medan kadmium ligger kvar på samma nivå som 1990 (Rühling *et al.*, 1996) vilket framgår av figur 24 nedan. För bly utgör minskningen av användningen av blyhaltig bensin den viktigaste faktorn till observerade minskningar. Blynedfallet i våtdepositionen minskade proportionellt, medan inga andra metaller här minskade signifikant mellan 1985 och 1991 (Ross, 1991).



Figur 24. Nedfallet av kadmium som det återspeglas i halten av mossor. Från Rühling *et al.*, 1996.

Övriga tungmetaller som Zn, Cu samt Cr och Ni med ett väsentligt större lokalt bidrag har inte minskat lika mycket. För zink, som förutom de lokala källorna har ett väsentligt långdistansbidrag, var minskningen ca. 20 % och liknande minskning uppvisade nickel, medan koppar och krom uppvisade än lägre minskningar, 15 %, respektive 5 - 10 %.

Även för nedfallet av kvicksilver indikerar de senaste data att en väsentlig minskning skett under de allra senaste åren. Sålunda minskade nedfallet från ca. $25 \mu\text{g m}^{-2} \text{år}^{-1}$ under 1985 - 1989 till ca. $10 \mu\text{g m}^{-2} \text{år}^{-1}$ åren 1990 - 1992 (Iverfeldt *et al.*, 1995).

Hur stora effekter det minskade nedfallet fått på läckaget till ytvattnen från de stora förråden i avrinningsområdenas jordar är oklart och därmed hur stor den totala belastningsförändringen är. Nyligen rapporterade resultat visar att markförsurningen i Sverige fortsätter att öka trots den minskande syradepositionen (Wilander och Lundin, 2000). Den ökade markförsurningen kan medföra en fortsatt utlakning av metaller från sådana marker. För metaller som fastläggs hårt i mark såsom bly, och där direkt nedfall på sjöytan följaktligen är en viktig faktor, har dock belastningen på ytvattnen minskat kraftigt under perioden. Prognoser framtagna inom arbetet med kritisk belastning för Hg, visar att en hög belastning på fisk kommer att kvarstå under mycket lång tid, speciellt i humösa vatten, p.g.a. befintliga markdepåer av Hg (Meili *et al.*, 2002). I den utsträckning belastningen från avrinningsområdet minskat mera generellt så kommer bidraget från metallförråd utfälda p.g.a. kalkning naturligtvis att relativt sett bli viktigare i samband med återförsurning.

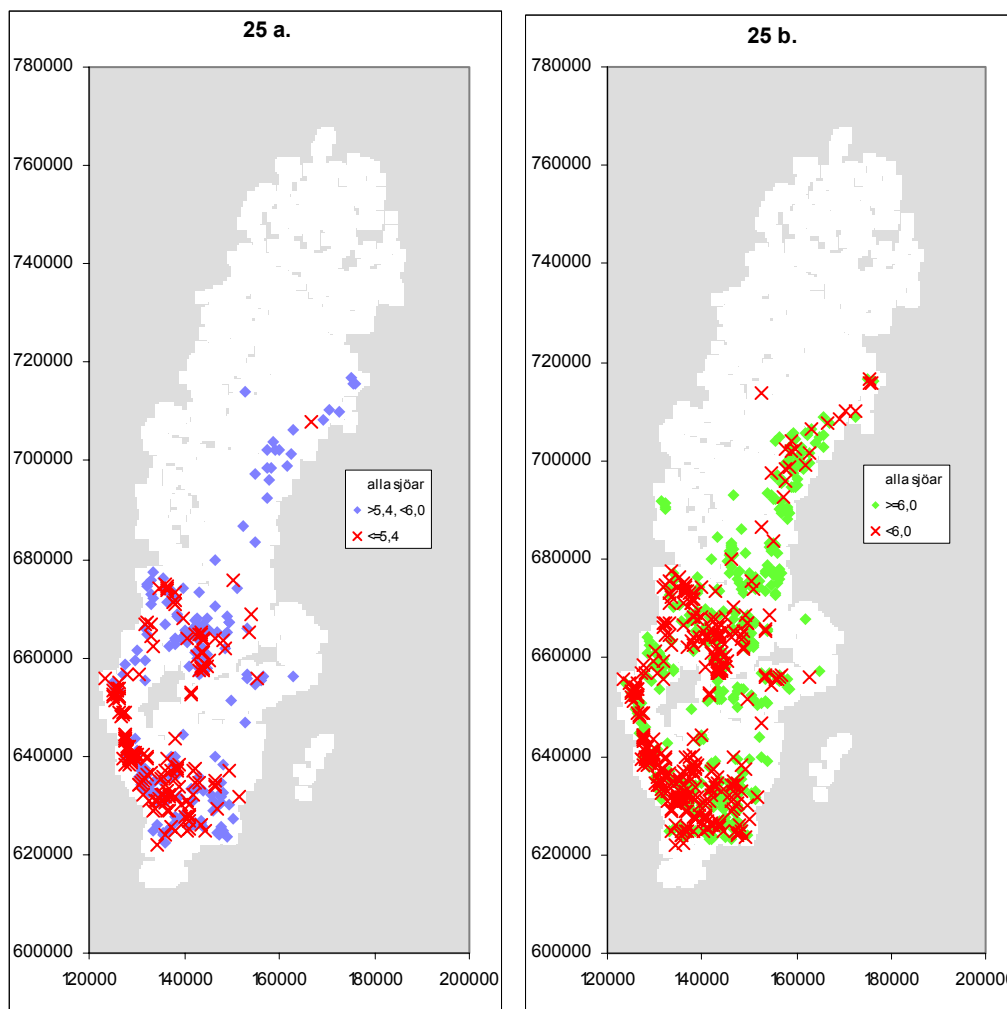
Försurade och kalkade sjöars pH-utveckling vid återförsurning

I syfte att försöka prognostisera omfattningen av skadorna vid återförsurning har beräkningar gjorts av antalet sjöar som kan klassas som mest känsliga för en återförsurning, dvs. pH vid återförsurning blir $< 5,4$. Dessutom redovisas ytterligare en klass som omfattar de sjöar som vid en återförsurning beräknas få pH-värden någonstans mellan 5,4 och 6,0 (figur 25 a). Slutligen redovisas en sista klass som omfattar alla sjöar som enligt våra beräkningar inte skulle få pH-värden under 6,0 vid ett stoppande av kalkningen (figur 25 b). De sistnämnda sjöarna är den del av samtliga kalkade sjöar som inte kommer att i egentlig mening undergå någon återförsurning.

De data som användes vid beräkningarna är hämtade från riksinventeringen våren 1990 (Bernes 1991), där vi har fått tillgång till pH före kalkning i de kalkade sjöarna. Totalt innefattar detta material 4017 sjöar varav 618 är kalkade och 136 är påverkade högre upp i vattensystemet utan att själva vara kalkade. Materialet baseras på ett slumpmässigt urval och kan extrapoleras till vad detta skulle innebära för de totalt ca. 7500 sjöar som kalkats.

Svaveldepositionen har minskat med ca. 60 % sedan slutet av 1980-talet. Den totala syradepositionen, inklusive bidrag från kväve, har minskat nästan lika mycket. Om vi generellt antar att en ca. 50 - 70-procentig reduktion skett, motsvarar detta vid ett nytt jämviktsläge en pH höjning som blir beroende av de specifika förhållandena i varje enskilt fall, vilket kan approximeras med den s.k. F-faktorn (jfr. Henriksen, 1980). Såväl F-faktorn som relationer mellan pH och kvoten icke marint kalcium / sulfat eller kalcium + magnesium / sulfat varierar, men överslagsmässigt har beräkningar skett för några typfall med hjälp av ekvationer givna av Hultberg (1985b). Med antagande av att F-faktorn har värdet 0,5 resulterar beräkningarna i pH-ökningar av storleksordningen 0,2 - 0,6 enheter vid pH-värden kring eller under 5,0

För beräkningarna, baserade på pH-data i svenska sjöar i riksinventeringen våren 1990 (Bernes 1991) före kalkning, valdes för enkelhetens skull ett värde på 0,3 pH-enheter som den ökning den nuvarande depositionsminskningen ger upphov till (dvs. pH före kalkning + 0,3). Observera dock att återhämtningen är en starkt tidsberoende process och ”jämvikt” uppnås i många fall först efter lång tid.



Figur 25. Karta baserad på riksinventeringen 1990. Axlarna representerar x- och y-koordinater. De vita punkterna representerar hela sjömaterialiet. **25 a.** De röda kryssen representerar de mest känsliga sjöarna dvs. pH vid återförsurning blir $< 5,4$ och de lila rutorna representerar de sjöar som vid en återförsurning beräknas få pH-värden mellan 5,4 och 6,0. Enligt beräkningar (se texten) riskerar 22 % av de kalkade sjöarna att nå pH 5,4 eller lägre. **25 b.** De röda kryssen representerar de sjöar som vid en återförsurning beräknas få pH-värden $< 6,0$ medan de gröna rutorna omfattar de sjöar som enligt våra beräkningar inte skulle få pH-värden under 6,0 vid ett stoppande av kalkningen.

Andelen sjöar som kan komma att återförsuras till pH 5,4 (motsvarar alkalinitet = 0, d.v.s. buffringsförmågan slut) i detta material blir då ca. 22 %, och andelen sjöar med pH ner till pH 6,0 blir ca. 53 % (figur 25). Av de kalkade sjöarna i Sverige utgör dessa andelar alltså ca. 1700 st. respektive 4000 st. Som väntat visar kartan att det stora flertalet av de sjöar som kan komma att återförsuras till pH-värden under 5,4 är belägna inom de områden i SV Sverige som är mest försurningsskadade. Av beräkningarna framgår alltså att i storleksordningen hälften av de kalkade sjöarna inte skulle återförsuras (få pH $< 6,0$) vid en

stoppad kalkning. Även vid detta pH-värde riskerar dock de allra mest känsliga organismerna att kunna påverkas.

Att särskilja ytterligare pH-nivåer med gränser vid ca. 6,2 - 6,4 för att kunna garantera att inga skador uppstår på de mest känsliga organismerna kan inte anses meningsfullt. Vissa av dessa organismer kan vara sällsynta och kanske hotklassade arter och här bör snarare en försiktighetsprincip gälla. Detsamma gäller också avseende garantier för att de mycket känsliga anadroma arterna lax och havsöring i vissa vattensystem inte påverkas negativt vid en stoppad kalkning. En återförsurning kontra återhämtning är starkt tidsberoende förlopp och skulle i princip kräva en dynamisk modellering för att ge rätt tidsperspektiv på när kalkning kan stoppas.

SLUTSATSER OCH REKOMMENDATIONER

Slutsatser

- En avslutning av kalkningsåtgärderna kommer i många sjöar oundvikligen att leda till återförsurning i varierande grad beroende av den aktuella sjöns belastningssituation och tillämpad kalkningsstrategi. Sålunda finns det ca. 4000 sjöar där pH skulle komma att bli lägre än 6 och ca. 1700 sjöar där pH i slutskedet skulle komma att understiga 5,4. Detta trots att den försurande svaveldepositionen har minskat mycket kraftigt (> 60 %) sedan slutet av 1980-talet.
- Nära hälften av antalet kalkade sjöar (3500 sjöar) med från början måttligt eller ringa kalkbehov kommer med hänsyn till den pågående minskningen av belastningen inte att återförsuras, d.v.s. pH förblir > 6,0. En del av dessa sjöar och framförallt vattendrag kommer dock att åtminstone temporärt kunna påverkas av surstötar varvid dock effekterna kan förväntas bli marginella eller måttliga.
- Återförsurningen kommer att förlöpa som en reversering av den vanliga positiva utveckling som kalkningen medfört, vilket innebär att känsliga arter ånyo kommer att minska och slutligen försvinna med mer eller mindre omfattande förluster av biologisk mångfald som resultat.
- Skador på nyckelarter som fisk kommer att påskynda de negativa förändringarna genom att predationen minskar, och därmed förändras regleringen inom ekosystemet.
- I system där kalkningen relativt nyligen är påbörjad och återhämtningen är ofullständig, kan slumpartat en negativ utveckling ske p.g.a. brist på intern stabilitet. Sannolikt förblir sådana effekter relativt kortvariga men risken för att det negativa ekosystemet stabiliseras är inte möjlig att förutse..
- Den stora hastigheten varmed återförsurningen kan ske, riskerar i starkt belastade sjöar att medföra stora biologiska förändringar och särskilt i sjöar där återhämtning efter kalkning är ofullständig.
- Det finns indikationer på att metallhalterna i vattenfasen under vissa förhållanden skulle kunna öka som följd av utlakning från sedimenten. Omfattningen av denna metallutlösning är dock oklar, d.v.s. det är inte klart vilka sjöar som skulle komma

att drabbas mest. Störst är dock risken i starkt försurade sjöar som har kalkats under lång tid och som ligger inom hårt försurningsbelastade regioner.

- Kvicksilverbelastningen i fisk kan åter öka i sjöar som återförsuras till nivåer där genomgripande förändringar av näringsväven i ekosystemet sker.
- En återförsurning inom större områden kommer p.g.a. lokalt ”utdöende” av vissa känsliga organismer att försvåra och fördröja en återhämtning av biologin i en framtid då försurningsbelastningen generellt nått under den kritiska belastningen.

Bedömningskriterier för återförsurning av kalkade vatten

Återförsurningen av många sedan länge kalkade ytvatten kommer att medföra stora förluster av biologisk mångfald och kan i värsta fall, om inte noggrann planering sker, komma att drabba även hotklassade eller sällsynta arter, kanske främst de som förekommer i olika vattendragsmiljöer. Det är dessutom nödvändigt att beakta fiskets intressen eftersom skadorna på fiskpopulationer och därmed möjligheten till utnyttjande för främst sportfiske varit en viktig faktor för val av kalkningsobjekt. med hänsyn till naturvårdens och fiskets intressen är det därför av vikt att lokal planeringssamverkan och förankring av ev. förändringar sker.

I den fortsatta kalkningsverksamheten föreslås följande procedur där i huvudsak den värdering som ligger till grund för ett 100 % bidrag primärt bör beaktas vid prioriteringen:

- Många av de större projekten med 100 % bidrag utgör kalkningar av hela vattensystem eller större sjöars tillrinningsområden. Dessa kalkningsinsatser bör ses över i ljuset av att svaveldeposition idag är ca. 60 % lägre än för ett decennium sedan och dessutom förväntas sjunka ytterligare. Vid översynen bör även ökad kalkningsinsats beaktas där så kan krävas för att nå målsättningarna. Minska kalkningarna endast om detta kan ske utan att pH sjunker under 6,0 och vattenhalten av labilt oorganiskt aluminium överstiger $20 \mu\text{g l}^{-1}$. För vattendrag med lax eller havsöring bör gälla att pH inte får underskrida 6,2 (eller t.o.m. 6.4) och labilt oorganiskt aluminium inte får överskrida $20 \mu\text{g l}^{-1}$ under den kritiska smoltifieringsperioden (senvinter – vår). Om det finns risk för att återförsurningseffekter ska drabba sjöar eller vattendrag med välkända förekomster av hotklassade arter, särskilt evertebrater, bör reduktion av kalkningarna undvikas eftersom dessa arters allmänna status delvis är dåligt känd.
- Se över kalkningsprojekt inom de regioner i landet där den kritiska belastningen av svavel redan underskrids eller kommer att så göra inom en snar framtid. Inom många av dessa områden torde markförsurningen och därför också läckaget av toxiska aluminiumformer vara väsentligt lägre än inom områden med historiskt eller fortsatt hög svaveldeposition. Optimera kalkningsstrategierna och vidtag reduktioner om risken för återförsurningsskador är liten ($\text{pH} > 6,0$ och halter av labilt oorganiskt aluminium $< 20 \mu\text{g l}^{-1}$ även efter reducerad kalkning). Observera dock särskilt risken för *surstötar* vilka fortfarande kan ge skador på fisk med risk för kaskadeffekter inom ekosystemet.
- I en hel del kalkningsobjekt var de initiala försurningsskadorna mycket små eller obefintliga. Genom kalkning av sådana objekt har försurningsskador kunnat undvikas (förebyggande skydd). Se över och värdera alla sådana objekt i relation till den

minskade belastningen och grundkriterierna för vattenkemin, $\text{pH} > 6,0$ och halter av labilt oorganiskt aluminium $< 20 \mu\text{g l}^{-1}$. Ta dock särskild hänsyn till att dessa system kan innehålla **mycket känsliga** arter eftersom påverkan initialt var liten. Systemen kan dessutom utgöra viktiga refuger för kommande återkolonisation av dessa arter till andra mer drabbade vatten.

- Inom områden med hög belastning bör ”övriga” projekt (ej 100 % statsbidrag) ses över i avsikt att utarbeta en optimal strategi för att minimera skador om en reduktion av verksamheten av någon anledning skulle bli nödvändig. Varje reduktion av kalkningen kommer inom dessa områden oundvikligen att leda till en mer eller mindre långtgående återförsurning med risk för allvarliga skador på ekosystemet. Alternativa strategier kan innebära längre tidsmellanrum mellan kalkningsinsatserna och/eller minskade kalkdoser vilket dock ökar riskerna för negativa effekter. Men dessa strategier borde snarast ses som ett kortvarigt alternativ i en akut situation (tillfällig medelsbrist) då risken ökar för surstötter och påverkan under extremt regniga år. Kaskadeffekter genom olika trofinivåer orsakade av att fiskpopulationerna påverkas starkt bör undvikas. I detta sammanhang bör dessutom risken för ökade kvicksilverhalter i fisk särskilt beaktas. Om nedskärningar ändå måste ske, anlägg ett perspektiv där kalkade refuger behålles som framtida kolonisationscentra.

Prioriterade forskningsinsatser om återförsurning

Större förändringar i kalkningsverksamhetens omfattning vilka medför återförsurning måste ovillkorligen följas upp genom kemiska och biologiska monitoringprogram. Detta är viktigt både för att få nödvändig kunskap för det framtida återhämtningsförloppet och för att kunna minimera skador i nuläget. Det samlade kunskapsunderlaget om effekter av återförsurning är begränsat. Det härrör dessutom i huvudsak från starkt försurade sjöar i vilka noterade effekter som följt i samband med återförsurningen möjligen inte är helt generaliserbara. Därför föreslår vi att följande punkter bör beaktas i ett nytt forsknings- och uppföljningsprogram:

- Effekter av återförsurning studeras i långvarigt kalkade vatten (15 - 20 år) både mer detaljerat (forskningsprogram) och på monitoringbasis.
- I dessa studieobjekt bör också studeras hur den biologiska strukturen förändras och hur detta påverkar kvicksilverhalten i fisk och andra organismer vid återförsurning.
- För att detaljstudera de biologiska interaktionerna i samband med återförsurning och för att kvantifiera omsättningen av aluminium, tungmetaller och närsalter medelst massbalansmetodik bör mer omfattande forskningsprojekt startas i några lämpliga sjösystem.
- Slutligen bör genomföras undersökningar (värdering) av olika metoder för att undvika negativa effekter av surstötter i sjöar och vattendrag där kalkning upphör, och där försurningen initialt var måttlig.

Appendix: Perspectives on reacidification

Assessment of biological effects caused by reacidification of limed waters, a literature review

B. Ingvar Andersson, Swedish Environmental Research Institute, Gothenburg (IVL)
Hans Borg, Institute of Applied Environmental Research, Stockholm University (ITM)
Frida Edberg, Institute of Applied Environmental Research, Stockholm University (ITM)
Hans Hultberg, Swedish Environmental Research Institute, Gothenburg (IVL)

Report to the Swedish Environmental Protection Agency, 991220
Contract 012-011-98-01, Dnr 802-000169-97-FF

PREFACE

In Sweden, the severe biotic damages to surface water biota caused by acidification have been counteracted in two principally different ways. One is a decrease of emissions of acid precursors involving both legislative procedures and more general changes of processes and community policies. The other being a direct intervention by neutralisation of acidic surface waters whereby protection of endangered biota is offered or, in the case of damages occurring, a possibility for “restoration” is created. Changes of emissions have been successful in a Swedish perspective, but a general decrease in acidic deposition was not very effective until early in the 1990ies, when the European common efforts became significant, with an overall reduction of approximately 40 % by 1995. An improvement due to this decrease in acid loading still has to be proven for a large majority of Swedish surface waters though. Meanwhile, many thousands of acidified lakes and well above a ten thousand kilometres (probably in the range of 12000 km) of streams have been treated with limestone for neutralisation to protect sensitive ecosystem.

It is probable that this liming policy hitherto has protected and saved more biotic diversity than any other management procedure in Sweden, though the full comprehension of the liming effort in this context still has to be finally evaluated. Nevertheless, without the operational liming programme initiated in 1976, a lot more unique fish strains and other biotic diversity had been extinguished today, and a recovery or “restoration” being much prolonged or more difficult to perform. Then recently, it was suggested by a governmental proposition that this liming effort should be decreased, thereby creating a risk for reacidification of limed objects and new threats to sensitive biota of the surface waters subject to this development. In order to achieve a perspective on the risks that different ecosystems may encounter and find criteria for prioritising of objects, a review of the reacidification issue has been initiated.

This report is a literature review focused on the objective to estimate the possible effects and potential risks for biological damage caused by a reacidification of limed surface waters. However, as there are few actual reacidification studies, the evaluation has to be based by and large on abiotic and especially biotic effects observed in connection with acidification and liming. In the paper, by definition reacidification of limed waters is meant to be a substantial chronic change back towards decreasing ANC, increasing acidity and aluminium levels, the result of an **intentionally chosen** halting (or postponement) of further neutralisation intervention.

The result of this review, expressed opinions and recommendations for the management procedures during reduction of the liming programme are the sole responsibility of the authors. The funding for this study by the Swedish Environmental Protection Agency is gratefully acknowledged.

Ingvar Andersson, Hans Borg, Frida Edberg and Hans Hultberg

Göteborg and Stockholm, December 1999.

SUMMARY

This paper reviews effects following liming of acidified surface waters with the intention to facilitate assessment of possible ecosystem responses by reacidification. There is an obvious risk that an extensive reacidification would follow reduced liming due to an intentional reduction of the Swedish liming programme (about 25 %) when fiscal allocation of money is changed.

It is anticipated that the halting of liming in a lake causes a decrease in alkalinity and pH (reacidification) and concomitant increase in toxic aluminium forms within usually 2 to 3 residence times, *i.e.* for most lakes a time span of approximately 2 to 6 years. Thereby, the recovery process once started by the initial liming, implying a positive development of species diversity for most groups of organisms, especially the more acid sensitive snails, ephemeropterans, and some crustacean species, is halted and reversed. For the same reasons, as liming would not restore lakes and streams back to a defined pristine condition, the reacidification reversal, although hypothesised to ultimately result in loss of fish and other sensitive species, would usually not end with a final ecosystem structure identical to the originally acidified lake. However, most probably deviations in species composition from this acidic pre-treatment ecosystem might generally be rather marginal and probably without significance for the function of the new acidic ecosystem when stabilised.

Results from a few field studies focusing on reacidification indicate that changes may sometimes become drastic as species able to live in the acidic environment could at least temporarily proliferate to create nuisance problems. However, similar results have also been observed during liming and indicate a possible lack of resilience in some ecosystem probably due to a fundamental lack of species interactions that usually tend to regulate trophic levels within the lakes. Fish populations are supposed to be a key factor for this regulation. During reacidification, heavy metal concentrations would again increase, partially due to dissolution from the bottoms of deposited material, though the importance of this is unclear. Similarly, reacidification would increase toxic aluminium forms, though dissolution of stores precipitated during the liming period, as hypothesised, is probably only of minor significance for the process.

Overall, a large number (>1700) especially of southern lakes and small streams would reacidify to pH values below < 5.4 if liming were to be halted. This is due both to a continuing acid loading well above the critical load, and the profound and deep soil acidification that is characteristic for the sensitive areas subject to a prolonged and severe acidification. Furthermore, many other liming objects would acidify to levels (< 6.0) where at least very sensitive biota is damaged, and in case this affect sensitive fish populations the effects for the ecosystem will be more general as interactive patterns may change and start a cascading chain of effects. The almost complete lack of practical well documented experiences of reacidification hampers any thorough assessment, though reacidification development may be postulated to parallel initial acidification and reversing liming development. The potential for widespread biotic, in general undesirable effects, as observed in experiments indicate that sound precautionary principles must be observed and reacidification be avoided to the extent possible in case of sensitive and valuable fauna and flora components occurs in the waters that are subject to treatment.

INTRODUCTION

The first Swedish observations of decreased fish stocks in forest lakes in southwestern Sweden occurred around 1960 and later this phenomenon was associated to the increased acidity of rain due to anthropogenic emissions of sulphur dioxide (Odén, 1968). Since then, the acidification and the consecutive biotic effects in many Swedish surface waters have been a continuous urgent scientific and public/political issue. Along with the emerging Swedish awareness of acidification and the damage caused to natural resources in remote lakes and streams (*e.g.* Almer *et al.*, 1974; Grahn *et al.*, 1974; Almer *et al.*, 1978), remedial actions were implemented. These actions included both legislative procedures for emission reductions and in parallel, ameliorative or protective interventions like limings for ecosystem redevelopment (*cf.* Brinck *et al.*, 1988). Following the initial small-scale, mostly scientific, experiments with neutralisation, (*e.g.* Hultberg and Andersson, 1982) a nation wide test programme was endorsed by governmental legislation implying large-scale operational liming in a variety of lakes and streams using a multitude of methods and strategies during 1977 to 1982 (Bengtsson *et al.*, 1980).

Assessment of results of activities within the liming programme during the trial period showed a generally very positive effect on fresh water biota (*cf.* Fiskeristyrelsen and SNV, 1981; Eriksson *et al.*, 1983). Consequently, a continuation was decided on by the government (proposal 1981/82:151), starting with rather small fiscal funding during 1982 (SEK 20 millions). However, this programme became permanent and was expanded successively up to an annual budget of SEK 185 millions, though for administrative reasons activities varied somewhat and as an example, approached during 1995 SEK 200 million. This year, a comprehensive scientific evaluation was published (Henrikson and Brodin, 1995) reviewing and summing up most of what was known about experimental and operational liming; products, spreading methods, liming strategies, chemical and biological effects and an economic cost benefit analysis.

Currently, the national liming programme has included some 7500 lakes, of which approximately 6500 lakes are repeatedly treated, and another 11000 to 12000 km of running waters (encompassing small brooks to large rivers). Based on these numbers it is obvious that any substantial withdrawal of financing will imply a significant risk for widespread reacidification of limed surface waters, unless precautions are taken. Precautionary measures would include an intriguing process of selection of objects, and this process, albeit politically decided, will cause distress among directly involved authorities/organisations/owners and users. At the best, a more principal discussion of objectives and results versus costs and the scientific trade off that is generated by this uniquely large ecosystem redevelopment effort will also follow (*cf.* Henrikson and Brodin, 1995).

This review paper is the result of an effort to compile, describe and evaluate existing knowledge about reacidification thereby creating a more scientific foundation for discussions related to this issue. As there are few published reacidification studies, the most significant findings based on the current understanding of ecosystem changes caused by acidification and liming are described to widen perspectives. These observations relate to more general physico-chemical and ecological processes and especially biological interactions, whereby also significant parts of the “natural” variations within the treated lakes and streams are encompassed. Then follows a short summary of observed effects in the few reacidification studies performed to the present (Alenäs *et al.*, 1991; Dickson *et al.*,

1995, Edberg *et al.*, 2001) and a presentation of probable developments. The next section gives an estimate of the extent and the potential risks that a more extensive and geographically distributed reacidification would pose to different surface water ecosystems. Finally, a synthesis and recommendations follows.

SURFACE WATER ACIDITY

The history of air pollution/acidification dates back through the centuries (Cowling, 1982), though extensive surface water acidification caused by long-range transport of air pollutants was first recognised during the first decades of the 20'th century. Losses of fish populations were reported already before the 1920's, and was attributed to acidity of the water (cf. Overrein *et al.*, 1980 citing Dahl, 1921, 1927 and 1923; and Dannevig, 1959 claiming precipitation to be the source). During the 1960's evidences arose indicating acidification to be a regional problem in Scandinavia (Odén, 1968; Jensen and Snekvik, 1972; Almer, 1972). An outline of the issue was presented at the UN conference in Stockholm 1972 and much research has during three decades focused on the air pollution and acidification. Currently an imposing amount of knowledge of different issues related to acidification has been produced; occurrence, causes, and effects, policies concerning source related abatement strategies and targeted remedial actions, *e.g.* neutralisation of acidic waters or as it is generally called: liming.

The extent of acidification of surface waters in Scandinavia has been revealed by a number of synoptic surveys (Avergård, 1972; Wright *et al.*, 1977; cf. Johansson and Nyberg, 1981; Henriksen *et al.*, 1988; Forsius *et al.*, 1990). In Sweden, these surveys have since 1985 been based on an appropriate statistical sampling procedure with lakes stratified according to size. The surveys have been performed on a national scale with five years in between (Bernes, 1986, 1991; Wilander *et al.*, 1998). The large number of Swedish lakes impacted by acidification and the devastating damage imposed on the biota has placed the acidification and possible countermeasures on the scientific and public agenda, also reflected by the political actions taken.

Acidification effects in aquatic ecosystems

Through the decades, research has continuously disclosed a number of different effects observed in surface water ecosystems, some specific and some of a more general nature. Comprehensive early papers including chemical and biological status and implicating changes during acidification are Hörnström *et al.* (1973), Andersson *et al.* (1975), Dickson *et al.* (1975), Overrein *et al.* (1980), Andersson and Olsson (1985). A comprehensive overview was published in 1992 (NAPAP), and more specific summary documents includes those of SWAP (cf. Mason, 1990) and the review/summary articles of recent Swedish acidification research (cf. Fleischer *et al.*, 1993). Thousands of publications reporting on more specific topics related to acidification complement the overviews, and extend our knowledge of the acidification processes, how they may interact with other environmental changes or management practises *etc.* Yet, there is more to know about details of mechanisms, processes, and biological interactions. The biological interactions may be equally important for the structure of acidified ecosystems as the acidification damages *per se*, especially when important regulatory predators, like fish, decrease significantly or eventually are locally extinguished (cf. *e.g.* Eriksson *et al.*, 1980; Nilssen *et al.*, 1984; Stenson, 1985; Stenson *et al.*, 1993). Acidification (and liming) could be viewed

like drastic experimental changes and intensive whole lake ecosystems studies thus could increase our understanding of the structural and functional responses of a variety of ecosystems in forest lakes and streams.

Effects caused by pH, DOC, and Al-fractions.

Decreasing pH values (preceded by a decrease in ANC) is what generally is defined as the more publicly known acidification. This decrease in pH *per se* occurs concomitant with several other changes, why the exact cause for effects observed under natural conditions may be more difficult to disclose. However, it is obvious that the most important chemical factors with a direct influence comprise acidity (pH), aluminium concentration and furthermore, parameters like Ca and organic carbon (DOC) with a potential to counteract or modify the toxic effects caused especially by inorganic labile aluminium.

Low pH was early observed in laboratory tests to hamper the hatching of fish eggs (Johansson *et al.*, 1977; Runn *et al.*, 1977) and has been implicated as causative for hatching failure of crayfish roe in nature (cf. Appelberg, 1987), both processes triggering reproductive impairments of populations. H⁺ may also be acutely toxic resulting in disturbances of the ionregulation of the gills and in addition may cause blood acidosis (Havas and Rosseland, 1995). Indirect effects of a lowered pH include successions in the aquatic macrophyte vegetation due to changed availability of different carbon sources as the water acidifies. Hence, the increases of *Sphagnum* spp. and *Mougeotia* sp. are due to their adaptation for effective use of CO₂ as carbon source and, at the same time, being tolerant to low pH and toxic aluminium give those species a competitive advantage in many acidified clearwater lakes.

That increased H⁺ activity should directly affect the biota may in general be of little significance for acidified surface water systems as the acidification processes concomitantly increase the concentration of labile inorganic aluminium in the water, generally by increased leaching from the catchment soils. This aluminium fraction has a large number of toxic effects to a wide biotic assembly of species, manifested both in laboratory and during natural situations (*e.g.* Driscoll *et al.*, 1980; Muniz and Leivestad, 1980; Baker and Schofield, 1982; Brown, 1983; Hörnström *et al.*, 1984, Rosseland. and Skogheim 1986; cf. Witters and Vanderborcht, 1987; cf. Bergman and Mattice, 1990; Witters *et al.*, 1991; Rosseland *et al.*, 1992; Herrmann *et al.* 1993; Rosseland and Staurnes, 1994; Havas and Rosseland, 1995; Hörnström *et al.*, 1995, Poléo *et al.* 1997). As described by Havas and Rosseland (1995), the toxic effects of aluminium includes severe respiratory and circulatory distress in its acute exposition phase. These effects are due to:

- interlamellar mucous clogging and voluminous precipitation of Al combined with reduced membrane fluidity; ion- and osmoregulation disturbances as Al binding to the gill surface cause decreased uptake and increased losses of Na⁺ Cl⁻ and Ca²⁺
- significantly increased hematocrit as reduced blood plasma volume and swelling of erythrocytes increases the viscosity.

The toxic mechanisms of aluminium are, despite a large number of studies, not very well known, However, aluminium are bound on surfaces and inside epithelial cells where potential sites for interaction exists as suggested by Exley *et al.* (1991). Reviews of the important factors and regulatory mechanisms were presented by Rosseland and Staurnes (1994) and by Havas and Rosseland (1995). Of importance for the natural situation, is the fact that it is the inorganic monomeric Al-species which are toxic, though complexing ligands of a wide variety of organic substances (DOC) generally result in a lower toxicity.

A significant reaction occurs around pH 5 when hydroxy-species binding to and polymerising on the gills, stimulate the mucous production resulting in clogging of the interlamellar spaces and ultimately death by suffocation (cf. Grahn, 1980). Similar mechanisms have been suggested for streams having high concentrations of iron and manganese (cf. Andersson and Nyberg, 1984; cf. Herrmann *et al.* 1993, Nyberg *et al.* 1995).

Biological responses and interaction

Initially, descriptions of the biological changes observed to occur in acidified lakes and streams naturally focused very much on population changes. Thereby, losses of populations of sensitive species, especially fish, became a principal step to assess the extent and number of different biota at risk for damages due to acidification, while structural and functional aspects were largely neglected. Comprehensive studies of lake ecosystems gradually increased the understanding of the importance of biological interactions for the composition as observed in many acidic lakes. However, the most important triggering mechanism is decreased abundance of fish populations caused by water chemical changes.

Grahn *et al.* (1974) launched the oligotrophication hypothesis, whereby the occurrence of a large biomass of *Sphagnum* sp. and a felt-like structure holding filamentous algae over vast bottoms should decrease the reflux of nutrients from the sediments and so hamper the pelagic production. Decreased total phosphorus levels have been documented in severely acidified lakes (Hultberg and Andersson, 1982; Hultberg, 1985a) and by synoptic surveys (Almer *et al.*, 1978), though, principally the effect may be caused by a decreased leaching from the terrestrial parts of the catchment (Persson and Broberg, 1985; Jansson *et al.*, 1986). However, studies in acidified lakes have shown that some of the structural changes, both in plankton communities and among the benthos, may lead to decreased recirculation of phosphorus (Nyman, 1990; Andersson, 1985). The oligotrophication hypothesis has been disputed on the basis of specific hydrochemical considerations and the fact that the quantitative importance of the observed or implicated change is poorly known in relation to overall phosphorus budgets (Olsson and Pettersson, 1993). Lakes in SW Sweden vulnerable to acidification are in general oligotrophic and the catchment characteristics rendering them sensitive imply a low input of phosphorus and base cations (low ANC). In spite of this, a fairly rich and variable fauna and flora are adapted to these conditions, the overall effect of acidification of these ecosystems being structural changes and extensive depauperation of plankton and benthic communities. Most probably, these changes are only marginally influenced by decreased nutrient status, although increased phosphorus concentration, even under acidic conditions, may promote phytoplankton production and biomass (Dillon *et al.*, 1979, Yates and DeCosta, 1994).

Merely by removal of fish from circum-neutral lakes, Stenson *et al.* (1978) and Eriksson *et al.* (1980) observed several of the structural changes generally occurring in acidified lakes, thereby pointing to the importance of biological interaction mechanisms, especially for the composition of plankton communities in acidified lakes. Most likely, this is due to a shift in predation pattern when the dominance of fish is replaced by a dominance of invertebrate predators (Stenson, 1985; Stenson *et al.*, 1993). Similar observations exist from a series of Norwegian lakes where increasing acidification impact resulted in decreasing importance of fish predation and a successive change of the biotic structure (Nilssen *et al.*, 1984). Invertebrates vulnerable to fish predation, but not to acidic water conditions, like *Chaoborus* spp. (Stenson, 1981; Nyberg, 1984) and corixids *e.g.* *Glænocorisa propinqua* (Henrikson and Oscarson, 1981) have been observed to increase and occupy new habitats (Oscarson, 1986). That a pelagic community dominated by these

“new” invertebrate predators achieve the typical composition observed in many acidic lakes have been experimentally verified (Nyman *et al.*, 1985).

Further changes in the acidified lakes include a reduction of species richness among phytoplankton. In clearwater lakes, numbers are reduced from somewhere between 30 to 60 species often found in oligotrophic circum-neutral lakes to typically around or less than 10 species. Diatoms are much reduced and predominant forms include larger species of dinophyceans and chrysophyceans, but despite changes standing biomass may be comparatively large (Almer *et al.*, 1978, Hultberg and Andersson, 1982; Lydén and Grahn, 1985; Larsson, 1988). Plankton production is generally low as a result of both low nutrient levels, low productivity and low recirculation via grazing, the latter factors being structure and species dependent. Among zooplankton the calanoid copepod *Eudiaptomus gracilis* is dominant and small cladocerans like *Bosmina longispina* or *B. coregoni* occur abundant. The large daphnids are missing in acidic SW Swedish clearwater lakes but are often found in Finnish humus-rich lakes at low pH (Sarvala and Halsinhao, 1990) probably as a result of alleviated aluminium toxicity. In Norwegian or northern Swedish lakes, the large predatory copepod *Heterocope saliens* increase as fish predation is relieved but it may have difficulties coexisting with *Chaoborus* (Nilssen, 1984; Nilssen *et al.*, 1984). In contrast to this, *Heterocope appendiculata* together with the most sensitive *Daphnia longispina* and *D. galeata mendotæ* seems to disappear from acidic lakes as they are vulnerable to acid conditions *per se* (Almer *et al.*, 1978; Nilssen, 1984; Nilssen *et al.*, 1984; Keller *et al.*, 1990c). Typically, rather few rotifer species occur in the acidic clearwater lakes and common species include *Polyarthra remata*, *P. vulgaris*, *Kellicottia longispina*, *Keratella serrulata* and *K. cochlearis* (cf. Stenson *et al.*, 1993)

The composition among cladocerans, as among rotifer species, may also be sensitive to the changes of food (algae or bacteria) occurring in conjunction with the acidification (Stenson *et al.*, 1993; Svensson *et al.*, 1995). Thus, there are multitudes of interactions overlaying basic toxic mechanisms that in every single lake can result in an ecosystem more or less typical of an acid lake. However, resulting communities always show certain peculiarities either due to a different initial structure in the unaffected lake or caused by random changes occurring during the course of acidification.

The generally rather drastic changes occurring in acidified lake ecosystems also comprise the communities dwelling more or less in or on the bottoms at different depths (cf. Appelberg *et al.*, 1993). Basically, there is a much larger change in the vegetation (habitat structure) on the littoral areas when *Sphagnum* spp and elodeids such as *Juncus bulbosus* and *Utricularia* sp. increase while some sensitive species like *Potamogeton natans* or other pondweeds and *Myriophyllum* sp. disappear. Also deeper bottoms, down to approximately 10 to 15 meters, may undergo substantial changes, as *Sphagnum* spp. invade these areas (Hultberg and Grahn, 1975; Grahn, 1977; Hendrey and Vertucci, 1980; Eriksson *et al.*, 1983; Roelofs, 1983; Grahn 1985, 1986; Van Dam *et al.* 1988; Heitto, 1990; cf. Farmer, 1990). In the most acidified clear-water lakes, a felt-like structure expand and concomitantly the isoëtid community is suppressed (Grahn *et al.* 1974; Hultberg and Grahn, 1975; Lazarek, 1982; cf. Andersson, 1985; Andersson and Hultberg 1997).

Observed changes of the littoral fauna and benthos of lakes include; decrease or ultimately extinction of sensitive species like gammarids, the crayfish (*Astacus astacus*), several species of ephemeropterans, snails and small mussels (Sphæriidæ), and a diversity of species within other groups (*e.g.* Grahn *et al.* 1974; Borgström and Hendrey, 1976; Widerholm and Eriksson, 1977; Mossberg and Nyberg, 1979; Johansson and Nyberg, 1981;

Raddum, 1979; Raddum and Fjellheim, 1984; Økland and Økland, 1986; cf. Appelberg *et al.*, 1993). The water louse, *Asellus aquaticus*, has also been observed to decrease in the most severely acidified lakes (e.g. Hasselrot *et al.*, 1984; Andersson, 1998), though this species also occurs, sometimes rather abundant, even in acidic lakes (Alenäs, 1986; Henrikson, 1996). The water louse may initially be favoured by a decreased competition from the superior, but more acid sensitive gammarids (Hargeby, 1990; Lingdell and Engblom, 1990), as well as decreased fish predation.

Competitively dependent species shifts occur during acidification and may include the changes observed among midges (Mossberg and Nyberg, 1979; cf. Appelberg *et al.*, 1993). For other changes in the midge community a decreased predation pressure eventually in combination with changed food availability is suggested (Henrikson and Oscarson, 1985, cf. Andersson and Hultberg, 1997). The release of fish predation enables a more pelagic life of several species of hemipterans (e.g. *Glænocorisa propinqua*), coleopterans and zygopterans (Oscarson, 1986; cf. Appelberg *et al.*, 1993; Andersson, 1998). The odonate *Leucorrhinia dubia*, which is very susceptible to fish predation (Henrikson, 1988), may be able to invade and expand in acidified lakes as it finds both shelter and a rich food resource of small prey organisms within the *Sphagnum* plants. (Henrikson, 1993).

The acidification of streams implies changes in the community structure, as in the lakes, although the importance of biotic interactions is assumed to be less pronounced compared to the regulation exerted by the changes in water chemistry (Herrmann *et al.*, 1993). Periodic acid events constitute a major influence in many streams, and may cause severe damage even in situations where general water chemistry is not acidic (Björnberg, 1983; cf. Andersson *et al.*, 1984; Degerman *et al.*, 1986; cf. Hasselrot *et al.*, 1987; Ahlström *et al.*, 1994). These events have caused mortality both in fry and adult trout (Leivestad and Muniz, 1976; Hultberg, 1977; Andersson and Nyberg, 1984) and freshly run returning spawners of salmon (Skogheim, *et al.*, 1984). Anadromous fish may be especially vulnerable for physiological reasons, but also eggs of salmon and sea trout incubated in an acid impacted river showed high mortality (Norrgren and Degerman, 1993). Episodic acid events have been held responsible for decreasing abundance and disappearance from headwater areas or eventually extinction of a large number of sensitive insect species in northern or mountainous areas in Sweden (Engblom and Lingdell, 1984; Degerman *et al.*, 1992; Ahlström *et al.*, 1994). The lotic habitats are more variable than still waters and organisms sometimes display a notable tendency for downstream drifting as a response to harsh situations, an adaptive escape behaviour that has been observed in connection to acidification and increased discharge of streams (Herrmann, 1990; Hall, 1990). However, as in lakes there are a number of organisms that benefit, at least in moderately affected streams, from changes occurring during acidification. Thus there has been observed increased proportion of shredding caddis larvæ in streams, either caused by increased food availability due to more coarse detrital matter or a decreased predation by fish. In contrast, scrapers, most of which are ephemeropterans, may suffer from decreased food availability and quality as the composition of algæ change (Herrmann *et al.*, 1993).

Overall, much of the changes in littoral fauna and benthos as well as in the pelagic communities of lakes are coupled to the decreased abundance, or ultimately, disappearance of fishes as top predators. The resulting shortening of food chains means new patterns of predator – prey relations inducing changes in structure and abundance for the different trophic levels. For many groups of organisms the species diversity decrease, whereby also competitive interactions might be decreased drastically and the structuring mainly being

due to abiotic regulation (cf. Stenson *et al.*, 1993; Appelberg *et al.*, 1993). As in lakes, the major effect of acidification to the stream biota includes losses of overall species diversity and finally, a shortening of food chains. However, this general depauperation may not influence or *vice versa*, be affected by interspecies interactions to the same extent as in lake ecosystems.

Acidifying factors and processes

There has been discussion on the importance of different natural vs. anthropogenic processes leading to acidification of soils and waters. This will certainly continue, so long it is not explicitly understood that in different situations the major factor responsible for an observed change may vary, and in many situations several factors may interact and add cumulatively. Thus, in large areas of Europe and North America acid rain makes a large or major contribution, often on top of naturally occurring processes as well as adding to acidification caused by management. Current agreements to decrease emissions of acid precursors will give a substantially decreased acid deposition, thereby in some situations increasing importance of alternative acidification processes.

“Natural” processes

Effects of these natural acidification processes generally include responses very similar as the ones seen in surface waters where the major factor currently is anthropogenic acid rain. The natural processes include:

- Land upheaval (oxidation of sulphide compounds in soils)
- Acid sulphate of volcanic origin (deposited or degassed)
- Deposition of sea-salt (and consecutive ion exchange)
- Deposition of acid sulphate as part of global natural sulphur cycling
- Ion exchange (leaching and long term accumulation in soil organic matter)

Oxidation of sulphide compounds in marine clays has resulted in some lakes naturally achieving pH values of 3.5 to 4 (cf. Hindar and Lydersen, 1994), and sulphur oxidation processes in volcanic areas may result in pH values even lower (cf. Satake *et al.*, 1995). Sometimes the observed oxidation includes human drainage management (cf. Olofsson, 1930). Generally this type of severe natural acidification leads to fish death and the general depauperation with reduced species diversity as observed in acid deposition affected lakes (Högbom, 1921; Ohle, 1936; Vallin, 1953). Furthermore, both Ohle (1936) and Vallin (1953) noticed the occurrence of *Sphagnum* in the acidic lakes. However, these lakes are to be found only within restricted areas, usually close to the coast and below the highest post-glacial sea level.

Near-coast regions are also the areas where deposition of sea-salt is large enough to cause significant episodic acidification effects by ion exchange, especially if catchment soils are acidic (cf. Wiklander, 1975; cf. Wright *et al.*, 1988; Hindar *et al.*, 1995). Regarding the occurrence of such events, Heath *et al.* (1992), Hindar *et al.* (1994) and Harriman *et al.* (1995) have also stressed the importance of the general soil status and prevalent acid deposition regime for the resultant water quality and the severity of episodes.

A number of different naturally occurring sulphur compounds form part of the global sulphur cycle. Some of these sulphur compounds may be oxidised in the atmosphere and subsequently washed out as acidic sulphate by precipitation. Estimates generally

indicate that in northern acid rain areas the importance of these natural compounds should be largely negligible (cf. Howarth *et al.*, 1992).

Millenia-long natural acidification has been demonstrated by paleolimnological studies (Renberg and Wallin, 1985; Renberg *et al.*, 1993) and also been modelled to include decreased weathering rates for Lake Gårdsjön during the postglacial period (Warfvinge *et al.*, 1995b). The sequence of diatom species indicates nutrient-rich alkaline post-glacial conditions and a successive natural acidification (pH 5.5), a few thousand years ago intercepted by the onset of a moderate alkalising through early human influences. Within this long-term trend, notable species shifts occurred at a scale of centuries, which may indicate random changes caused either by changes of the interaction patterns of the ecosystem or watershed changes rather than significant pH changes *per se*. Towards the current end of sedimentary records the comparatively very fast recent anthropogenic acidification is manifested clearly (e.g. Renberg *et al.*, 1990; cf. Battarbee *et al.*, 1990). A major factor in naturally occurring acidification is currently the leaching of substantial amounts of organic acids (humic brown water) which sometimes results in comparatively low pH values. This is an important process especially in the northern parts of Sweden, where concurrently the anthropogenically derived acid deposition is comparatively lower. Different approaches have been applied in order to discriminate between surface waters being naturally acid and the acidification caused by acid deposition (Ahlström *et al.*, 1994; Warfvinge *et al.*, 1995a; Bishop *et al.*, 1998; Laudon, 2000). However, organic acids and sulphate interacts in the soils (Gobran and Clegg, 1992), and a change in forestry practice implying higher productivity and standing biomass has resulted in decreased leaching of base cations, both processes that tend to complicate the assessment of natural acidification. Again, the diatom records (Korsman, 1993, 1999) from northern Sweden lend support for anthropogenic acidification being of minor importance to many acidic lakes in northern regions.

Anthropogenic factors (acid rain and forest management)

The anthropogenic factors contributing to the acidification includes pollution by different activities (acid rain, mining creating sulphide rich spoils) but also different land-use practices including forestry management, agricultural practices and ditching *i.e.* interventions changing hydrological regimes of soils and surface waters. In Sweden, acid deposition and forestry management practices are the spatially important factors, though locally and in other parts of the world especially open coal pit mining may be of importance.

Acid rain, *viz.* the wet deposition of acidity, and its origin in anthropogenic air pollution has been known for long, although the large-scale biological effects became apparent first during the 1960ies (cf. Odén, 1968). Swedish emissions decreased substantially during the 1970ies, and during the late 1980ies and throughout the 1990ies there has been a continuous decrease also of European emissions (cf. Ågren, 1993). The decrease in sulphur deposition currently amounts to approximately 50 % compared to that for 1980 over large areas in Sweden (Kindbom *et al.*, 1993; Lövblad, *et al.*, 1995) and will reach around 70 % in year 2010. The decrease has been verified by observations in the nation wide network for sampling of throughfall deposition (Hallgren-Larsson *et al.*, 1997) and a major part of this reduction is due to reduced levels of SO₂ in air resulting in less dry deposition (Kindbom *et al.*, 1994). In the future, there will still be surface waters where no recovery occurs until further reductions are implemented (cf. Pleijel *et al.*, 1999), and some waters where no complete recovery will occur (cf. Moldan *et al.*, 1999). These will be found especially in southern areas with a still significant deposition and in the most

sensitive central and northern mountainous areas where nitrogen processes may be the crucial factor. Experimental recovery studies and concurrent model simulations of systems in southern Sweden indicate that recovery of soil base cation pools without any other intervention may be prolonged for decades, or in case of the most sensitive systems for at least a century (cf. Sverdrup *et al.*, 1995, Moldan *et al.*, 1998).

Of the ordinary land-use practices, intensive forestry management is probably in most situations the dominating acidification factor besides the acid deposition. The importance varying from a contribution of more than 80 % in some central Swedish soils with low deposition to a much smaller contribution (probably around one third) in southwestern Sweden where deposition load is high (cf. Berdén *et al.*, 1987; cf. Bernes, 1991; Nilsson, 1993; cf. Brodin 1995). With current knowledge it is difficult to estimate to what extent this acidification (decreased cation leaching to surface waters) is transferred to the surface waters, but it is assumed that it generally is a minor part (Nilsson, 1993; cf. Brodin 1995). Changes in practice and intensities of forestry may have a profound effect for the future acidification recovery of surface waters, as the deposition component decrease. This is due to the soil pools of base cations being severely depleted as a combined effect of deposition load and cation accumulation and biomass removal by concurrent intensive forestry (cf. Bernes, 1991; Nilsson, 1993; Rosén 1991).

LIMING AS REMEDIAL MEASURE

From the beginning, it was more or less explicit that liming was an issue for restoration of damaged fisheries, although gradually an understanding of the biological dynamics of the whole ecosystem increased (cf. Fiskeristyrelsen and SNV, 1981; Hultberg and Andersson, 1982; Sverdrup, 1985). By this, the need for specific liming strategies related to the actual object became clear and concurrently also the need for a widened scope of the liming interventions. Today, this can be summarised (Hindar, 1997) as follows:

“ A proper liming strategy is the combination of liming techniques, doses, timing and placement that ensures optimal biological effects at lowest possible cost”.

He further proposes that eventually occurring undesirable (negative) effects should be minimised. As the structural damage of surface waters (species depauperation) due to acidification increase with time and loading, the ameliorative measures should be applied as early as possible whereby protection of the communities from the most profound changes and hysteresis effects is achieved.

Surface water liming

Lakes

Early liming interventions often adapted a liming strategy with large doses, anticipated to ensure a long-term duration (5 to 10 years), and spreading included deposition of “stores” in near-shore hard bottom areas with wave action (Andersson, *et al.*, 1975; cf. Fiskeristyrelsen and SNV, 1981; Hultberg and Andersson, 1982; Wright, 1983). From the beginning, it was understood that one crucial factor to observe in adaptation of a strategy was that periodic acid events, resulting from high discharge of surficially layered often very acidic and aluminium-rich water, should be avoided as far as possible. The deposition of initially undissolved stores (*e.g.* Andersson, *et al.*, 1975) was one way to try to counteract the occurrence and anticipated negative effects of such episodes. However, a

couple of years after treatment, this “extra” dissolution potential was exhausted whereby the acid events occurred anyhow (cf. Hultberg and Andersson, 1982; Hasselrot *et al.*, 1987). New strategies developed successively as the limings expended and difficulties were encountered with treatment targets in the lakes: liming of wetland areas (Lindquist, 1974; Hasselrot *et al.*, 1984), installation of dosing equipment for streams. This development became especially important when treatment started in larger river systems where the different methods could be used in a more optimal way to enhance total dissolution in different parts of larger catchments (cf. Sverdrup *et al.*, 1985).

Lake liming creates a specific situation, and during the course of repeated liming, e.g. in Lake Gårdsjön, the treatment has resulted in an extra deposition of CaCO₃ and precipitated metals, above all aluminium, to the sediments. The estimated output of dissolved limestone for each treatment amounts to approximately 85 % leaving about 15 % in the sediments. Also for aluminium a substantial part of the input is precipitated in the lake (> 80 %). This means that following a number of applications during 17 years, there is a lot of “extra” Ca and Al deposited in the lake sediments and both may dissolve and diffuse back into the water phase when more acidic conditions occur during a reacidification.

Wetlands

Wetland liming as a method has proven valuable but there is, as with all methods, certain prerequisites and also drawbacks. The wetland areas used for liming usually include different mire types from wet boggy areas and fens with discharge channels or small brooklets to small discharge areas along streams or lake shores. Spreading in wetlands very close to small brooklets resulted in acceptable water chemistry year-round and decreased the concentration of toxic aluminium dramatically (Fiskeristyrelsen and SNV, 1981; Andersson *et al.*, 1982; Hasselrot *et al.*, 1984). Today, in total several thousand hectares of wetlands have been treated in Sweden and results are generally very acceptable in the context of water chemistry (Abrahamsson, 1993a; Hindar *et al.*, 1996). Cirimo and Driscoll (1996) compared liming effects on two streams, principally wetland liming versus forest soil liming, and demonstrated the relative effectiveness of the former method concerning resultant water chemistry. However the spreading of limestone powder causes changes in the flora, generally decreasing *Sphagnum* spp. and some other acidophilous species while some other moss species increase as do the sedges (e.g. Aronsson, 1990; Bragg and Clymo, 1995; cf. Dickson and Brodin, 1995; Hindar *et al.*, 1996). To counteract this, future doses may be decreased as optimal results can be reached by more frequent spreading of somewhat larger particle fractions or pellets (Abrahamsson, 1992, 1993a, 1993b; cf. Dickson and Brodin, 1995). As for lakes, the continuous treatment results in large deposits of precipitated aluminium and a large store of exchangeable calcium in the peat of treated areas. Stores of precipitated aluminium are much more concentrated than in lakes since the treated areas, where the precipitation occurs, are much smaller.

Streams

The use of different dosing techniques to apply often large quantities of limestone to streams was a necessity for treatment of some of the larger rivers that were acidified in Sweden and especially in the most acidified areas in southern Norway (Sverdrup, 1986; Abrahamsen and Matzov, 1984; cf. Hindar 1997). Dosers should, in principle, be ideal for neutralisation of streams where susceptible organisms occur preferentially in lower stretches (Hindar and Henriksen, 1992) and basic strategies involving several large-capacity dosers has been implemented e.g. in The River Högvadsån (cf. Alenäs *et al.*,

1995). Although technical failures are inevitable, effects following malfunction may be diminished by complementary lake or wetland limings. Locating the dosers at some distance to sensitive target fish, such as Atlantic salmon or anadromous brown trout, will provide further protection against the effect of mixing zone toxicity (Rosseland and Hindar, 1991; Rosseland *et al.*, 1992). However, toxic mixing zones occur downstream from dosers or may occur when an acidic tributary joins the main limed river channel. Thus, problems are encountered with dosing as for other liming methods, and they demand a careful and more frequent monitoring, which in some cases has been solved by automatic surveillance and regulation.

The liming in streams sometimes cause deposits of limestone and these may contribute to the neutralisation during equipment failure (Hindar, 1987). The aluminium that is precipitated is supposedly transported further downstream and may in the case of larger rivers ultimately reach the sea in lack of effective sedimentation basins (large lakes). In such a situation, it should not constitute any significant problem in the context of reacidification. However, in smaller streams intermittent sedimentation may occur in stream channels and this could represent a risk for future redissolution during acid events.

Watershed liming

Liming on minerogenic agricultural soils or podzol soil in fresh forest sites was tried from the very beginning of lake liming. However, results were not encouraging as the general experiences indicated that leaching from these soils only amount to approximately a few percent. This implies that either doses must be extremely large or the whole catchment area must be treated (cf., Lessmark, 1987; cf. Wilander *et al.*, 1995; cf. Driscoll *et al.*, 1996). In one study, terrestrial whole-area treatment with ordinary agricultural limestone of 5 tonnes ha⁻¹ resulted in outflow approaching a few percent which was enough to neutralise runoff for several years (Andersson *et al.*, 1982), but a small wetland area improved the overall result. Furthermore, this type of strategy may cause severe damage to several species of the naturally occurring moss and lichen flora (Olsson, 1982).

Experiments in forests have shown a long lasting effect in the soil but with successively decreasing leaching to surface water (Andersson and Persson, 1988). Following treatment of one catchment at Lake Gårdsjön with dolomite, the neutraliser progressively penetrated to deeper soil horizons (Hultberg, 1994) and leaching of Mg increased significantly but comparatively less of Ca. More important, however, was a significant decrease in aluminium leaching which resulted in a substantial overall ANC increase, although positive values were not reached in runoff (Hultberg *et al.*, 1995; Nyström *et al.*, 1995). Similar observations, though with somewhat larger changes of stream water pH and aluminium, were made in a Norwegian forest neutralisation experiment (Hindar *et al.*, 1995). Also Nihlgård *et al.* (1988) observed a small effect in adjacent streams, and calculated the annual leaching to about 1 %. Contrasting this, massive dosing (20 to 30 tonnes ha⁻¹) on peaty heath-land soils in Scotland resulted in leaching of 5 to 10 %, enough for neutralisation of the runoff (Howells *et al.*, 1992; Dalziel *et al.*, 1994). Furthermore, a long-term Norwegian study (Traaen *et al.*, 1997) showed very positive water chemical and biological effects following a dose of 3 tonnes ha⁻¹ to a catchment with thin and peaty soils located in an area with moderate sulphur deposition. Negative observations are temporarily increased leaching of nitrate and damage to crustose lichens and *Sphagnum* spp (cf. Clymo *et al.*, 1992; Skeffington and Lines, 1995). In a review of effects following watershed liming, Smallidge *et al.* (1993) focused on observed

terrestrial structural and functional effects, which include both positive and negative changes.

The use of this strategy has some very apparent benefits for the acidified surface waters downstream. The increase of base saturation of soils probably results in more “normal” responses and calcium leaching from the soil concurrent with a precipitation of aluminium in the soil may be especially important. The effect supposedly is very long-term whereby reacidification effectively is counteracted for long periods. The drawback of this method is presently a significant negative effect on the terrestrial vegetation, although a refinement of spreading methods, new products *etc.* may overcome this, at least partially.

LIMING EXPERIENCES

The feasibility of different liming methods and application strategies as well as the constraints on them has been discussed in a multitude of papers (*e.g.* Fiskeristyrelsen and SNV, 1981; Hultberg and Andersson, 1982, Wright, 1983; Hasselrot and Hultberg, 1984; Lindmark, 1984; Lindström *et al.*, 1984; Skogheim *et al.*, 1984; Alenäs, 1986; Hasselrot *et al.*, 1987; Hindar, 1987; Hultberg and Nyström, 1988; DePinto *et al.*, 1989; Alenäs *et al.*, 1991; Hindar and Henriksen, 1992; Lindmark, 1993; Weatherly *et al.*, 1995; Driscoll *et al.*, 1996;). Important contributions to the development of liming strategies have been the work by Sverdrup (1985) and recently, Hindar (1997) has summarised and reviewed liming for surface waters. Furthermore, large long-term projects have adapted a continuous feedback of practical experiences to adjust consecutive liming activities (*e.g.* Andersson, *et al.*, 1984; Alenäs *et al.*, 1995).

Liming activities include large-scale national programmes such as those in Sweden or Norway (Bengtsson *et al.*, 1980; Baalsrud, 1985; Nyberg and Thörnelöf, 1988) or more restricted and temporary in the USA (*cf.* Kretzer and Colquhoun, 1984; Schreiber and Rago, 1984; Brocksen, 1991). Comprehensive experimental limings include objects in Canada (*cf.* Dillon *et al.*, 1979; Keller *et al.*, 1990a), USA (Porcella, 1989; Porcella *et al.*, 1995) or UK (Brown *et al.*, 1988) and several of these have been long-term studies (*cf.* Keller *et al.*, 1990a; Porcella, 1989; Howells and Dalziel, 1992). Similar long-term intensive ecosystem studies in Sweden and Norway (Andersson and Olsson, 1985; Dickson, 1988; Hultberg and Andersson, 1982; Svensson *et al.*, 1995; Andersson and Hultberg, 1997; Raddum *et al.*, 1986; Traaen *et al.*, 1997) have contributed much to the understanding of ecosystem responses to liming. The ameliorative process starts from the first neutralisation intervention but often proceeds for many years as biotic interactions develop, resulting in recovery of the faunas anticipated to have occurred pre-acidification (*cf.* Appelberg, 1995; Appelberg, *et al.*, 1995). Three decades with liming of acidified surface waters in Sweden has resulted in comprehensive reviews being compiled to evaluate the large-scale programme run since 1976 (Fiskeristyrelsen and SNV, 1981; Henrikson and Brodin, 1995), other assessments and reviews of more general interest are Fraser and Britt, (1982), Olem, (1990), and Olem *et al.*, (1991).

Duration of a treatment

Duration of a lake liming intervention was usually one of the explicit conditions used in the planning process whereby a dose was calculated related to initial status, hydraulic retention time, and acid loading for a projected duration. With ordinary

limestone doses as suggested by the standard scheme, lakes with short retention times (< 1 year) displayed in general a duration of 2 to 3 years while in lakes with retention times of several years expected duration would be in the order of 2 to 4 times the hydraulic retention time (Dickson and Brodin, 1995; Wilander *et al.*, 1995). A more precise approach to this problem was reached by simulation models (Sverdrup *et al.*, 1986; DePinto *et al.*, 1989). Currently, the duration is of minor importance as new strategies for lake liming imply treatment with lower doses more frequently. This change of strategy results in a less variable water chemistry with calcium and alkalinity concentrations closer to what is anticipated as being pristine for the forest lake that is the typical liming object (cf. Dickson and Brodin, 1995; cf. Wilander *et al.*, 1995).

Physical effects

In connection to the limings, as they sometimes are performed, a substantial turbidity results (cf. Bukaveckas and Driscoll, 1991a) especially when large amounts of finely ground limestone (usually as a slurry) are distributed at rates of hundred tonnes day⁻¹ or more. This is a temporary effect that can affect the plankton community as composition of both phytoplankton (shading, acute depletion of carbon dioxide) and zooplankton (interferes with filtration) may change. Spreading of limestone powder directly into stream areas holding anadromous brown trout fry and fingerlings has occasionally created highly turbid water affecting the fish.

In clear-water lakes, usually an increased watercolour has been observed while in many highly coloured lakes the transparency increase. For Swedish lakes, there has in general been an increase in colour (cf. Wilander *et al.*, 1995). The transparency measured by Secchi depth is also influenced by the amount and character of particles (light dispersion) and the result is often decreased readings as liming usually results in larger number of phytoplankton and bacterioplankton, usually also smaller species (Hultberg and Andersson, 1982; Larsson, 1988; Bukaveckas and Driscoll, 1991a; Hörnström *et al.*, 1993).

The change in light attenuation connected to liming has been discussed in more detail by Bukaveckas and Driscoll (1991b). The increased light attenuation resulted in a significantly decreased epilimnetic water volume and a decrease in the hypolimnetic heating rate. The overall effect of these changes was a substantial increased thermal stability during the stratification following liming, though the importance for the lake ecosystem is not clear.

Major chemical effects

The major, and expected, effects of a liming intervention are increased pH and restored alkalinity concomitant with a most significant decrease of any toxic aluminium species. The objectives being set with regard to some target level giving the acid stressed biota or specific species acceptable living conditions in the treated water.

From sometimes rather illustrious results concerning pH and alkalinity during early trials, the technique and developed strategies nowadays results in target levels usually being reached both in lakes and streams (Wilander *et al.*, 1995). However, liming of streams is difficult due to the large variation in discharge (span several orders of magnitude), and the occurrence of episodic acid events, which may be hard to counteract during high discharge.

The littoral areas of lakes are the most important habitats for many organisms and used as spawning areas by fish, here superficially layered acidic waters usually constitute a potential risk during late winter – spring (Hasselrot *et al.*, 1987; Molot *et al.*, 1990a; Gubala *et al.*, 1991; Abrahamsson, 1993b). Despite liming, sensitive fauna may be stressed or even killed during severe cases of acidic events (Hultberg and Andersson, 1982; Henrikson, 1988; Wilander *et al.*, 1995), though examples of the opposite also exist (Gunn *et al.* (1990) indicating that intensity, duration and exact chemical environment is important.

The high doses often used initially resulted in pH above 7, but more important, in some situations very high unnatural alkalinity levels were reached, sometimes followed by a substantial decrease before re-treatment (*e.g.* Hultberg and Andersson, 1982; Wilander *et al.*, 1995). Successively, adjusted lime doses have resulted in less variable concentrations as shown both for specific lakes and for all limed Swedish lakes (Wilander *et al.*, 1995), in accordance with the objectives suggested by Hindar (1997). This should minimise risks for development of undesirable atypical lake or stream communities by a preferential promotion and selection for species adapted to richer and more alkaline environments, though still, large doses may be necessary to protect valuable biota against acid events in specific situations (Andersson, *et al.*, 1984; Degerman *et al.*, 1986; Ahlström *et al.*, 1994). Calcium concentrations reflect much the same picture, but as discussed by Wilander *et al.* (1995), calcium concentrations are regulated by mere dilution and in areas with high acid loading, lakes become comparatively “enriched” in calcium towards the end of a treatment (*cf.* Andersson and Hultberg, 1997). This higher level of calcium may be important during the initial reacidification phase as it counteracts aluminium toxicity.

The increase in lake pH following liming precipitates aluminium effectively (*cf.* Wilander *et al.*, 1995) and changes the relative proportions of different aluminium species, which has been shown to occur in mixing zones (Wright and Skogheim, 1983; Rosseland *et al.*, 1992). However, Driscoll *et al.*, (1989b) observed at very high pH, that precipitation of aluminium was delayed as the aluminate ion was produced. It is the monomeric inorganic aluminium fraction that is preferentially precipitated, while other fractions may be unchanged and the change in total aluminium variable (Dickson, 1983; Wright and Skogheim, 1983; Hasselrot *et al.*, 1984; Alenäs *et al.*, 1991). Also the amount of aluminium in brooklets or soil/ground waters decrease substantially following wetland or soil liming (Andersson *et al.*, 1982; Hultberg, *et al.*, 1995; Traaen *et al.*, 1997; Borg 1986, Borg *et al.* 1995).

In the oligotrophic lakes, usually being the once susceptible to acidification, general nutrient levels may be important for the pelagic production and species composition (Dillon *et al.*, 1979). Many studies, both synoptic and long-term monitoring, indicate very low concentrations of phosphorus and this seems coupled to decreased leaching from acidified catchment soils (Persson and Broberg, 1985). Following liming, the lake responses concerning phosphorus concentrations are variable (Broberg, 1987) despite the fact that with the dissolving limestone a significant amount of phosphorus is introduced, and furthermore, in some lakes a significant increase would be anticipated as senescent vegetation (*e.g.* *Sphagnum*) and coarse detritus decompose during a short period. Elevated total phosphorus concentration was observed only occasionally but such events may have triggered the algal bloom that prevailed for several years in Lake Gårdsjön (Broberg, 1988). Hörnström *et al.* (1993), summarising the responses to liming in several larger lakes in southwestern Sweden, concluded that phosphorus increased while the overall indication based on the Swedish data base is a decrease (Wilander *et al.*, 1995). Generally, nitrogen concentrations in surface waters showed similar variable responses in many lakes (Broberg,

1987), whereas in southwestern Sweden increases were seen in several lakes (Hultberg and Andersson, 1982; Hasselrot *et al.*, 1984). In Lake Gårdsjön (Broberg, 1988) and Lake Tvärsjön (Hörnström *et al.* 1993) the nitrate “surplus” that is often found in acidified lakes disappeared during the vegetation seasons following the lime treatments. Based on results from the liming programme, changes in concentration of total nitrogen were generally small and usually decreased concentrations were observed (Wilander *et al.*, 1995).

Effects on metals

Since the concentration of trace metals in water usually is strongly dependent on pH, a larger portion of free metal ions can be expected to occur at lower pH-values. Elevated concentrations of Al, Mn, Zn, Cd and Pb have been found in acidified waters, in very acidic waters this is also true for Fe. This condition would be expected to reverse upon liming of water systems, with reduced metal concentrations as a consequence (Dickson 1980; Borg, 1983; Borg and Andersson, 1984).

Liming exclusively on the lake surface does not reduce the input of Al from the surrounding catchment, but since increased pH in the lake favours complex binding, the fraction bound to humic substances is increased and the free, toxic forms are reduced (Wilander *et al.*, 1995). In acidic clear water lakes, liming reduces the total concentration of Al, whereas in humic waters the total concentration seems to remain relatively constant while the toxic, monomeric fraction decreases due to complex formation. To permanently lower the aluminium concentrations in affected lakes, the soil acidity has to be reduced. Generally, the toxicity of aluminium is decreased after liming, due to increased complexation and precipitation, but temporarily the toxicity can be substantial during transition when changes between different forms occur which can create extremely toxic environments, causing *e.g.* precipitation on fish gills (Dickson 1983, Wilander *et al.*, 1995).

In the ISELAW programme (Integrated Studies of the Effects of Liming in Acidified Waters) the aluminium concentrations generally have been low in the limed lakes; $< 150 \mu\text{g L}^{-1}$ of acid-soluble “total” Al and $< 10 \mu\text{g L}^{-1}$ of labile inorganic Al during the first six years (Persson *et al.*, 1997), with a few exceptions. The fraction of total monomeric Al, which includes the labile inorganic and organic fractions was generally low, with the highest concentrations found in humic waters. In one of the lakes, Gyslättsjön, which has been studied in other projects since before the first liming (Borg *et al.*, 1989; Håkanson *et al.*, 1990), acid-soluble Al concentrations showed very small changes after the initial lake limings. However, following the later repeated liming of the wetlands, the acid-soluble Al concentrations declined substantially.

The solubility of Fe and Mn is also largely controlled by pH and redox conditions. In the mountain streams of Lofsdalen, Central Sweden, the wetland parts of the catchments were limed which resulted in decreasing concentrations of Fe, Mn and Al. The lime treatment also decreased the seasonal variations connected to the variable discharge, which is indicated by much lower relative annual standard deviations after liming (Borg *et al.*, 1995). There was also a tendency for decreased concentrations of Fe and Mn after liming in the Delsbo area in Hälsingland, but here it was a wide variation due to differences in runoff regimes and concentrations of humic substances (Wilander *et al.*, 1995).

Zn and Cd are relatively mobile elements and strongly dependent on pH in soil – water systems. In regional lake surveys, encompassing different parts of Sweden, a strong

negative correlation between pH and Zn has been found (Dickson, 1980; Borg, 1983). In Lake Långsjön in Tyresta National Park, southwest of Stockholm, Cd was measured in water, sediment and biota after liming. After treatment and the resulting higher pH values, the Cd concentration in water decreased but increased in the surficial sediment and suspended particles. Cd concentration in perch liver and *Chironomus* larvae also decreased, while an increase, lasting for about three years, was noted in *Chaoborus* larvae after the first liming (Andersson and Borg, 1988). Similar findings were made in Lake Stensjön, in the same lake system, where Cd in water and perch was studied. After liming, the Cd concentration in small perch clearly decreased, and the concentration in the water phase was reduced to one third. A comparison of Lake Stensjön and the non-limed Lake Årsjön, in Tyresta National Park shows that the non-limed lake has Cd concentrations about four times higher than the limed lake (Persson *et al.*, 1997).

Pb is also to some extent affected by liming. Pb occurs more in complexed and adsorbed forms than Cd and Zn, but a negative correlation between pH and Pb and lower concentrations after wetland liming has been found in the Lofsdalen area (Wilander *et al.*, 1995).

As a conclusion, the influence of liming on the metal concentrations is dependent on the state before liming and the magnitude of the change; small changes in pH giving a smaller effect (Wilander *et al.*, 1995). However, the general conclusion is that liming reduces the concentrations of most metals to levels similar to non-acidified natural levels. Liming also reduces the often found large temporal variations in acidic waters, connected to variations in discharge, especially if the catchments are limed.

Biological response patterns following liming

The ultimate objective behind surface water liming is to ensure a water chemistry that enables anticipated pristine fauna and flora to be protected from acidification or to recover from damage. However, this biological recovery is imaginary as the limed ecosystem may sometimes differ significantly from the original system, and generally, the composition of the pristine system is both ill defined and variable with time (cf. Brinck *et al.*, 1988; Henrikson and Brodin, 1995). Furthermore, the sequence of changes along the route to “recovery”, be it either through liming or through decreased acid loading, may not necessarily be the reversal of the acidification changes as hysteresis may be pronounced (Dise *et al.*, 1994; Henrikson and Brodin, 1995; Hindar, 1997).

Macrophytes

Among the most conspicuous effects following acidification of many Swedish clear-water lakes are the vegetational changes with large amounts of *Sphagnum*, *Mougeotia* and a felt-like structure with filamentous algae on the bottoms. The neutralising, especially with spreading of limestone on littoral bottoms, directly kills *Sphagnum* and furthermore, changes available carbon sources which apparently inhibits growth of filamentous algae in the felt-like structure and the abundant *Mougeotia*. Within the first vegetation season, sensitive bottom vegetation disintegrates and relocation of plant debris and accumulated coarse detritus follows (Andersson *et al.*, 1975; Hultberg and Andersson, 1982; Grahn and Sangfors, 1988; cf. Larsson, 1995). Increased attenuation of PAR following liming and increased grazing may have contributed to the observed rapid disintegration of the felt-like structure (Larsson, 1995). Other, less obvious, changes included the species composition of small epiphytic algae in Lake Gårdsjön (Lazarek, 1982), while changes observed in Bowland

Lake, Canada, comprised substantial shifts in dominance as species or filamentous algal communities responded differently (Jackson *et al.*, 1990)

Recolonisation of shallow barren bottom areas by isoëtids started at once in two studied lakes at the Swedish west coast, and already after one year was more or less complete (Grahn, unpubl.; Hultberg and Andersson, 1982). However, in Lake Gårdsjön such recolonisation was not observed during almost one decade (Sangfors, 1991). Furthermore, in Lake Gårdsjön *Utricularia intermedia* decreased post-liming but reappeared after four years and also *Juncus bulbosus* expanded following liming (Larsson, 1995), though this species generally is suggested to be favoured by the acidification (Hultberg and Grahn, 1975; Nilssen, 1980; Roelofs, 1983; Svedäng, 1990). However, that the development in different lakes may be more complex is shown by the large increase of *J. bulbosus* to nuisance levels registered in some limed lakes in southwestern Norway (Roelofs, *et al.*, 1994; Brandrud and Roelofs, 1995). Other changes following liming, include increases of the oligotrophic bicarbonate limited *Myriophyllum alterniflorum* (Grönlund, 1987; Eriksson, 1988; Brandrud and Roelofs, 1995; Dickson *et al.*, 1995). Species of *Potamogeton* have also been observed to increase in limed lakes (Hultberg and Andersson, 1982; Grönlund, 1987; Eriksson, 1988; Grahn and Sangfors, 1988; cf. Larsson, 1995). In one lake, Grönlund (1987) also observed an increase of *Elodea canadensis*, a species usually occurring in more mesotrophic waters. There exists indication that liming may increase the productivity of isoëtids (Andersson and Hultberg, 1997), as shading from large amounts of epiphytes decrease. However, the general change occurring is a, sometimes profound, decline of benthic primary production when *Sphagnum* and filamentous algae decrease (Grahn and Sangfors, 1988) and generally isoëtid production does not change or even decrease. These changes may at least partially be compensated by increased pelagic production, though this may be only temporary (cf. Larsson, 1995).

Phytoplankton

In conjunction with the liming, a temporary decrease of phytoplankton (biomass, chlorophyll and diversity) has been observed (Hultberg and Andersson, 1982; Larsson, 1988; Bukaveckas, 1989), although a recovery occurs within months and often includes the first “new” species. The changed water chemistry induces a succession, whereby a number of new species invade and/or expand in the lake. Some immigrants becoming dominant or subdominant concurrent with decreasing populations of several of the dominant species occurring in the acidic lake (Hörnström, 1979; Hultberg and Andersson, 1982; Hasselrot *et al.*, 1984; Hörnström and Ekström, 1986; Larsson, 1988; Bukaveckas, 1989; Hörnström *et al.*, 1993). The overall effect being a significant increase in species diversity, with some species indicating better nutrient status or a higher pH (Hörnström, 1981). However, as has been pointed out in some studies, a few important species occurring pre-acidification may not reappear for long periods or may not be able to establish viable populations (*e.g.* Hultberg and Andersson, 1982; Renberg and Hultberg, 1992; Hörnström *et al.*, 1993).

Apart from a temporary reduction immediately concurrent with liming, the biomass (chlorophyll) changes afterwards have been observed to vary (Hultberg and Andersson, 1982; Hörnström and Ekström, 1986; Larsson, 1988; Bukaveckas, 1989; Hörnström *et al.*, 1992, 1993; Andersson and Hultberg, 1997). Increased production was observed by Larsson (1988) though this returned to basic level within some years, short-term increases were also observed by Bukaveckas (1989) and Andersson and Hultberg (1997). At least temporarily, increased nutrient availability may be the reason for higher production, but the long-term effects on production may to a larger extent be dependent of external nutrient supply, mainly from the catchment soils where the acidification causes decreased leaching.

There exists some observations of dramatic increases of single species to reach massive blooms following liming. Alenäs (1986) and Larsson (1988) recorded for several consecutive years the species *Cosmocladium perissum* (an unusual desmeciace) reaching very high biomasses that effected hypolimnetic oxygen and increased light attenuation drastically. In both cases, the blooming species disappeared more or less instantly and general conditions returned quickly to a more normal state.

Zooplankton

Following liming, development within the zooplankton community in many lakes has been a more puzzling story, as the importance of predator – prey relationships has imposed a very variable development due to the status of the fish fauna (e.g. Stenson, 1972; Henrikson *et al.*, 1984; Nyberg 1984; Svensson *et al.*, 1995; Nyberg, 1998). Contrary to reactions within other trophic levels, in the most severely depauperated ecosystems of acidified lakes, the observed changes of zooplankton species diversity has been moderate as long as no fish is present (Henrikson *et al.*, 1984; Nyberg, 1984). Similarly, at the other end of acidification impact, liming as a protective measure in virtually unaffected lakes (no significant species reduction) results in minor changes, again due to insignificant changes among the fish (Alenäs, 1986; Hörnström *et al.*, 1992; Hörnström *et al.*, 1993). In lakes with altered fish populations, changes may be large and long lasting as predator – prey relations develop successively and change again when new fish species establish populations (Hörnström *et al.*, 1993; Svensson *et al.*, 1995; cf. Degerman *et al.*, 1995; Appelberg, 1995; Nyberg, 1998).

Rotifer diversity and abundance was found to increase in limed lakes without fish (Hultberg and Andersson, 1982; Hasselrot *et al.*, 1984), and occasionally single species reached large biomass. Similar changes occurred in other highly acidified lakes in the southwestern part of Sweden (Hörnström *et al.*, 1993). Generally, significant increases of species diversity occurred (cf., Degerman *et al.*, 1995), and based on the time course for reappearance of different species, they suggested that a more gradual spreading from surrounding sources was more probable than hatching from dormant resting eggs.

A successive but rather complex pattern for occurrence of different cladoceran species following liming is outlined by Degerman *et al.*, (1995). *Bosmina* (often pre-liming dominant) together with *Diaphanosoma brachyurum* develops large populations and subsequently *Ceriodaphnia quadrangula* and *Holopedium* increase and finally one or several *Daphnia*-species may establish populations. One example of this development may be the succession observed in Lake Gårdsjön, where the increased abundance of invertebrate predators following liming (empty of fish) increased pre-liming reduction of zooplankton hampering new immigrant species except *Diaphanosoma* which became dominant for several years (Svensson *et al.*, 1995). Introduction of fish enhanced these species shifts and by the final establishment of *Daphnia longispina*, the competitively inferior cladoceran species decreased, as did rotifers. Similar, long-term development including the interactions with different invertebrate predators and different fish populations in limed lakes has recently been described by Nyberg (1998). He also observed a recolonisation of the large predatory species *Leptodora kindti* and *Bythotrephes longimanus* in four lakes, while they still were absent in other lakes supposed to be convenient habitats, the absence most probably being due to immigration failure.

Pelagic invertebrates – “active fauna”

The organisms grouped as pelagic “active fauna” includes several invertebrate predators playing an important role in the structuring of zooplankton communities in lakes when fish populations decrease during the acidification (Oscarson, 1986; Stenson *et al.*, 1993). They are generally insensitive to acidification and consequently also to liming *per se*. However, the presence or absence of efficient predators such as fish essentially determines the response following liming. In lakes empty of fish, numbers of *Glaenocorisa propinqua* increased several fold following liming (Hultberg and Andersson unpubl.) and approximately doubled in Lake Gårdsjön (Henrikson and Oscarson, 1984) while even larger increases were seen of *Chaoborus* spp., and the organisms displayed a spatial habitat segregation. Also Nyberg (1984, 1998) observed increased abundance and biomass of *Chaoborus* following liming, but populations were clearly susceptible to increased fish predation. The observed increases should largely be dependent of increased food availability and perhaps food quality (cf. Svensson *et al.*, 1995), as new prey organisms occurred (rotifers) or initially present species increased in abundance. In acidified lakes holding fish, or if fish is introduced, the intensive recruitment usually following liming very significantly increase the predation pressure on active fauna species. Responses may be very fast, so within weeks or months populations of *Glaenocorisa propinqua* and *Chaoborus* may be virtually exterminated (Hultberg and Andersson, 1982; Nyberg, 1984; Svensson *et al.*, 1995).

Benthos

Lakes:

Responses to liming of the multitude of organisms generally grouped as benthic fauna are very variable and less quantitatively known compared with the more intensively studied pelagic communities. For profoundly acidified lake ecosystems, the change following liming includes large biomass changes as well as shift in species composition (*e.g.* Hultberg and Andersson, 1982; Eriksson *et al.*, 1983; Hasselrot *et al.*, 1984). Details for the different fauna groups such as *e.g.* the chironomids have only occasionally been monitored though (cf. Degerman *et al.*, 1995).

The acidification causes both extensive habitat changes (increase in *Sphagnum* and the felt-like structure) and concurrently exerts a severe stress on many sensitive organisms. Ultimately, the result is an acidic benthic community characterised by the lack of fish predation and with new predator – prey interactions being stabilising factors for the systems (Stenson *et al.*, 1993; Appelberg *et al.*, 1993). The liming of such an acidified system changes the basic water chemical conditions, potentially enabling any remnants of sensitive species populations to increase or alternatively recolonise. Responses at the population level are subject to several processes that may be either inhibiting or enhancing for different species as the liming may change almost any interaction and also influence both habitat structure and food availability. Thus recolonisation will in some situations take time (cf. Degerman *et al.*, 1995), or in extreme cases be impossible for groups with upstream dispersal restricted only to the watercourses where dams and waterfalls may constitute migratory barriers.

Both biomass decreases and increases as well as shifts in species composition have been observed within chironomids (Hultberg and Andersson, 1982; Hasselrot *et al.*, 1984), including species back shifts towards that which occurred before acidification (Degerman *et al.*, 1995). Changes for specific chironomid species were tabulated by Degerman *et al.* (1995) and contrasting responses of the same species were observed in different lakes and

probably included a multitude of interaction reactions *i.e.* variable fish and invertebrate predation as well as habitat differences. Generally, large and fast increases in population densities have been observed for shredders such as *Asellus aquaticus* and nymphs of ephemeropterans (Hultberg and Andersson, 1982; Eriksson *et al.*, 1983; cf. Andersson, 1985; Raddum *et al.*, 1986; Henrikson, 1996) and then again declining densities. This is suggested to be caused by a high availability of suitable food accumulated during acidification and the decline may follow due to food shortage, increase in predation or competition. The liming increase survival of eggs or young specimens of *A. aquaticus* enhancing population recruitment (Andersson and Hultberg, 1997) and further increases of *A. aquaticus* may also follow after dispersal internally in the lake to different depths (Alenäs, 1986; Andersson, 1998).

Several ephemeropterans and trichopterans have increased in many lakes following liming, but this also includes some species like *Leptophlebia* spp. which belong among the most acid tolerant. Also molluscs have been observed to increase, although for small mussels this is probably due to expansions of scarce population surviving the acidic conditions in especially favourable habitats (cf. Degerman *et al.*, 1995). In general, these communities have not attained a species composition identical to what would be anticipated pristine even after many years, though they are significantly different from the communities in acidified lakes (cf. Bergquist *et al.*, 1992). In some cases, species number have increased quite substantially compared to the pre-liming situations, while in other cases, changes were not observed or species numbers even have decreased (Appelberg and Aldén, 1992).

Streams:

Changes in running water are similar to lakes, *i.e.* both profound changes but also more or less unchanged communities have been observed. Generally, the acidification has caused large losses in severely affected localities, and therefore the increases in species diversity following liming sometimes were substantial (Degerman *et al.* 1995). The treatment period has been observed to have a clear effect with significant changes occurring only after five years, indicating presumably both slow recolonisation and/or a combination with a progressively increasing chemical stability as liming is continued (Bergquist *et al.*, 1992). Limed streams where no significant changes have been recorded (*e.g.* Medin *et al.*, 1993) were supposed to depend on colonisation difficulties or the occurrence of episodic acid events. The densities of several species have initially increased and this has sometimes been followed by declines. These changes as well as other changes indicating species turnover (Lingdell, 1997, unpubl.) points to the necessity of carefully evaluating changes at the species level. Herrmann and Svensson (1995) found no significant changes between pre- and post-liming communities in a number of limed south Swedish streams. However, as in lakes there are examples of very sensitive species occurring following liming, thus indicating a clear change. Such a species is *Gammarus pulex*, which has been recorded to recolonise following liming (Lingdell and Engblom, 1992), though this is a slow process (upstream) for this species living all-time all-stadia in the water.

Fish

Development of fish faunas following liming is in principle very positive. An adequate and successful liming detoxifies the water and, as surviving fish spawn, the dramatically increased survival of young results in population recruitment whereby both production and stocks increase (Bengtsson *et al.*, 1980; Eriksson *et al.*, 1983; Lindström *et al.*, 1984; Degerman and Nyberg, 1989; Degerman *et al.*, 1992, 1995). However, this general picture may have many peculiarities dependent of the fish fauna left during the acidification or the course of recolonisation. In the extreme case, not even the most acid

tolerant species survived, hence there will be no change until recolonisation occur or if this is inhibited, until new species are restocked (cf. Andersson and Hultberg, 1982). Usually perch (*Perca fluviatilis*) or perch and pike (*Esox lucius*) have survived in more moderately acidified lakes and the recruitment means a large increase in density of the perch population. Increased density, progressively increasing intra-specific competition, leads to a decreased growth following liming, especially for the usually large newly recruited year-classes. In contrast, the old predatory fish (or other predatory species) may increase their growth temporary as prey availability increase (Alenäs, 1986; Nyberg *et al.*, 1986; Degerman and Nyberg, 1989). The decline in growth of perch may be even more pronounced as acid sensitive but efficient competitors like roach (*Rutilus rutilus*) or vendace (*Coregonus albula*) recolonise (Alenäs, 1986; Appelberg *et al.*, 1990; Appelberg and Degerman, 1991). The development may proceed for many years (decades), although changes of species diversity have been comparatively small, as there are few species usually occurring in the oligotrophic ecosystems considered for liming (cf. Appelberg, 1995). Sometimes, initial changes may include undesirable extensive increases of “opportunistic” species like perch or in streams Alpine bullhead (*Cottus poecilopus*) that may be dominant for long periods until the more competitive species, originally being dominant, recolonise successfully following the liming.

The occurrence of episodic acid events in limed streams constitutes one of the real challenges for restoration of fish populations, especially in areas where acidic snow is accumulated during winter periods. Atlantic salmon (*Salmo salar*) smolts have proved to be extremely sensitive and proposed target water chemistry is pH >6.4 and inorganic labile Al < 20 µg L⁻¹ (Kroglund and Staurnes, 1997). Despite long-term liming treatment, difficulties in confining these limits may have contributed to the observed decrease of Atlantic salmon parr and successive decrease of returning spawners in River Ätran (cf. Alenäs *et al.*, 1995), though causal factors may also include the observed infection with *Gyrodactylus salaris*. Similar consequences for fish populations have been observed in Norwegian lakes, where Barlaup *et al.* (1998), found restricted recruitment of brown trout (*Salmo trutta*) to be caused by superficially layered acidic aluminium-rich water. There also exists observations of decreased growth rate and condition (Fulton’s index) of brown trout due to stress by increasing acidity (Hultberg and Andersson, 1982; Alenäs *et al.*, 1991; Barlaup *et al.*, 1994). The decreased growth may also partially be dependent of a change in brown trout behaviour as they usually become more stationary (in most favourable areas), resulting in decreased catchability both by netting and angling.

REACIDIFICATION

Reacidification, as defined in this paper, is principally a decrease in ANC leading to increased acidity and the cause is an intentional halting (temporary or permanent) of further liming of any surface water lake or stream.

So far, the practical experiences of reacidification effects are very limited, as only a few experimental studies have been performed. The results of these studies include significant negative changes of water chemistry and partially drastic changes of lake biota, in short time developing patterns typical for acidified ecosystems (Alenäs *et al.*, 1991; Dickson *et al.*, 1995; Andersson and Hultberg 1997; Edberg *et al.*, 2001). Similarly, releases of metals, e.g. Al, Cd, and Zn, from sediment cores has also been demonstrated in laboratory experiments with successively reduced pH of the water column (Eriksson, 1998; Wällstedt, 1998; Wällstedt and Borg 2002).

Termination of liming in a lake treated for many years to resist acidic loading, consequently leads to reacidification in a rate primarily depending on the water turnover time, but also on the lime treatment method. Principally this change could be anticipated as being similar to the original acidification, however, the reacidification will be characterised by much faster changes as current acid loading still is high, and catchment neutralisation capacity (weathering and ion exchange mechanisms) have been largely exhausted.

Observations of reacidification effects

At present, only a few studies of reacidification effects have been performed, most of them in Sweden. Some lakes in southwestern Sweden have been studied, *e.g.* Lake Lysevatten (Alenäs *et al.*, 1991; Andersson and Hultberg, 1997) and Lakes Vammsjöarna (Abrahamsson 1997) both in the province of Bohuslän and Lake Råvekärrens Långevatten close to Gothenburg (Dickson *et al.*, 1995). Currently Lake Trehörningen and Lake Långsjön in the Tyresta National Park south of Stockholm (Edberg *et al.*, 2001) and a previously limed river in the province of Härjedalen are studied by SEPA. Furthermore, the treatment of Lake Hovvatn in Norway (Raddum *et al.*, 1986), and some lakes in North America (*cf.* Porcella, 1989; Keller *et al.*, 1990a) were performed such that reacidification followed successively after an initial treatment. Although, the reacidification came after a much shorter duration of the limed period than in the above mentioned Swedish cases, these latter cases will contribute some knowledge about possible ecosystem responses.

The case studies are all experimental research studies with an ecosystem approach and they embrace different lake types. However, all lakes being sensitive and located in areas subject to high or moderate acid loading implying that, to the extent the responses relate to rate and final status, the observations may represent a worst case scenario. The liming applications differ between lakes, though generally doses were of the order 20 to 35 g m⁻³, and only in Lake Råvekärrens Långevatten and Lake Trehörningen the treatment was repeated for longer periods. In the other lakes, single dose treatment with variable duration occurred (Dickson *et al.*, 1995; Hultberg and Andersson, 1982; Keller *et al.*, 1992; *cf.* Porcella, 1989; Wright, 1983). The catchments of the limed rivers in Härjedalen were treated by wetland limings applied by helicopter. The doses were 200 - 500 kg ha⁻¹ catchment and started in 1983 - 1985 (Borg *et al.*, 1995).

General Water chemistry

After terminated liming the pH of the water in Lake Råvekärrens Långevatten decreased rapidly from around 6.5 to 4.5 in two years. The pH of the surficial sediment was during the first year following terminated liming higher than in the water column. After another three years, the buffering capacity of the sediment had decreased and the pH was 5.3, the same level as in the near-bottom water. The concentration of phosphorus decreased from 15 to 10 µg L⁻¹ as an average. The nitrate consumption, which during the limed period caused summer concentrations of nitrate to be around 10 µg L⁻¹, decreased and the summer concentration during reacidification was 20 - 110 µg L⁻¹, in spite of the relatively high phosphorus concentration (Dickson *et al.* 1995).

The heavy, single lime dose spread in Lake Lysevatten resulted in pH>7 and alkalinity levels close to 0.2 meq L⁻¹ which persisted for a couple of years when dissolution

from bottom stores compensated for acidic input. Starting from 1977, the alkalinity and pH decreased and by the end of 1980 the alkalinity became zero. Concurrently, the acidity increased progressively to reach a pH of around or below 5 during 1983, a time period equivalent with approximately 4 water renewals (2.5 years) following liming. Notable acid events were observed in the surface water 1979 and in the bottom water 1981 (cf. Hasselrot *et al.*, 1987). The calcium concentration decreased in a similar way, though pre-liming levels were not reached until 1985/86. Other major ions (except Mg) were not much influenced by the liming – reacidification development. Phosphorus and nitrogen tended to increase directly after liming, then phosphorus decreased with a temporary increase only during 1984/85 (as did several other ions) while total nitrogen stayed at a somewhat higher level post-liming. Following liming, nitrate increased and reached 200 to 350 $\mu\text{g L}^{-1}$ around 1980, despite concurrent increase of summer consumption, then followed decline almost to pre-liming values during the reacidification. High consumption rates were observed both before and after a renewed liming in 1986.

As a result of the terminated liming in Lake Trehörningen, pH decreased significantly from annual median 7.1 in 1991 to 6.1 in 1999. Alkalinity and Ca concentrations also decreased significantly from annual median 0.42 meq L^{-1} in 1991 to 0.03 meq L^{-1} in 1999 and 0.62 meq L^{-1} to 0.15 meq L^{-1} , respectively. The levels of TOC and colour remained relatively constant (Edberg *et al.*, 2001).

In the catchment in Härjedalen, a fast pH decrease was registered in the runoff water. The first spring flood after the termination of the wetland liming caused pH values of around 5.0. In the reference stream, still treated by wetland liming of the catchment the pH remained around 6.5 (ITM, unpublished data).

At Lake Hovvatn in Norway, the partial single time liming in 1981 caused only short-term responses for approximately 2 to 4 years, with the most significant effect being the prolongation of increased calcium concentrations (Raddum *et al.*, 1986). Other parameters such as, pH, nutrient concentrations and total organic carbon showed a clear treatment response for a time period approximately equivalent with two water renewals (1.6 years), then reacidification was rapidly approaching completion. However, Ca, pH and ANC remained somewhat higher and Al lower than pre-liming for several years. Despite a more marked response (larger dose), the development was similar in Pollen, a small upstream tarn, though reacidification was slower, prolonged during 5 to 6 years, with summer pH-values above 6 occurring for four years.

Hydraulic residence times well below one year caused much of the liming response to reverse within one to one and half year in Cranberry Pond and Woods Lake respectively (Driscoll *et al.*, 1989a). ANC, reaching high levels of ca. 0.4 meq L^{-1} immediately following liming of Woods Lake, returned almost to pre-liming values within 16 month when lime treatment was repeated.

The liming in Bowland Lake resulted in a pH increase from 4.9 to 6.7, and it was effective for approximately 4 years (a little more than 1 theoretical retention time) until the moderate added alkalinity was lost and reacidification became significant (Molot *et al.*, 1990a; Keller *et al.*, 1992).

Metals

During the reacidification period the concentrations of Al, Cd and Zn in the water of Lake Rävекärrs Långevatten became very high. Al increased from values around 100 to 200 - 500 $\mu\text{g L}^{-1}$ with the highest concentrations during winter, Cd increased from 0.05 $\mu\text{g L}^{-1}$ to 0.2 - 0.3 $\mu\text{g L}^{-1}$ and Zn from 10 to 30 - 40 $\mu\text{g L}^{-1}$. During the limed period the metal concentrations in the sediment were high and three years after the liming stopped, the same or somewhat lower concentrations were measured. However, high levels of Zn and Cd were found in the near bottom water layers, which may indicate a release of metals from the sediment (Dickson *et al.*, 1995).

No pre-liming or immediate post-liming measurements of aluminium concentrations exists from Lake Lysevatten, though up to 1980 the liming probably resulted in significant decrease of the high concentrations observed in small input streams (cf. Hultberg and Andersson, 1982) and the situation might have been approximately analogous to the observations in the nearby Lake Gårdsjön (Nilsson, 1985). Early during reacidification, high concentrations of total aluminium were observed (50 to occasionally 200 $\mu\text{g L}^{-1}$) and these tended to increase somewhat towards the end of the reacidification period (annual values 100 to 200 $\mu\text{g L}^{-1}$) with highest concentrations generally recorded during the spring. During the late reacidification phase, the inorganic labile fraction became dominant in the lake water, and in December 1985, labile inorganic aluminium was 130 $\mu\text{g L}^{-1}$ in epilimnetic water but 220 $\mu\text{g L}^{-1}$ in hypolimnetic water at pH 5.0 and this was suggested to indicate re-dissolution from the sediment (Andersson and Hultberg, 1997).

The levels of total Al, Mn and Cd increased significantly, especially after 1995 when the annual median pH reached 6.0 in the Lake Trehörningen. Zn, Cd and labile Al reached their peak values during 1998 when also the lowest annual median pH was recorded. The levels of Cu and Pb did not change significantly during the period. No increase in the metal concentrations the reference lakes (a continuously limed lake and a nonlimed lake) occurred during the period (Edberg *et al.*, 2001).

The river water of the previously limed catchment in Härjedalen, showed an increased portion of labile inorganic Al, simultaneously with the decreased pH. Labile inorganic Al concentrations in the stream were approximately five times higher compared to the reference stream about one year after the last lime treatment (ITM, unpublished data).

The neutralisation in Lake Hovvatn and Pollen caused a substantial decrease in concentrations of total aluminium, which were approximately halved and stayed so for three years. However, already during the second winter, concentrations increased temporary and in the third spring an episodic event was recorded in Pollen, with concentrations far outranging pre-liming values. Except for a 50 % decrease of manganese, reactions of other trace metals to liming were none (Wright, 1983). As reacidification proceeded levels of aluminium slowly increased and in Lake Hovvatn reached about 100 $\mu\text{g L}^{-1}$ as labile Al in 1984 (Barlaup *et al.*, 1994).

In Woods Lake and Cranberry Pond aluminium concentration slowly increased following liming, from values between 2 to 5 $\mu\text{mol L}^{-1}$, lowest for labile monomeric aluminium. Contrasting very low levels in the water mass of Woods Lake, significantly

increased ($>12 \mu\text{mol L}^{-1}$) labile monomeric aluminium concentrations were observed superficially layered already during the first winter, and concentrations of all forms increased successively as reacidification proceeded. The lime treatment decreased concentrations of Mn and Zn in Woods Lake significantly and this effect sustained with little change during reacidification until renewed liming (16 month later).

In Bowland Lake, the liming reduced concentrations of aluminium and manganese of lake water substantially, and these levels only slowly started to increase during reacidification, while heavy metals generally were below detection limits and no response was observed (Molot *et al.*, 1990a). Following liming, the observed episodic acid events introduced toxic levels of aluminium, though this layered inflow water generally was restricted to a very shallow zone and probably without noticeable biotic effects, in contrast to the observed pre-liming whole lake influence.

In an experimental study, sediment cores from eight different limed and unlimed lakes were incubated in the laboratory and experimentally acidified successively down to pH 4.2. The concentrations of most elements increased substantially in the overlying water columns, with Zn, Cd and Mn being the most mobile metals, followed by Al and Pb. The inorganic monomeric fraction of Al increased relatively as the pH decreased. The highest concentrations of metals (Cd, Zn, Mn and Al) were generally reached in the cores with sediments originating from limed lakes. No increase of metal concentrations was registered in untreated reference cores. Changes of sediment pH and redoxpotential in the acid treated cores indicated that 1 - 2 cm of the uppermost sediment layers was influenced by the treatment. An estimation of the annually released amounts of Zn and Cd from the sediments, extrapolated to a typical forest lake catchment, indicated that it might be of the same order as the runoff from an acidified catchment, and larger than the direct deposition from the air. (Wällstedt, 1998; Wällstedt and Borg 2002). In a similar experiment, the overlying water of sediment cores from Lake Gårdsjön, SW Sweden, were experimentally acidified to pH 4.5. A fast release of base cations and Al from the sediments was registered, and a slower release of Zn and Mn. It was concluded that the topmost centimetre was active in the cation exchange. The net amount of Al released was small but high concentrations may still be reached in the water column. In the actual experiment the concentrations in the water were doubled. Depending on the thickness of the active layer and the store of exchangeable Al, considerable release of Al from the sediments might occur in the perspective of years (Eriksson, 1998).

In a laboratory experiment with homogenised sediments Fimreite *et al.* (1996) found remobilisation from sediments to be a significant contributing factor for Cd in water. In an experiment with sediment – water slurries at different pH, Gambrell *et al.*, (1991) found that a change from near neutral, reduced conditions to moderately acidic, oxidising conditions would cause a large release of Zn and Cd from the sediments. In a similar experiment, Arafat and Nriagu (1986) observed that a large percentage of pollutant metals (Cu, Ni, Zn, Cd and Fe) in sediments are mobile. From a laboratory experiment with acidification of visually undisturbed sediment cores Andersson and Gahnström (1985) pointed out the importance of sediments in regulating metal concentrations in overlying water and suggest that sediments can act as a potential source of heavy metals in acidic lakes. Matschullat and Wyrobek (1993) found that metals remobilise when reacidification occurs, but suggest that the absolute amount of metals being released via remobilisation from sediments would be relatively small compared to the amount transported into the lake via acidified tributaries.

Biological effects

Plankton

The number of species of phytoplankton decreased drastically during the reacidification of Lake Råvekärrens Långevatten, from 40 - 50 to only seven, with a strong dominance of the acidophilic *Dinobryon pediforme*. A marked decrease in the number of species occurred when pH was reduced to just below 5.8. Similarly, zooplankton showed a reduced number of species but some less sensitive species increased relatively. During the limed period, rotifers were abundant, while the reacidification completely eliminated four species and caused a dominance of *Keratella cochlearis*. Among the crustaceans, *Cyclops* decreased while *Diaphanosoma brachyurum* and *Eudiaptomus gracilis* increased relatively.

Following a very positive development in Lake Lysevatten with increased diversity and biomass during a couple of years post-liming, changes became apparent around 1979/80 in the phytoplankton community (Hultberg and Andersson, 1982). The alga *Peridinium inconspicuum* returned as an abundant species and for several years, low number of species was observed at each sampling and also small biomasses. Species that occurred following the liming such as *Kephyrion*- and more demanding *Dinobryon*-species disappeared without being replaced by more enduring taxa. Andersson and Hultberg (1997) found towards the end of reacidification, coincident with the increase in mean annual phosphorus levels, increasing number of phytoplankton species (new chlorophycéans and also increasing biomasses (mainly due to abundance of *P. inconspicuum*). A positive rotifer species response following liming, including e.g. *Conochilus unicornis* and *Asplanchna*-species, changed during reacidification when species became less abundant and finally disappeared. During reacidification, occasionally occurring daphnids again disappeared while *Diaphanosoma brachyurum* increased. Rotifers like *Keratella* spp increased significantly during late reacidification but the decrease following renewed liming (contrary to the first liming), may indicate importance of interactive patterns in similarity with the response of *Diaphanosoma*. The zooplankton community was depauperated as fewer species (15 - 20) were encountered than pre-liming and especially sharply contrasting the high abundances and increased number of species (20 - 35) post-liming (Andersson and Hultberg, 1997)

After the ceased liming activity in Lake Trehörningen, the number of phytoplankton taxa varied between 30 and 61, with maxima in 1993 - 1994, and later, when pH decreased substantially, only 30 - 36 taxa were recorded. Several documented acid-sensitive species e.g. *Scenedesmus* spp (Hörnström, 1999), were missing in Lake Trehörningen, while they still occurred in the repeatedly limed reference lake. In the acidic, nonlimed reference lake, the number of taxa was not markedly changed.

The liming in Lake Hovvatn included presumably only minor changes in phytoplankton, however, in lack of pre-liming data and regarding the observed interannual changes in the unlimed Lake Lille Hovvatn, these observations were inconclusive, as would be any change relating to the proceeding reacidification. In relation to the mean biomass of $\sim 0.1 \text{ g m}^{-3}$, the annual production rate in both the acidic and the limed lakes, 20 to 25 $\text{g C m}^{-2} \text{ y}^{-1}$, was high during 1982. In contrast, cladoceran species (*Diaphanosoma brachyurum* and *Holopedium gibberum*) increased significantly as did rotifers, the latter group reached population levels tenfold higher during 1983 following liming (Raddum *et al.*, 1986). Throughout the study period, the acid tolerant copepods *Heterocope saliens* and *Eudiaptomus gracilis* (like in Lake Lysevatten) were abundant. The further development during reacidification is unknown but the re-stocking with brown trout probably meant

changed interactions and re-structuring of the plankton community, in spite of a comparatively low fish density during this period.

The plankton community in Cranberry Pond and Woods lake responded strongly and mostly negatively to the conditions created by the heavy lime treatment. On a more long-term time perspective, changes included increased number of new phytoplankton species mostly belonging to chlorophytes and chrysophytes (Bukaveckas, 1989). Among zooplankton, the most significant change was the decrease of the acid tolerant rotifer *Keratella taurocephala* and minor expansion of a few other species, while *Daphnia catawba* again decreased during early reacidification (Schaffner, 1989). However, the possibility for changed interaction patterns as fish was introduced may make conclusions about causes for observed biological effects of a very short reacidification period dubious.

Following liming of the Canadian Bowland Lake, a few changes of species composition was obvious but changes of biomass and chlorophyll a was insignificant, as was any early signs of reversal due to reacidification (Molot *et al.*, 1990b). Contrasting this was a substantial increase in species diversity and biomass of zooplankton and simultaneously was decreased abundance observed among typical acid tolerant species (Keller *et al.*, 1992). New species occurred and became important for several years after liming but during early reacidification (pH around 5.5), much of this positive development was reversed, when again acid tolerant species regained higher population abundances while some sensitive species decreased. However, interfering with this simple response was also a temporal pattern apparently linked to biological interactions, including predation by fish and *Chaoborus*.

Macrophytes

In Lake Rävökärrs Långevatten, drastic effects on macrophytes were registered, as the earlier very abundant *Myriophyllum alterniflorum* decreased and disappeared completely after three years of reacidification. After four years of wetland liming, *Myriophyllum* had not returned. Also *Elodea canadensis* and *Potamogeton natans* disappeared during reacidification, while the more acid tolerant red alga *Batrachospermum* increased (Dickson *et al.*, 1995).

In Lake Lysevatten, the response of the macrophyte vegetation and especially growth of filamentous algæ was most remarkable and it comprised several unexpected components. The liming killed all *Sphagnum* sp. occurring on littoral bottoms, concomitant with disappearance of *Mougeotia* from the shore zones. Furthermore, recolonisation of isoëtids and *Potamogeton natans* were observed and the latter species progressively increased in one single dense stand. On some profundal bottoms *Sphagnum* survived but growth rate was substantially reduced (Hultberg and Andersson, 1982). Following the intensive acid event in 1979 a reversal started; growth rate of *Sphagnum* increased and increasing *Mougeotia* abundance occurred at the shoreline. Thereafter, development was fast and by 1982 the abundance of *Mougeotia* had reached nuisance levels. Growth pattern gradually changed from long slicky typical epiphytic/epilithic to a bottom located (metaphytic) more tussock-like compressed appearance, which in 1984 occurred in large amounts on bottoms down to 4 - 6 m around the lake. During this year also the *Potamogeton natans* stand finally disappeared following a successive decline for several years, and the first occurrence of *Sphagnum* on littoral bottoms was detected through surveys. In 1986, the biomass of *Mougeotia* reached 6.6 g C m^{-2} as lake average and maximum biomass in small sample areas was around $150 \text{ g D.W. m}^{-2}$ totalling almost 6000 kg D.W in the lake. *Sphagnum* increased fast during the late reacidification when annual

growth rates were similar to rates found in acidic non-limed lakes, though the total biomass of ~200 kg D.W. was far from what was originally found pre-liming: several thousand kg D.W. during 1973, similar to findings in the nearby Lake Gårdsjön (Grahn, 1985). Shading due to the extensive growth of *Mougeotia* may have been responsible for the lower isoëtid production experimentally observed in 1986 as compared to 1987, following renewed liming which caused a drastic decrease of *Mougeotia* (Andersson and Hultberg, 1997).

Changes following liming in Woods Lake include a decrease of extensive beds of the macrophyte *Utricularia purpurea*, and nothing further is said about its development (Bukaveckas, 1988). However, reversal of changes following a short-term and partially weak reacidification would rather have involved other fast responding components of the ecosystem (like e.g. filamentous algae).

Jackson *et al.* (1990) reports on changes among filamentous algae and macrophytes in conjunction with liming and early reacidification in Bowland Lake. Structurally distinct communities of epilithic, epiphytic, and metaphytic algae occurred in the acidic lake before treatment. All these communities were dominated by green algae. A waterline epilithic community was dominated by *Mougeotia* and the species still occurred following liming though coverage was much reduced and *Zygnema* became dominant. A more diverse community occurred submersed, and this was totally reduced following liming but returned in 1985 when reacidification was in progress. Pre-liming, the epiphytic community was dominated by *Mougeotia*, but following a drastic reduction caused by liming, the re-establishment during 1985 resulted in a community with *Zygogonium* as the dominant species. A primary metaphytic community with *Zygogonium* as dominant was virtually exterminated following liming and did not return during reacidification. In contrast to this, a secondary community dominated by *Mougeotia* and *Spirogyra* was little reduced following liming but species composition changed to a large extent during the progress of reacidification.

Benthos and “active fauna”

There were several different responses of benthos following the liming in Lake Lysevatten. From an almost fishless lake dominated by invertebrate predation, the system changed as fish was introduced by restocking, and furthermore, improved water quality enabled sensitive biota to survive following recolonisation. Notable changes include the prolonged increase of *Asellus aquaticus* on successively deeper bottoms, and increasing population late after onset of reacidification, but again decline at the end of the reacidification period. Total biomass of the abundant chironomids decreased following liming and shifts in dominance between major groups occurred (most notably on the profundal bottom), whereafter the biomass remained low throughout the post-liming period and during early reacidification. Starting in 1985, however, there occurred major changes during the final phase when biomass increased significantly and groups again shifted towards a dominance pattern similar to pre-liming (Andersson Hultberg, 1997) The reacidification decreased the abundance of the ephemeropterans above all *Cloëon dipterum* and a gradual increase of invertebrates occurring pelagic. Following liming and restocking with fish, the “active fauna” including corixids, *Chaoborus* and some species of zygopterous odonates was almost extinct while being very dominant pre-liming when fish was scarce. Observed changes reflected adaptation by mainly shifting to new habitat (*Chaoborus*) and more strict regulation by predation (corixids, zygopterans, and partially *Asellus*) as well as reactions to changes in the bottom habitat (chironomids), and most of these again reversing during lake development towards reacidic condition.

Pre-liming, the highest abundance of benthos was found in the littoral zone of both Lake Hovvatn and Pollen. Following liming, ephemeropterans and chironomids increased notably year by year up to and including 1983, the highest abundance of chironomids occurred on the deeper bottoms (5 and 10 m.) though (Raddum *et al.*, 1986). As has been observed in other studies, these changes also included species shifts and by other changes in benthic fauna may also include changed interactions. Thus, the “positive” changes to the benthos community induced by liming occurred progressively, in spite of the concurrent trend with increasing acidity and aluminium levels in epilimnetic water. The occurrence of lag periods in the reaction of certain species or groups of especially the benthic fauna makes development more complex and indicate that both intrinsic as well as structural dependent ecosystem factors may be important for the overall response.

In Woods Lake and Cranberry Pond, studies include epilimnetic insect assemblages (“active fauna”) that before liming showed much of the typical characteristics of other acidic and/or fishless lakes (Evans, 1989). This fauna component (hemipterans, *Chaoborus* and zygopteran nymphs) is very vulnerable to predation from fish and as fish was restocked in the lakes following liming, much of the observed decline to an almost complete elimination hence was due to predation. As many benthic insects have populations responding on an interannual basis, positive reactions proceed at the same time as reacidification starts, exemplified by fish taking amphipods as prey in late 1985 when Cranberry Pond hastily became acidic. Therefore, missing remarks about reactions of benthos or “active fauna” towards the beginning reacidification is not strange.

In Bowland Lake, the situation was rather similar, Keller *et al.*, (1990b) concludes that most of the observed changes in abundance, biomass, and size structure of benthic organisms were the result of changes in the fish community. Furthermore, it is claimed that many common acid-sensitive taxa had not appeared two years following liming due to recolonisation in many situations being a process needing time.

Fish

Lake Lysevatten was devoid of fish one year before and one year after liming but was successively restocked with both brown trout (*Salmo trutta*) and brook trout (*Salvelinus fontinalis*). Early in the reacidification phase brown trout reacted negative with lowered condition (Fulton’s index) and decreased catchability and from 1981 onwards, brook trout reproduction ceased though already in 1979 a reduced recruitment was obvious (Hultberg and Andersson, 1982; Andersson and Hultberg, 1997). Restocking with 1+ brown trout 1982 became a complete failure; no recapture of this year-class was recorded, and in the years that followed several dead brown trout were sampled along shores, especially in the spring. A few large brown trout in good condition (Fulton’s index >1) was caught, while repeated catching occurred concurrently of identified specimens decreasing in weight by around 30 % during a 13 month period. In the nearby similarly limed Lake Bredvatten, a very severe acid event in 1977 resulted in a decreased Fulton index among brown trout, and two years later, when the reacidification resulted in very low alkalinity, the brown trout catchability decreased so even catches by gillnets became very low. A repeated liming restored catchability and condition of caught fish had increased significantly within one month after liming (Hultberg and Andersson, 1982).

Following liming of Lake Hovvatn, brown trout was restocked showing better growth and condition (Fulton’s index) in Lake Hovvatn (lower stocking density) compared to Pollen. The stocked brown trout attempted to spawn in the Lake Hovvatn, as observed during 1983 (Raddum *et al.*, 1986). The further development of these stockings was

surveyed by Barlaup *et al.* (1989,1994), who observed decreased growth in successive restockings as reacidification progressed. An acidity induced mortality was observed (acidic water with high levels of inorganic labile aluminium), though apparently delayed due to occurrence of refugia. Some of these effects were again reverted when liming was repeated in 1987, though for many years reproduction impairment occurred due to winter – springtime increases in acidity and labile aluminium (Barlaup *et al.*, 1998).

In Woods Lake and Cranberry Pond, restocked brook trout (*Salvelinus fontinalis*), being the indigenous fish of this type of lakes, thrived as long as water chemistry was acceptable, and in Woods Lake also some reproduction occurred. However, comparatively quick reacidification of Cranberry Pond resulted in significant reduction of production and biomass (increased mortality) as well as migration downstream to Woods Lake where water chemistry remained suitable for a longer period (Gloss *et al.*, 1989; Schofield *et al.*, 1989). Similarly to Lake Lysevatten, a few fishes surviving the reacidification of Cranberry Pond exhibited marked improvement in growth and excellent condition (Schofield *et al.*, 1989).

Following liming of Bowland Lake, remaining yellow perch (*Perca flavescens*) and reintroduced lake trout (*Salvelinus namaycush*) successfully reproduced, and field tests showed survival of lake trouts embryos to be much improved (Gunn *et al.*, 1990). Springtime episodic acid events continued to occur but no adverse effects to the fish populations were observed. Inter- and intra-species competition influenced growth and body condition (Fulton's index) but towards the end of the study period both species regained a better status despite increasing reacidification.

EXPECTED EFFECTS OF REACIDIFICATION

The reacidification process implies that acidic inflow progressively exhausts the introduced alkalinity and replenish limed water, whereby acidity and metal concentrations of lake water increase. A simple anticipation would be, disregarding possible hysteresis effects, that much of what has been observed following original acidification again will be observed. However, in objects where the limings only affected the lake or stream *per se*, there exists one fundamental difference which could result in much higher rate of change than originally. The initial acidification affected the surface waters only when the soil buffering became significantly depleted. Currently, this soil buffering is severely exhausted in many areas, and the response to concurrent, and in many cases even future, acid loading will become immediate. Therefore, time perspectives for the reacidification depend of hydraulic residence times and eventually some sediment buffering. Wetland liming as method implies specific conditions regarding distribution of the limestone, lake or stream characteristics *etc.*, Terminated liming of wetlands might also be expected to include some specific secondary effects caused by processes within the wetland soils, to a varying degree dependent on site characteristics.

Reacidification effects on ecosystem structure and biological interactions

Lakes

The effects caused by reacidification will vary, probably within wide limits, primarily dependent on intensity and rate of change (dependent of acid loading and water residence time). However, the biological change will also to a variable extent be dependent

on the structure of ecosystems and related to the biotic interactions regulating the system. Initially, both structure and patterns of interaction will generally show a clear connection to the specific acidification- and liming history, *i.e.* how much was any particular system changed due to acidification and what amount of “recovery” has occurred following liming. During the course of reacidification, changes like decreased or total loss of fish predation would trigger changes that initially become more important than water chemical changes. In the following of this section, the possible relations of these biotic mechanisms to the issue of reacidification are outlined based both on known observations and more hypothetically. A first major division of possible responses can be made based on two possible acid loading extremes:

- *HIGH ACID LOADING*. Three different cases may be discernible based on structure and intensity of biotic interactions mostly linked to composition and abundance of fish populations.
 - i) A system undergoing reacidification may be devoid of fish, although this category is a fairly unlikely one, it should generally comprise very small and remote headwater lakes (with colonisation restrictions) solely limed to secure stream or river system areas further downstream. Following liming, the structure of such a system would generally have changed moderately as predator regulation by invertebrates continues to dominate. However, temporarily more pronounced change (cf. Larsson, 1988, Stenson *et al.*, 1993) may have occurred and resulted in viable and sometimes very abundant populations (cf. Hasselrot *et al.*, 1984; Svensson *et al.*, 1995). Such lake ecosystems should be structurally and functionally rather stabilised if liming period has been long enough for recolonisation to be almost “complete”. By reacidification, some acid- and aluminium-sensitive species of both zoo- and phytoplankton would suffer population losses and in many cases declines will be linked between trophic levels. Benthic and “active fauna” reactions following liming would be much dependent on initial structure and possibilities for immigration of different groups. Eventually established and thriving populations of sensitive ephemeropterans and *Asellus* will be severely affected as lakes reacidify. The same may hold for changes among chironomids (cf. Mossberg and Nyberg, 1989), but among those species shifts will be linked to changes of the bottom vegetation, with *e.g.* filaments of *Mougeotia* and *Sphagnum* plants reappearing, creating a specific habitat structure. Such lake ecosystems are expected to quickly revert to almost pre-liming conditions with a low species diversity, however, stochastic establishment of single competitive species may, at least, temporarily dominate such a system.
 - ii) Some of the limed lakes only had remnants of a single-species fish population, be it perch, pike, brown trout or arctic char. If immigration of other species is impossible and no restockings are made, the lake will develop an ecosystem regulated by a single top predator also following liming. This would generally imply a moderate but rather selective predation pressure in case of pike, brown trout and arctic char. Created is an ecosystem with low abundance of pelagic invertebrate predators and intensified competition among zooplankton, giving some efficient filtering species a competitive advantage which in turn may influence dominance among phytoplankton (cf. Svensson *et al.*, 1995; Nyberg, 1998). The change may however, implicate a dramatic increased predation if perch reproduction is successful when also the resultant population will become large but composed of stunted individuals. Predation by such a perch population would regulate zooplankton composition towards smaller size (complementary species) and thereby change the structure. In both cases, the benthic community “recovers” presumably to a higher degree and comprises species numbers

and diversity similar to pristine ecosystems if given time. The reacidification of such a lake ecosystem may imply more drastic decreases of species diversity as several sensitive species may disappear simultaneously with changes caused by altered predator – prey interactions as the fish populations decrease. Rate of overall change may cause a certain degree of instability as some interactive mechanisms disappear without being replaced by new ones. This situation bears in some respects similarities with the development observed in Lake Lysevatten (Andersson and Hultberg, 1997), where the nuisance growth of *Mougeotia* was the most unexpected and undesirable phenomenon occurring during reacidification. Within a decade of reacidification, such lakes would probably end up with the typical and stable “acid-state composition” (cf. Stenson *et al.*, 1993; Appelberg *et al.*, 1993) although in a long-term perspective high acid loading could ultimately eradicate the fish population transforming the system to category i), though this is not very likely accounting for the ongoing general decrease of acid loading (cf. below).

iii) Even in areas with high acid loading, liming during decades may result in comprehensive recovery to almost pristine conditions, including a more diverse fish fauna with a lot of interspecies interactions (cf. Appelberg, 1995). Such systems have a multitude of predatory and competitive interactions within and between trophic levels. If, for any reason, a species is lost this may be compensated via take-over of functionally similar new or already present species resulting in little effect on the system (cf. Havens and Carlson, 1998). When the reacidification affects several sensitive species populations or cause decreased fish predation, responses due to altered predator – prey and competitive patterns will occur and probably result in a fundamental change of the system. This will temporary include increases of some populations earlier inferior in a competitive interaction, such as perch versus roach, when roach disappears due to its much higher sensitivity for acidification. Changes will proceed for long and be slower than in the single species lakes, although the final result presumably would be rather similar. The more complete ecosystem composition and complexity of interaction patterns will probably diminish potential for unexpected changes but also here rate of change may be important. The overall changes occurring in this category of systems will include losses of biological diversity and in some regions the reacidification may even affect classified endangered species.

- *LOW ACID LOADING*

i) Lake ecosystems of this category were less damaged and so were fish populations. Thus competitive interactions and fish predation continued to be an important regulative mechanism. Therefore, in many of these lakes changes occurring following liming were minor and consequently, they will be so also during reacidification. Low acid loading originally means low input of toxic aluminium and low risk for severe episodic acid events, furthermore, this lake category may comprise quite a number of those lakes currently estimated not to reach pH levels below 6. The reacidification in this situation may, for the worst, cause a slowly decreasing recruitment to very sensitive fish and loss of some very sensitive biota a development that even may halt or reverse during time as external loading decrease further in the future. If a lake ecosystem finally ends up with an ANC around zero, then variable pH and amounts of toxic aluminium might cause interannual variation in species composition and abundance giving the impression of a fairly unstable and changing system. However total damage could still be moderate and *e.g.* fish production good.

ii) A specific category comprises lakes that were limed before any significant biological damage occurred. In such ecosystems, changes related to liming are probably non-existent or minor, and the risks for future damages caused by reacidification are really insignificant. Considering the decreased deposition that has occurred during the last decade, and which will proceed, halting liming in such systems would only affect ANC while changes of pH and toxic aluminium would be less. As was noted above, any change in management in these systems must, however, consider the risk for damage to endangered vulnerable species whose presence is much more likely in these originally undamaged systems.

Streams

In streams, the importance of interactions between fish populations and the invertebrate communities for structuring of the ecosystems is less clear although it is generally presumed that the abiotic regime exerts a larger regulation (cf. Herrmann *et al.*, 1993). However, an example of the opposite relation is the specific co-occurrence of the mussel (*Margaritifera margaritifera*) and brown trout, the mussel being dependent on the fish for temporary holding and transporting their larvæ. If fish disappears due to acidic water the mussel reproduction stops, though populations can survive for long if conditions are not too acidic. Anyhow, in virtually undisturbed communities, inter- and also intra-species competition and predation among the invertebrate groups would be regulative forces that contribute to the species composition of most streams. To what extent different stream communities affected by limings has approached communities that could be judged as pristine is perhaps controversially. Herrmann and Svensson (1995) repeated a stream survey in southern Sweden, initially performed a decade or two before, where currently regular limings were operational in several cases. They concluded that differences were insignificant and relating to changes also in control streams, observations of species composition probably being more dependent on actual seasonal weather characteristics. Furthermore, they see the results as evidence for a fairly high degree of resilience in these stream communities. On the other hand, Engblom and Lingdell (1984) have found clear changes caused by acidification and clearly observed a recovery occurring progressively downstream from a point where lime dosing was operational (Engblom and Lingdell 1985). Trends of the same kind have been found also by Nilsson and Johansson (1985) in survey studies on different stream liming methods.

As is the case for lakes, this difference may in part be due to differences in acidification damage, *i.e.* severely depauperated communities show increases in species number *etc.* “indicating recovery” while less perturbed communities (though species shifts may have occurred) appear to change very little. If so, this also indicates the possible responses to reacidification, which will become different mainly due to differences in acid loading. In areas subject to high acid loading and severe acidification, originally much damaged communities would be affected by a large and quickly occurring change when acidity and higher concentrations of toxic aluminium again increase, initially presumably by severe acid events. In contrast to this, most probably richer communities in areas with less acid loading and low or moderate acidification, would be little influenced during the consequently less severe reacidification. In the latter situation, the dynamic patterns of species occurrence in streams should be noticed. Lingdell (1997) found during a long-term study, a large number of species, although at any single occasion a rather fixed number constituted the stream fauna assembly. This assembly consequently changed substantially over time as many rare or only occasionally occurring species “passed by” as irregular members of the fauna association. Among the latter group, there is probably endangered species involved sometimes.

Effects related to toxicity of metals

The potential of reacidification to affect metal toxicity includes several aspects of both chemistry and biology. In acidic water, the solubility of metals released from catchment or direct deposited may increase, this is in part due to decreased precipitation. Furthermore the speciation will be changed to a larger portion of free, uncomplexed and non-adsorbed forms, which will also increase the bioavailability of metals. Acidic water may also have the potential to dissolve metals from bottom sediments where they have been deposited during the period with limed water. This has been indicated by field data from the case studies discussed above and shown by laboratory experiments. Furthermore, some of the biological changes caused by reacidification may increase specific metal burdens, *i.e.* the bioconcentration factor (BCF) increases, for diverse groups of organisms as food web interactions change. These aspects of metals in the context of reacidification are reviewed below.

Aluminium

Aluminium plays a central roll for the toxicity to organisms in acidified waters. The most active forms are inorganic monomeric forms such as Al^{3+} , AlOH_2^+ and other positively charged inorganic complexes. The proportion of toxic Al-forms increase when pH decreases below 6.0 (Driscoll, 1980; Borg, 1986). Numerous reports exist today on the effects of Al to aquatic organisms, documented from laboratory tests as well as field studies (*e.g.* Driscoll *et al.*, 1980; Muniz and Leivestad, 1980; Baker and Schofield, 1982; Brown, 1983; Hörnström *et al.*, 1984; cf. Witters and Vanderborght, 1987; cf. Bergman and Mattice, 1990; Herrmann *et. al.* 1993; Hörnström *et al.*, 1995). As an example, The LOEC value for the very sensitive Atlantic salmon in soft waters is around $20 \mu\text{g L}^{-1}$ inorganic Al (Rosseland. and Skogheim 1986; Rosseland *et al.*, 1992; Rosseland and Staurnes, 1994; Havas and Rosseland, 1995, Poléo *et al.* 1997). It has been shown that high concentrations of inorganic Al causes more rapid changes in algal communities than acidity alone (Havens and Heath, 1990). A comparison of plankton communities in strongly acidic lakes with low and high levels of Al indicated that Al could contribute to the observation of low species diversity of plankton communities (Hörnström *et al.*, 1984). Biotests also show significant effects of Al on phytoplankton species at pH below 6,0 (Hörnström *et al.*, 1984). However, it has also been shown that Al has toxic effects and bioaccumulates at $\text{pH} > 6.0$. For example, the maximum toxicity and bioaccumulation of Al in *Daphnia magna* was observed at pH 6.5 (Havas 1985) and the phytoplankton species *Monoraphidium griffithii* and *M. dybowskii* have shown growth reductions caused by Al at pH 6.8 (Hörnström *et al.*, 1995).

Especially in areas with deep soil acidification, such as SW Sweden, where the buffering capacity of the soil is exhausted, release of toxic Al compounds will probably continue for a long time and contribute significantly to the load on the water systems affected by reacidification. Aluminium will therefore continue to be an important negative factor for aquatic life with risks for promotion of damages during a reacidification phase in many water systems.

Cadmium

Similar to Al, also Cd show increased mobility with a shift to more dissolved forms at lower pH in soil – water systems (Bergkvist, 1986; Borg and Andersson, 1984).

Consequently, lakes with lower pH show a decreased sedimentation of Cd, relative to the export from the lakes (Borg *et al.*, 1989). This was documented also in the vertical distribution of Cd in the sediments of acidified lakes, showing a decrease in Cd concentration in the most recently deposited sediment layers (Renberg 1985; Dickson *et al.*, 1995).

The biological uptake of Cd appears to decrease at very low pH-values in algae and the water moss *Fontinalis antipyretica*, a mechanism presumably connected to a competition with hydrogen ions at the cell membranes (Campbell and Stokes, 1985; Lithner *et al.*, 1995). Cd uptake in three species of *Chaoborus* larvae was studied in 28 lakes in Canada (Hare and Tessier, 1998). It was found that sediment Cd concentrations were significantly correlated with larval Cd concentrations for one of the three species (*C. albatus*). For all three species, larval Cd concentrations were significantly correlated with total dissolved Cd concentration in the lake waters, if three very acidic lakes (pH 4.6 - 4.8) from the Sudbury mining area were excluded from the calculation. The correlation between Cd in larvae and Cd concentration in lake water improved further with the free Cd ion concentration (calculated by the free ion activity model, FIAM). To explain the lower uptake of Cd in *Chaoborus* larvae in the highly acidic lakes, the possibility of competition with hydrogen ions and metal ions (e.g. Cu, Zn, Ca) was evaluated. The results of these calculations suggested that hydrogen ions were the most probable competitor for Cd uptake sites on organisms, rather than Cu^{2+} and Zn^{2+} (Hare and Tessier, 1998). Cd concentrations in zooplankton, the food of *Chaoborus* larvae, have been shown to be lower in highly acidic lakes than in circum-neutral lakes (Yan *et al.*, 1990), indicating that similar competitive mechanisms might be present at lower trophic levels, and also showing the importance of uptake via the food chain. Similarly, the body burden of Cd in chironomid larvae was lower at highly acidic conditions (pH 4.4) than at pH above 5.1, which also might be explained by competition with hydrogen ions (Krantzberg and Stokes, 1988). Among lakes polluted by smelter emissions, a decreased bioconcentration factor (BCF) in northern pike and perch liver has been shown in acidic lakes when compared to circum-neutral lakes. These results indicate that similar mechanisms are operating also at higher trophic levels in lakes (Lithner *et al.*, 1995).

However, the bioaccumulation of Cd in biota has also been shown to increase with increasing acidity and decreasing ANC in the water (Livonen *et al.*, 1992). Similarly, Cd in pike liver from 70 Swedish lakes ranging from circum-neutral to moderately acidified, showed a negative correlation with pH (Björklund 1986). Cd in perch liver and benthic invertebrates (*Chaoborus* and *Chironomus*) was also found to decrease following initiation of liming, simultaneously with a decreased concentration of Cd in the water column and an increased sedimentation of Cd (Andersson and Borg, 1988). The first lime dose was relatively small and a temporary increase in Cd in the *Chaoborus* larvae was registered during the first two years after liming, a response that was not observed after the second larger lime dose. The reduced amount of Cd in perch livers might be connected to improved general conditions in the lake after liming, with a more diversified and abundant biota, besides a direct influence on Cd availability in water (Andersson and Holm, 1995).

Lead

In soil – water systems, lead (Pb) is less mobile than cadmium and usually occurs more in complexes with organic substances and adsorbed on humus-iron colloids. When pH reach values below 5.5, also Pb shows an increased mobility and a higher portion of the dissolved (dialysable) form (Borg *et al.*, 1989).

The bioaccumulation of Pb in biota has been shown to increase with increasing acidity and decreasing ANC in the water (Livonen *et al.*, 1992). Several biotests also confirm Pb to be more toxic at lower pH. The pH-induced changes in speciation are more important than any effect of hydrogen ion competition on cell membranes for Pb (Campbell and Stokes, 1985). In acidic lakes, chironomid larvæ have a significantly higher body burden of Pb compared to neutral lakes (Krantzberg and Stokes, 1988). Lead concentrations in larvæ of three species of *Chaoborus* showed positive correlations with total Pb in sediments and water of 28 Canadian lakes (Hare and Tessier, 1998). The correlations were however strongly dependent on one or two of the study lakes. Larval Pb levels in acidified lakes did not seem to deviate from the rest of the lakes. The bioavailability of lead for fish have been shown to increase at lower pH, as the BCF increased in perch liver in more acidic waters, even in relatively humic waters (Lithner *et al.*, 1995). A strong covariation between Pb in water and in *Fontinalis* sp. was also found, indicating that H⁺ competition at biological surfaces was of minor importance for Pb (Lithner *et al.*, 1995).

Copper

As documented from regional lake surveys, Cu concentrations in water do not show the same typical negative pH correlation as several other elements (Dickson, 1980; Borg, 1983, 1987). As Cu is an essential element, the capability of organisms to regulate its concentration is more or less well developed. Hare and Tessier (1998) found indications of an effective regulation of Cu in *Chaoborus* larvae in 28 Canadian lakes with widely varying Cu concentrations in water and sediments. In lakes polluted by smelter emissions in northern Sweden, BCF of Cu was highest in the benthic crustacean *Asellus aquaticus*, compared to other invertebrates and fish. In this case, Cu in *Asellus* showed a linear positive correlation with Cu in water ($r^2 = 0.97$, $p < 0.001$), indicating a less pronounced regulation of body burden. Similarly, Cu in perch liver in circum-neutral lakes increased exponentially with the content in water ($r^2 = 0.98$, $p < 0.001$). Cu in fish liver increased especially when concentrations in lake waters were above $2 \mu\text{g L}^{-1}$ Cu, perhaps indicating a threshold above which the regulation no longer works. The acidified lakes in the material showed elevated levels of Cu in fish liver, and the BCF was negatively correlated to pH ($r^2 = 0.67$, $p < 0.01$), but did not correlate with water colour (Lithner *et al.*, 1995).

Mercury

Several early studies have shown that mercury levels in biota are elevated in acidified lakes (Björklund *et al.*, 1984, Nilsson *et al.*, 1989). The negative correlation between Hg in fish and pH is particularly pronounced for the top predator northern pike in lakes, where the acidification have caused an extinction of important prey like roach. The northern pike in these lakes are forced to eat more perch, containing higher Hg levels than roach. Calculations of the causes of elevated Hg levels in pike in ca. 900 Swedish lakes showed that acidification explained about 35 - 40 percent of the variation, with domestic and foreign emissions also contributing significantly to the explanation of the variance (Nilsson *et al.*, 1989). It was then concluded that high Hg levels in fish would continue to be a problem for a very long time also during the next millennium.

Negative correlations have also been found for different mercury fractions in lake water and pH of Swedish forest lakes (Meili *et al.*, 1991). In these lakes, pH and water colour were strongly intercorrelated, showing an influence of humic substances on the acidity. A multiple regression of Hg on pH and colour showed a stronger influence of watercolour than of pH, except for one of the Hg species that was determined. However,

difference in lake water pH may partly reflect difference in the loading of mercury to lakes, as there is a covariation in the deposition patterns of Hg and acid. Furthermore, acidic lakes are often found in areas with shallow soils, a condition that favours the export of recently deposited Hg from soils (Meili *et al.*, 1991).

Studies of the effects of liming on mercury levels in fish have generally showed a decrease of Hg in fish after liming (Andersson and Kärrhage, 1984; Håkanson *et al.*, 1990; Andersson *et al.*, 1995). Lake liming and wetland liming reduce the Hg levels in northern pike and perch with about 30 - 40 percent in a four year period (Håkanson *et al.*, 1990). Wetland liming was found to provide a better long-term effect. Liming on the whole terrestrial part of the catchment did not seem to have any large influence on the transport of Hg from soils, resulting in no further change of the mercury load to fish populations of the lakes. However, wetlands are an important source of methyl mercury in many lakes (Rudd, 1995) and changes like liming or reacidification that may influence the production or leaching of methyl mercury from wetlands imply a difference in loading to aquatic biota.

A tendency for the occurrence of lower Hg concentrations in fish in the most acidified lakes (pH <5) has been shown in some studies (Verta *et al.*, 1990, Andersson *et al.*, 1995). Following liming of such lakes, an increase of Hg concentration in fish was measured (Andersson *et al.*, 1989, 1991, 1995). Not until nine years later, the Hg levels in northern pike again decreased below values that were observed before treatment started. The same tendency was registered for different weight classes of perch. In a few lakes located downstream of limed lakes, a slight increase of Hg in fish was also demonstrated during the first years after liming (Andersson *et al.*, 1991, 1995). In some cases, increased or unchanged Hg concentrations in northern pike have also been registered after wetland liming with relatively low doses, and some similar mechanism as observed in the case of downstream lakes, might be involved. However, the majority of the lakes treated by wetland liming, showed decreasing concentrations of Hg in northern pike (Meili, 1995).

Possible mechanisms influencing the pH – mercury relationship involve both direct (deposition, transport, and production of methyl mercury) and indirect (lake-internal trophic interactions) processes. The rate of synthesis of methyl mercury by microorganisms in the sediments is lower at low pH, since acid tolerant microorganisms have a lower rate of synthesis compared to the more diverse populations under ambient conditions. But, any dimethyl mercury, which is produced, is converted to mono-methyl mercury by acid hydrolysis. This reaction could increase the fraction of methyl mercury available for accumulation in the water system and lead to increased concentrations in predatory fish (Wood, 1985).

The transports of methyl mercury during different acidification – liming situations are unfortunately not very well known, so the importance of changes in this factor could only be speculative. However, assuming this transport being virtually unaltered even in wetland or soil liming cases, the observed changes in mercury burden of biota should be regulated by lake-internal changes. Thus successful limings resulting in profound biotic changes and increased biomass/production would generally result in lower concentrations of methyl mercury in biota through the whole food web. Less successful limings in the context of biotic changes consequently would result in small or insignificant changes of mercury concentrations or, as have been seen sometimes, even temporary increases.

In spite of a few exceptions such as the ones mentioned above, the overall conclusion today is that liming reduces the Hg concentrations in northern pike and perch in

a period of three to five years after the treatment started. Several earlier studies indicated elevated Hg levels in acidified environments, and predictions show that the Hg load on the lakes will decrease very slowly, even if the emissions decrease fast (Nilsson *et al.*, 1989, Meili, 1995; Meili *et al.* 2002). Of particular interest here is the study of methyl mercury fluxes connected to the roof experiment at Gårdsjön. So far, this experimental decrease of the external mercury load to the soil by approximately 50 % has shown that the efflux from catchment soils may slowly decrease significantly although interannual variation may be large indicating complex regulation of the process (Munthe *et al.*, 1998). Accounting for the slow change and the fact that in many situations catchment soil exports is enough to cause the observed problems, the conclusion is that reacidification of earlier limed lakes and watersheds pose a risk for elevated Hg concentrations, especially if the community structure and food web is damaged.

Manganese

Similar to iron, the distribution and transport of manganese is dependent of the redox potential, reduced forms showing higher mobility. In contrast to iron, manganese occurs largely in dissolved (dialysable form) in soft waters (Borg and Andersson 1984, Borg 1986, Borg *et al.* 1989). Lower pH contributes further to higher concentrations and a larger portion in dialysable form. The release of Mn from wetlands decreased substantially after liming (Borg *et al.*, 1995) and Mn concentrations have been shown to decrease also in lakes treated by lake liming (Persson *et al.* 1997). Lethal toxicity to caged brown trout in mountain streams in Sweden was found to be connected to high levels of free non-complexed inorganic Mn during acid events in the streams (Nyberg *et al.*, 1995). These results indicate that Mn might be more important to explain observed toxic effects in acidic waters than traditionally have been considered.

Cobalt

The leaching of cobalt from soils, the residence time in waters and the transport is enhanced in acidified environments (Granéli and Haraldsson, 1993; Borg and Johansson, 1989). A negative correlation with pH was shown in rivers from SW Sweden, draining catchments at the Swedish west coast area, and a positive correlation was found to aluminium in these waters (Granéli and Haraldsson, 1993). Cobalt is one of the important essential trace metals for algal growth. It has been shown experimentally that the growth of *Chrysochromulina polylepis*, causing algal blooms in Kattegat and Skagerrak, was stimulated by the addition of cobalt (Granéli and Haraldsson, 1993). An increased leaching of cobalt from acidified areas and an increased transport to the coastal waters via river water might contribute to the toxic algal blooms occurring during recent years in the coastal waters of SW Sweden. Responses of cobalt, especially concerning transport in relation to liming is not well-known, hence the same holds for reactions following reacidification, though it would be anticipated that the basic behaviour in acidic systems holds.

Evidence / risks for increased metal concentrations during reacidification

Metal concentrations in surface waters are dependent of different source and sink processes with several other factors or mechanisms acting to modify the resultant metal concentration. Modifying factors include *e.g.* pH, TOC, total chemical environment and biological mechanisms promoting among other things the internal transformations of a particular ecosystem. The sources include leaching from catchment soils or anthropogenic dispersal either directly deposited on surfaces or transmitted via catchment soils.

Anthropogenic emissions of most metals, and especially some industrially dependent heavy metals such as lead, have decreased by up to 30 - 50 % continuously during the last decades (Rühling et al., 1987, 1992). Thus both direct deposition to lake surfaces and deposition to catchments have decreased, implying that for metals like Pb the input and consecutively the concentrations in the water might have decreased. Inputs via transport from catchments have probably decreased as well though transport mechanisms may sometimes be more important for leaching than deposition to the soil *per se*. For these transport processes, acid deposition and resultant changes in the soil could be an important contributing factor. In the context of reacidification, a major influence on metal concentration is anticipated. The effect being due to, either the acidity (pH) or to indirect processes (chemical or biological) dependent of pH but affecting metals in the water.

In some areas with high acid loading, leaching from soils may be affected when the reacidification is due to, or includes as a major part, halted liming of wetland areas. Such changes would be anticipated to significantly effect the input of especially aluminium to the surface waters downstream, as one reason behind this liming strategy has been the trapping of aluminium within limed terrestrial parts. However, Hindar and Lydersen (1997) discuss this possibility and conclude that for theoretical reasons, partially supported by some practical experiences, this dissolution and leaching would not be instantaneous and the resultant concentrations would seldom or never be significantly higher than before liming. Although good proof is lacking, and the exact course of such a process is unknown, it seems plausible that their conclusions hold and probably also is relevant for other heavy metals. Consequently, there should be little risk for disastrous high aluminium levels occurring shortly after halted liming, instead the liming effect is generally prolonged (ion exchange) for a period afterwards. However, in areas with severely and deeply acidified soils, the reacidification will successively lead to increasing aluminium concentration aggravating the effects to the water biota.

In parallel with the above discussion on the re-dissolution of precipitates of aluminium in wetlands, Hindar and Lydersen (1997) concludes that also aluminium precipitated and deposited on lake bottoms should not dissolve preferentially and contribute to higher than pre-liming concentrations. However, there is at least one observation on aluminium indicating the opposite (Andersson and Hultberg, 1997) and for other metals (Zn, Cd) Dickson *et al.* (1995) found very high concentrations above the sediment following reacidification. Furthermore, experimental studies indicate the possibility for rather large re-dissolution and efflux from precipitates or diagenetically transformed metal species residing in the sediments (cf. Eriksson 1998, Wällstedt 1998; Wällstedt and Borg 2002). However, the quantitative significance of these still very few observations is unclear and so is the risk for a more widespread influence to the biota of lakes that would be subject to reacidification. High acid loading and high export of acidity and metals from the catchment to a surface water being reacidified will cause a decline in pH that rather early will effect the speciation of metals in the water. In turn, this will affect the bioavailability – bioaccumulation and change the precipitation pattern which usually would be anticipated to imply a longer residence time in the water phase (Borg *et al.* 1989). A severe and prolonged reacidification would then mean a loss of species and generally a shortening of food web structures (Appelberg *et al.*, 1993; Stenson *et al.*, 1993) which may lead to faster bioaccumulation and larger biomagnification (Hg) resulting in top predatory levels with high body burdens. If fish ultimately disappears, there is still a risk for higher body burdens in predators exploiting the invertebrate predators left in a lake (Eriksson, 1991).

CURRENT TRENDS RELATED TO LAKES AT RISK FOR REACIDIFICATION

During three decades with liming, substantial changes have occurred concerning emissions of many air pollutants and this has consequently affected the deposition – input to the surface waters. In general, a significantly decreased soil loading is the main result of the observed declines for both acidic substances and metals. However, leaching from acidified soils will continue to affect the surface waters for long periods before substantial decreases occur (Moldan *et al.*, 1999). This situation will affect the current and future development in acidified and limed lakes and therefore is important regarding the present issue of reacidification.

Acid deposition

The acid loading to large areas in Scandinavia culminated already during the middle 1970ies, when sulphur deposition to forested catchments in southern and southwestern Sweden reached approximately 25 to 30 kg S ha⁻¹ y⁻¹ (cf. Hultberg, 1985b; Ferm and Hultberg, 1998). In some of these areas, the critical load has been exceeded since the early 20th century and the long lasting acid load has resulted in large accumulations of sulphur in the soils changing some soil characteristics profoundly and with changes notable to depth of two meters or more. The current total deposition has declined to approximately 10 kg S ha⁻¹ y⁻¹ (Ferm and Hultberg, 1998), *i.e.* a reduction with approximately 60 %. The reduction process now proceeds on a European scale (Lövblad *et al.*, 1995; cf. Amann *et al.*, 1998), and will reach an expected level of more than 70 % decrease by 2010, as compared to 1980. Besides acid sulphur, the precipitation also contains nitrogen in both reduced and oxidised forms, and these potentially acidic nitrogen compounds have been only marginally reduced up to the 1990ies. Although, the actual acidity of the nitrogen compounds may be manifested to a varying degree, today there are clear evidence for direct acidification effects to surface waters in Norway (Henriksen and Brakke, 1988; Henriksen *et al.*, 1997).

The reductions of sulphur hitherto have resulted in deposition levels that in northern parts of Sweden are below critical load for acidity, while for some regions in southern Sweden a more far-reaching reduction than the 70 % presently agreed upon is necessary. When the nitrogen deposition is also included it will result in a worse situation, as there are also northern areas where critical load will continue to be exceeded (cf. Pleijel *et al.*, 1999).

Metal deposition

Certain species of mosses assimilate all their nutrients from the air, which makes it possible to use them as a monitor for the metal deposition on the ground. Knowing the growth rate of the mosses, it is also possible to compare the deposition of different years. The regional moss surveys performed in Scandinavia since the 1970ies and in recent years also including most parts of Europe, show a general decreasing trend for the deposition of most metals during the period of investigation.

The deposition of lead is primarily caused by long-range transport. There is a decreasing gradient from south to north over Sweden (from about 20 mg kg⁻¹ to about 5 mg kg⁻¹ Pb in moss). Of the analysed metals, the one showing the largest decrease of the deposition is Pb. A decrease of 50% was measured between 1975 and 1985 and a further decrease of 30% in the later surveys (Bernes 1987, Rühling *et al.* 1987, 1992). The latest surveys in 1995 and 2000 show that the decrease continues (Rühling *et al.*, 1996, and personal communication). Similarly, Pb shows a significant decrease also according to monitoring of wet deposition of metals. None of the other measured elements showed a decrease between 1985 and 1991 (Ross 1991).

The deposition of cadmium is also mainly a result of long-range transport. The deposition is highest in SW Sweden and lowest in the northern parts of the country. There is a decreasing trend with a 48% decrease during 1975 - 1985 and about 15% from 1985 - 1990 (Bernes 1987, Rühling *et al.* 1987, 1992).

Zinc in deposition is originating both from long-range transport and local sources. The south to north gradient is less marked than for Cd and Pb. A reduction of about 20 % of the deposition was measured in the earlier moss surveys 1975 - 1985 (Rühling *et al.* 1987, Bernes 1987).

The deposition of Cr, Ni and Cu is mainly caused by local pollution sources. Ni shows the largest decrease of the deposition, about 20 % in the period 1985 - 1990, the corresponding figures for Cr and Cu being 5 - 10 and 15% respectively (Bernes 1987, Rühling *et al.* 1987, 1992). Recent data on the deposition of Hg also indicate a decrease over Sweden, especially from 1989 and onwards. The deposition in southwestern Sweden decreased from 27 µg m⁻² yr⁻¹ in 1985 - 1989 to 10 µg m⁻² yr⁻¹ in 1990 - 1992. The number of episodes with high total gaseous Hg levels in air also decreased from 1990 and further on (Iverfeldt *et al.* 1995). The decrease of the total burden of total gaseous Hg and the deposition of total Hg is most likely caused by reduced emissions on the European continent.

Conclusively, the moss surveys show a decrease of the deposition of most metals during the last 15 - 20 years. The decline is caused by improved control and treatment techniques for emissions, as well as close down of older factories. In the case of Pb, the main reason is the increased use of unleaded gasoline for vehicles. However, a comparison with low levels of metals in mosses in Iceland, northern Alaska and Arctic Russia, which could be considered as background values, indicates that the levels of Pb and Zn are still elevated, even in Northern Sweden (Notter 1993, Ford *et al.*, 1995; Allen-Gil *et al.*, 2002).

SYNTESIS AND CONCLUSIONS

In spite of a rather restricted amount of observational data concerning reacidification, some very obvious effects will follow if liming is terminated in lakes and streams. Some further effects can be deduced by reference to development during acidification of either the original ecosystem or by reference to similar objects. However, the risk for significant hysteresis effects as occurring during development following liming implies that every single object must be carefully assessed for possible course of development following a termination of liming.

Monitoring and recovery experiments in areas with high acid loading (cf. Wright *et al.*, 1993; Hultberg *et al.*, 1998; Moldan *et al.*, 1998) have shown that the effects on runoff

chemistry have been substantial. Despite these effects, the runoff is acidic with high concentration of aluminium and is projected to remain so for decades. This means that in such areas any reduction in liming intensity inevitably will result in more or less severe reacidification with ecosystems finally displaying only moderate improvement compared to the pre-liming situation. In low deposition areas, with lakes originally less damaged, the process of reacidification will, in contrast, be much prolonged and biological damage presumably would be insignificant or will include only the most sensitive organisms if they are present. If key species, or threatened (red listed) species are undamaged, temporary ecosystem perturbations caused by a reacidification principally could be acceptable. However, if fish populations are affected, effects may cascade through the food web and the result will be more pronounced also in these latter ecosystems.

Number of lakes at risk

The total extent, in terms of number of limed objects, of an intentional reacidification is not clear until final criteria for any selection procedure is applied. However, in a preliminary study (SNV, 1997) the amount of objects left outside the future national liming programme might well approach 25 %. If criteria become very strict, or alternatively, the selection procedure for other reasons becomes less accurate related to the risks for reacidification, this implicate that quite a number of lakes and streams would undergo severe reacidification. The majority of these ecosystems will be located in the southern parts of the country, where the acid loading in many cases will continue to surmount the critical load for decades in the future.

One way of looking at the risk would be to select all the limed objects and use the pre-intervention pH as a measure of a possible final status following the reacidification. During this procedure, the change in acid loading is accounted for by an approximate reduction of acidity by 50 % (roughly equal to an increase in pH of 0.3 units as final endpoint) and assuming that this is transferred to the surface waters without further negative or positive changes. This is certainly not fully true and more important, will not be realised for long periods in many situations. As a first hint on the extent of reacidification this will do as a more detailed knowledge of F-factors (cf. Henriksen, 1980; Bernes 1992) for all possible objects are not available making more sophisticated calculations impossible.

A total database comprising lake chemistry including pre-liming pH-values from the 1990 national lake survey was kindly provided by C. Bernes (cf. Bernes, 1992). Among the 4017 lakes, 618 were directly limed and another 136 influenced by liming of upstream lakes. The statistical selection of these lakes makes it possible to deduce the development for the complete population of limed lakes, approximately 7500 lakes. Hence, about 22 % would suffer from reacidification to levels below 5.4 (zero alkalinity) and in approximately 53 % of the limed lake population the resultant pH might become less than 6.0. This implies in the first case, 1700 lakes, most of which are located in the southern parts of the country, and in the latter case, in total almost 4000 lakes. A most notable fact of this preliminary calculation is that almost half the lake population would not reacidify to a significant degree, though presently the dependence of a time factor must be observed.

Naturally, the risk for extensive biotic damage to the ecosystem will be rather high as values below 5.4 definitively cause severe changes of many, if not all, fish populations. The inevitable result would be a species poor more or less "typical acid lake ecosystem", to some unknown degree resembling much of the development in our case studies. Even among the other more than 2000 lakes damages may follow in connection to a

reacidification, but only in more severe cases where important fish fauna is negatively influenced would changes (especially species losses) be significant. However, worth noting is the fact that even among the group of lakes that still will have $\text{pH} > 6.0$ there are some risks for damage to the most vulnerable species. If the concentration of inorganic labile aluminium is above threshold level (ca. $20 - 25 \mu\text{g L}^{-1}$) species like Atlantic salmon and some invertebrates (may include scarce and / or red listed species) are still endangered. As noted above, at most ca. 25 % of limed lakes may be at risk to suffer from reacidification. However, there exists methods to minimise damage: careful selection for least valuable objects, only temporarily postponing liming, and decreasing doses.

Conclusions

In this review we have tried to assess the risks that an intentional reacidification would result in relation to the experiences gathered during a few case studies. Inferring development of complex lake ecosystems with all the interactions between species based on this restricted knowledge is to drive generalisation too far, so the conclusions should rather be viewed as hypotheses. Nevertheless, we feel that we can conclude as follows:

- A general termination of liming will result in reacidification of about 1700 lakes to $\text{pH} < 5.4$ and a further 2300 lakes would reach a final pH between 5.4 and 6.0. Most of the lakes ending up with the lowest pH values are located in southern Sweden.
- The already achieved decreases of acid loading and further decreases in the future will improve the situation, though less in the more severely acid damaged lakes, and a significant recovery will in such systems generally be postponed for decades.
- The reacidification in its more severe form implies large losses of species diversity and the ecosystem structure will eventually approach the composition of the initially acidified lake, eventually becoming fishless.
- Due to the comparatively rapid change occurring in sensitive systems, resilience of these systems may be weakened whereby randomly occurring, temporary uncontrolled population expansion (like the *Mougeotia* bloom occurring in one experiment) may be seen in some lakes.
- The reacidification will generally increase the mobility of metals, and the deposits in sediments or in wetland soils would partially dissolve. In severe cases, the released metals may affect the biota of reacidified lakes and streams.
- One specific problem will be the fast increase of inorganic labile aluminium concentrations, thereby increasing the toxicity of the reacidified water. That will significantly contribute to the structural changes, as the important regulation by fish fauna is changed and eventually completely disappears.
- Another problem is that both chemical and biological changes during reacidification might enhance the accumulation of mercury in the biota, hence aggravating a presently serious environmental problem.

- If reacidification is allowed, there is a large risk for losses of species diversity on local or even regional scale and several red listed species may be negatively influenced.

If for administrative purposes, the future national liming programme is changed so that subsidies for some objects are withdrawn, there is a potential risk for reacidification in many cases. In order to minimise these risks, the selection procedure should be based on a set of criteria that includes not only documented biological and other values of the objects but also the risk for reacidification and biotic damage. Furthermore, there will be a number of lakes that fails to meet criteria and therefore left to reacidify. The opportunities to assess development among these objects by monitoring or experimental research should be noticed as there is generally a lack of data for different types of ecosystems.

Implementing reacidification research in some well-known lake or stream objects may at least contribute some future value to an otherwise hopelessly lost effort and expenditure of money. Large perturbations imposed on ecosystems by acidification, liming and reacidification may be inferred as whole-lake “experiments”. Such “experiments” could contribute significantly to our understanding of ecosystem stability and resilience for different sets of structural and functional factors, as well as enable detailed studies in ecosystems on intra- and interspecies interactions. Thus the opportunity to perform intensive ecosystem research on a multi-disciplinary basis related to these issues should be evaluated carefully.

LITTERATUR

- Abrahamsen, H. and Matzov, D. (1984). Use of lime slurry for deacidification of running water. *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, 22: 1981-1985
- Abrahamsson, I. (1993a). Impact of waterflows on acid-base chemistry in limed lakes. *Vatten*, 49: 24-33.
- Abrahamsson, I. (1993b). Utnyttjande av kalcium i kärrmarker med kalkstensmjöl 0-1 mm. Rapport för Naturvårdsverket.
- Abrahamsson, I. (1997). Vattenkemiska effekter vid återförsurning av åtta kalkade sjöar i norra Bohuslän. Pres. vid workshop om återförsurning, april 1997, Naturvårdsverket.
- Abrahamsson, I., Pettersson, L., Sandell, G. and Svanberg, A. (1992). Vattenkemiska resultat av våtmarkskalkning i Jönköpings län. Länsstyrelsen, Jönköping. Med.: 7/92.
- Ahlström, J., Degerman, E., Lindgren, G. and Lingdell, P.-E. (1994) Försurning av små vattendrag i Norrland. Naturvårdsverket Rapport 4343.
- Alenäs, I. (1986). Kalkningsprojektet Härskogen 1976-1986. – Vattenkemisk och biologisk respons på kalkningsåtgärder i sju västsvenska sjöar. IVL, L86/201.
- Alenäs, I., Degerman, E. and Henrikson, L. (1995). Liming strategies and effects: the River Högvadsån case study. – In: Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (1995). Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p. 363-374.
- Alenäs, I., Andersson, B.I., Hultberg, H. and A. Rosemarin. (1991). Liming and reacidification reactions of a forest lake ecosystem, Lake Lysevatten, in SW Sweden. *Water, Air, and Soil Pollution* 59, 55-77.
- Allen-Gil S.M., Ford J., Lasorsa B.K. Monetti M., Vlasova T., Landers D.H. (2001). Heavy metal contamination in the Taimyr Peninsula, Siberian Arctic. Manuscript submitted to Arctic.
- Almer, B., Dickson, W., Ekström, C. and Hörnström, E. (1978). Sulfur pollution and the aquatic ecosystem.- In: Nriagu, J.O. (ed.). *Sulfur in the Environment: II Ecological Impact*. John Wiley and Sons, New York. p.272-311.
- Almer, B., Dickson, W., Ekström, C., Hörnström, E. and Miller, U. (1974). Effects of acidification on Swedish lakes. *Ambio*, 3: 30-36.
- Almer, B. (1972). Försurningens inverkan på fiskbeståndet i västkustsjöar. *Inform. Inst. Freshw. Res., Drottningholm*. Nr. 5.
- Amann, M., Bertok, I., Cofala, J., Gyarfas, F., Heyes, C., Klimont, Z., Makowski, M., Schöpp, W. and Syri, S. (1998). Sixth interim report. Cost-effective control of acidification and ground-level ozone. Part B: Emission control scenarios. IIASA, Laxenburg, Austria.
- Andersson, B.I. (1985). Chemical composition of water across the sediment-water interface in the acidified Lake Gårdsjön, SW Sweden. – In: Andersson, F. and Olsson, B. eds. *Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment*. *Ecol. Bull. (Stockholm)* 37: 263-276.

- Andersson, B.I. (1998). On the ecosystem changes caused by liming of acidified small forest lakes. Fil. lic. Thesis. Animal Ecology, Dep. Zoology, University of Gothenburg. 75 pp.
- Andersson, B.I. and Hultberg, H. (1997). Lake Lysevatten - a study of liming and reacidification effects in a forest lake ecosystem in southwestern Sweden. IVL-report B 1250, 146 pp.
- Andersson, B.I., Alenäs, I. and Hultberg, H. (1984). Liming of a small acidified river (River Anråseån) in southwestern Sweden, promoting successful reproduction of Sea trout (*Salmo trutta* L.). Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm, 61: 16-27.
- Andersson, B.I. Hasselrot, B. and Hultberg, H. (1982). Vattenkemiska effekter av olika sätt att applicera neutralisationsmedel i ett försurat område på västkusten. IVL-rapport. EM/0799.
- Andersson, B.I., Grahn, O., Hultberg, H. and Landner, L. (1975). Jämförande undersökning av olika tekniker för återställande av försurade sjöar. – Studier av försurningseffekter samt kalkningsmetodik och biologiska effekter av kalkning i några västsvenska sjöar. STU-rapport 73-3651. 48+65 pp.
- Andersson, F. and Olsson, B. eds. (1985) Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment. Ecological Bulletins (Stockholm) 37.
- Andersson, F. and Persson, T. eds. (1988). Liming as a measure to improve soil and tree conditions in areas affected by air pollution. SNV, Rapport 3518.
- Andersson, G. (1985). Decomposition of alder leaves in acid lake waters. - In: Andersson, F. and Olsson, B. (eds.) Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment. Ecol. Bull. (Stockholm), 37: 293-299.
- Andersson G, and Gahnström G. (1985). Effects of pH on release and sorption of dissolved substances in sediment-water microcosms. Ecol. Bull. (Stockholm), 37: 301-318
- Andersson, P. and Borg, H. (1988). Effects of liming on the distribution of cadmium in water, sediments and organisms in a Swedish lake. Can. J. Fish. Aquat. Sci., 45: 1154-1162.
- Andersson, P. and Holm, K. (1995). Cadmium in water and perch (*Perca fluviatilis*) liver in limed L. Stensjön in Tyresta national park, Sweden. Water, Air and Soil Pollution, 85: 805-810.
- Andersson, P. and Kärrhage, P. (1984). Effekter av kalkning på kvicksilverhalten i fisk från Åvaåns vattensystem. Naturvårdsverket, Rapport 1771.
- Andersson, P. and Nyberg, P. (1984). Experiments with Brown trout (*Salmo trutta* L.) during spring in mountain streams at low pH and elevated levels of iron, manganese and aluminium. Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm, 61: 34-47.
- Andersson, P., Borg, H. and Kärrhage, P. (1991). Kalkningseffekter på kvicksilver i fisk - Läget efter genomförda åtgärder i 19 typsöar. Projekt Kalkning - Kviksilver - Cesium. Naturvårdsverket, Rapport 3883.
- Andersson, P., Borg, H. and Kärrhage, P. (1995). Mercury in fish muscle in acidified and limed lakes. Water, Air and Soil Pollution, 80: 889-892.
- Andersson, P., Grahn, P., Hörnström, E., Nyberg P. and Dahlquist, K. (1989). Kalkning och gödning i Rammsjön och Ämten, Örebro län - Ett försök att minska kvicksilverhalten i fisk. Naturvårdsverket, Rapport 3584.

- Appelberg, M. (1987). Some factors regulating the crayfish *Astacus astacus* L. in acid and neutralized waters. – In: Witters, H. and Vanderborght, O. (eds.) Ecophysiology of acid stress in aquatic organisms. Ann. R. Zool. Belg., 117 suppl. 1. P 167-179.
- Appelberg, M. (1995). The impact of liming on aquatic communities. - In: Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (1995). Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p. 283-308.
- Appelberg, M. and Aldén, U. (1992). Integrerad uppföljning av kalkningens effekter på sjöar och vattendrag – en treårsrapport. Inform. Inst. Freshw. Res. Drottningholm, nr 4:1992. p.1-60.
- Appelberg, M. and Degerman, E. (1991). Development and stability of fish assemblages after lime treatment. Can J. Fish. Aquat. Sci., 48: 546-554
- Appelberg, M., Ekström, C. and Hörnström, E. (1990). Stora Härsjön – ett exempel på integrerad uppföljning av kalkningens effekter. Inform. Inst. Freshw. Res., Drottningholm. Nr 4:1990.
- Appelberg, M., Lingdell, P.-E. and Andrén, C. (1995). Integrated studies of the effects of liming acidified waters (ISELAW-programme). Water, Air and Soil Pollution, 85: 883-888.
- Appelberg, M., Henrikson, B.-I., Henrikson, L. and Svedäng, M. (1993). Biotic interactions within the littoral community of Swedish forest lakes during acidification. Ambio, 22: 290-297.
- Arafat N, Nriagu J.O. (1986). Simulated mobilization of metals from sediments in response to lake acidification. Water, Air, and Soil Pollution, 31:991-998
- Aronsson, J.-A. (1990). Våtmarkskalkning. Förändringar på miljö och vegetation. SNV, Rapport 3827.
- Avergård, I. (1971). pH-förhållandena i västsvenska sjöar 1970-71. Länsstyrelserna i O, N, P, F, G län, Fiskeristyrelsen och Naturvårdsverket. 88 pp.
- Baalsrud, K., ed. (1985). Kalking mot surt vann. Kalkingsprosjektet, slutrapport 1985. Miljöverndepartementet. Direktoratet for Vilt og Ferskvannsfisk, Trondheim. 145 pp.
- Baker, J.P., Schofield, C.L. (1980). Aluminium toxicity to fish as related to acid precipitation and Adirondack surface water quality. – In: Drablös D., and Tollan A. (eds.) Ecological Impact of Acid Precipitation. SNSF-project, Oslo-Ås, Norway. p 292-293.
- Baker, J.P. and Schofield, C.L. (1982) Aluminum toxicity to fish in acidic waters. Water, Air, and Soil Pollution, 18: 289-309.
- Barlaup, B.T., Åtland, Å. and Kleiven, E. (1994). Stocking of brown trout (*Salmo trutta* L.) cohorts after liming – Effects on survival and growth during five years of reacidification. Water, Air, and Soil Pollution, 72: 317-330.
- Barlaup, B.T., Hindar, A., Kleiven, E. and Høgberget, R. (1998) Incomplete mixing of limed water and acidic runoff restricts recruitment of lake spawning brown trout in Hovvatn, southern Norway. Environ. Biol. Fish., 53, 47-63.
- Barlaup, B.T., Åtland, Å., Raddum, G.G. and Kleiven, E. (1989). Improved growth in stunted brown trout (*Salmo trutta* L.) after reliming of Lake Hovvatn, southern Norway. Water, Air, and Soil Pollution, 47: 139-151.

- Battarbee, R.W., Mason, Sir J., Renberg, I. and Talling, J.F. (1990). Paleolimnology and Lake Acidification. Proc. of a Royal Society discussion meeting held on 25 August 1989. London, The Royal Society, ISBN 0-85403-394-7. 219 pp.
- Bengtsson, B., Dickson, W. and Nyberg, P. (1980). Liming acid lakes in Sweden. *Ambio*, 9: 34-36.
- Berdén, M., Nilsson, S.I., Rosén, K. and Tyler, G. (1987). Soil acidification - Extent, causes and consequences. An evaluation of literature information and current research. National Swedish Environmental Protection Board, Report 3292.
- Bergkvist, B. (1986). Metal fluxes in spruce and beech forest ecosystems of South Sweden. Thesis, University of Lund.
- Bergquist, B.C. (1995). Supplementary measures to aquatic liming. – In: Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (eds). Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p 399-422.
- Bergquist, B.C., Engblom, E. and Lingdell, P.-E. (1992). Förekomst och kolonisation av bottenfauna i kalkade vatten. *Inform. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, nr 4:1992, p79-108.
- Bergman, H.L. and Mattice, J.S. (1990). Lake acidification and fisheries project: Brook trout (*Salvelinus fontinalis*) early life stages. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 47: 1578-1579.
- Bernes, C. (1986). Monitor 1986. Sura och försurade vatten. Naturvårdsverket informerar. 180 pp. ISBN 91-620-1013-1.
- Bernes, C. (1987). Tungmetaller, förekomst och omsättning i naturen. Monitor 1987, Swedish Environmental Protection Agency, 1987, 182 pp.
- Bernes, C. (1991). Acidification and liming of Swedish freshwaters. Monitor 12. Swedish Environmental Protection Agency, 1991. 144 pp.
- Bishop, K.H., and Pettersson C. 1996. Organic carbon in the boreal spring flood from adjacent subcatchments. *Environmental International*, 22: 535-540
- Bishop, K., Rapp, L., Köhler, S. and Korsman, T. (1998). Distinguishing natural acidity from acidification in Northern Sweden: Testing the Steady-State Water Chemistry Method with paleolimnological data. Manuscript, 16 pp.
- Björnberg, B. (1983). Dilution and acidification effects during the spring flood of four Swedish mountain brooks. *Hydrobiologia*, 101: 19-26.
- Björklund, I. (1986). Metaller i gädda från svenska skogssjöar. Naturvårdsverket, rapport 3224.
- Björklund, I, Borg, H. and Johansson, K (1984). Mercury in Swedish lakes – regional distribution and causes. *Ambio*, 13: 118-121.
- Blomqvist, P., Bell, R.T., Olofsson, H., Stensdotter, U. and Vrede, K. (1993). Pelagic ecosystem responses to nutrient additions in acidified and limed lakes in Sweden. *Ambio*, 22: 283-289
- Borg, H. (1983) Trace metals in Swedish natural fresh waters. *Hydrobiologia*, 101: 27-34.
- Borg, H. (1986). Metal speciation in acidified mountain streams in central Sweden. *Water, Air, and Soil Pollution*, 30: 1007-1014.

- Borg, H. (1987). Trace metals and water chemistry of forest lakes in northern Sweden. *Water Res.*, 21: 65-72.
- Borg, H. and Andersson P. (1984). Fractionation of trace metals in acidified freshwaters by in situ dialysis. *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, 22: 725-729.
- Borg, H. and Johansson, K. (1989). Metal fluxes to Swedish forest lakes. *Water, Air, and Soil Pollution*, 47: 427-440.
- Borg, H., Andersson, P and Johansson K. (1989). Influence of acidification on metal fluxes in Swedish forest lakes. *Sci. Total Environ.*, 87/88: 241-253.
- Borg, H., Ek, J., and Holm, K. (2001). Influence of Acidification and Limning on the Distribution of Trace Elements in Surface Waters. *Water, Air and Soil Pollution*, 130: 1757-1762.
- Borg, H., Andersson, P., Nyberg, P. and Olofsson, E., (1995). Influence of wetland liming on water chemistry of acidified mountain streams in Lofsdalen, central Sweden. *Water, Air, and Soil Pollution*, 85: 907-912.
- Borgström, R. and Hendrey, G.R. (1976). pH tolerance of the first larval stages of *Lepidurus arcticus* (Pallas) and adult *Gammarus lacustris* G.O. Sars. SNSF-projekt, IR22/76. 37 pp.
- Bragg, O. and Clymo, R.S. (1995). Wetland vegetation and erosion in the limed moorland Altivhat subcatchment at Loch Fleet. *Chemistry and Ecology*, 9:
- Brandrud, T. E. and Roelofs, J.G.M. (1995). Enhanced growth of the macrophyte *Juncus bulbosus* in S Norwegian limed lakes. A regional survey. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 913-918.
- Brinck, P., Nilsson, L.M. and Svedin, U. (1988) Ecosystem redevelopment. *Ambio*, 17: 84-89.
- Broberg, O. (1987). Nutrient responses to the liming of Lake Gårdsjön. *Hydrobiologia*, 150: 11-24.
- Broberg, O. (1988). Delayed nutrient responses to the liming of Lake Gårdsjön, Sweden. *Ambio*, 17: 22-27.
- Brocksen, R.W. (1991). The Living Lakes programme: five years of Liming. – In: Olem, H., Schreiber, R.K., Brocksen, R.W. and Porcella, D.B. (eds.) *International lake and watershed liming practices*. Terrene Inst., Washington, D.C. p. 15-23.
- Brodin, Y.-W. (1995). Acidification of lakes and watercourses in a global perspective. – In: Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (eds.). *Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p. 45-62.
- Brown, D.J.A. (1983). Effect of calcium and aluminium concentrations on the survival of Brown trout (*Salmo trutta*) at low pH. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 30: 582-587.
- Brown, D.J.A., Howells, G.D., Dalziel, T.R.K. and Stewart, B.R., (1988). Loch Fleet - a research watershed liming project. *Water, Air, and Soil Pollution*, 41: 25-41.
- Bukaveckas, P.A. (1988)
Effects of Lake Liming on Phytoplankton Production in Acidic Adirondack lakes
Water, Air, and Soil Pollution, 41: 223-240.

- Bukaveckas, P.A. (1989). Effects of calcite treatment on primary producers in acidified Adirondack lakes. II Short-term response by phytoplankton communities. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 46: 352-359.
- Bukaveckas, P.A. and Driscoll, C.T. (1991a). Effects of whole-lake base addition on the optical properties of three clearwater acidic lakes. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 48: 1030-1040.
- Bukaveckas, P.A. and Driscoll, C.T. (1991b). Effects of whole-lake base addition on thermal stratification in three acidic Adirondack lakes. *Water, Air and Soil Pollution*, 59: 23-39.
- Carpenter, S.R. and Kitchell, J.F. (1993) *The trophic cascade in lakes*. Cambridge University Press. Cambridge, England.
- Campbell, P.C.G. and Stokes, P.M. (1985) Acidification and Toxicity of Metals to Aquatic Biota. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 42: 2034-2049.
- Cirno, C.P. and Driscoll, C.T. (1996). The impacts of a watershed CaCO₃ treatment on a stream and wetland biogeochemistry in the Adirondack Mountains. *Biogeochemistry*, 32: 265-297.
- Clymo, R.S., Foster, G.N., McKay, J., Robertson, J., Shore, R. and Skidmore, D.I. (1992). Terrestrial biology in limed catchments. – In: Howells, G. and Dalziel, T.R.K. (eds.). *Restoring acid waters: Loch Fleet 1984-1990*. Elsevier Appl. Sci., London. p 331-361.
- Cowling, E.B. (1982). Acid precipitation in historical perspective. *Environ. Sci. Technol.*, 16: 110A-123A.
- Cowling, E. and Nilsson, J. (1995). Acidification research: lessons from history and visions of environmental futures. *Water, Air, and Soil Pollution*, 85: 279-292.
- Dahl, K. (1921). Undersøkelse over ørretens utdøen i det sydvestligste Norges fjeldvande. *Norsk Jæger- og Fiskefor. Tidsskrift*, 49: 249-247.
- Dahl, K. (1923). Massedød blandt ørret ved forgiftning med avløpsvann fra myrer. *Norsk Jæger- og Fiskefor. Tidsskrift*, 51: 1-5.
- Dahl, K. (1927). The effects of acid water on trout fry. *Salmon and Trout Magazine*, 46: 35-43.
- Dalziel, T.R.K., Wilson, E.J. and Proctor, M.V. (1994). The effectiveness of catchment liming in restoring acid waters at Loch Fleet, Galloway, Scotland. *Forest Ecol. Managem.*, 68: 107-117.
- Dannevig, A. (1959). Nedbørens innflytelse på vassdragenes surhet og på fiskebestanden. *Jeger og fisker*, 3: 116-118.
- Degerman, E. and Nyberg, P. (1989). Effekter av sjökalkning på fiskbestand i sjöar. *Inform. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, nr 5:1989.
- Degerman, E., Fogelgren, J.E., Tengelin, B. and Thörnelöf, E. (1986). Occurrence of salmonid parr and eel in relation to water quality on the west coast of Sweden. *Water, Air, and Soil Pollution*, 30: 665-671.
- Degerman, E., Henrikson, L., Herrmann, J. and Nyberg, P. (1995). The effects of liming on aquatic fauna. – In; Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (eds.). *Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p 221-282.

- Degerman, E., Engblom, E., Lingdell, P.-E., Melin, E. and Olofsson, E. (1992). Försurning i fjällen. Inform. Inst. Freshw. Res. Drottningholm, nr 1 1992.
- DePinto, J.V., Scheffe, R.D., Booty, W.G. and Young, T.C., (1989). Predicting reacidification of calcite treated acid lakes. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 46: 323-332.
- Dickson, W. (1980). Properties of acidified waters. – In: Drablös D., and Tollan A. (eds.) *Ecological Impact of Acid Precipitation*. SNSF-project, Oslo-Ås, Norway. p 75-83.
- Dickson, W. (1983). Liming toxicity of aluminium to fish. *Vatten*, 39: 400-404.
- Dickson, W. (ed.) (1988). *Liming of Lake Gårdsjön – An acidified lake in SW Sweden*. The National Swedish Environmental Protection Agency, Report 3426, Solna, Sweden. 327 pp.
- Dickson, W. and Brodin, Y.-W. (1995). Strategies and methods for freshwater liming. – In: Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (eds.). *Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p. 81-124.
- Dickson, W., Hörnström, E., Ekström C. and Almer, B. (1975). Rödingsjöar söder om Dalälven. Inform. Inst. Freshw. Res., Drottningholm, nr 7:1975.
- Dickson, W., Borg, H., Ekström, C., Hörnström, E. and Grönlund, T. (1995). Reliming and reacidification effects on lakewater. Chemistry, plankton and macrophytes. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 919-924.
- Dise, N.B., Ahlf, W., Brahmmer, G., Cosby, B.J., Fott, J., Hauhs, M., Jüttner, I., Kreutzer, K., Raddum, G.G. and Wright, R.F. (1994). Group Report: Are chemical and biological changes reversible? – In: Steinberg, C.E.W. and Wright, R.F. (eds.). *Acidification of freshwater ecosystems. Implications for the future*. John Wiley and Sons. Chichester, New York, Brisbane, Toronto, Singapore. ISBN 0-471-94206-5. p. 375-391.
- Dillon, P.J., Yan, N.D., Scheider, W.A. and Conroy, N. (1979). Acidic lakes in Ontario, Canada: characterization ,extent and responses to base and nutrient additions. *Arch. Hydrobiol. Beih. Ergebn. Limnol.*, 13: 317-336.
- Driscoll, C.T., Ayling, W.A., Fordham, G.F. and Oliver, L.M. (1989a). Chemical response of lakes treated with CaCO₃ to reacidification. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 46: 258-267.
- Driscoll, C.T., Baker, J.P., Bisogni jr., J.J. and Schofield, C.L. (1980). Effect of aluminium speciation on fish in dilute acidified water. *Nature*, 284: 161-164.
- Driscoll, C.T., Fordham, G.F., Ayling, W.A. and Oliver, L.M. (1989b). Short-term changes in the chemistry of trace metals following calcium carbonate treatment of acidic lakes. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 46: 249-257.
- Driscoll, C.T., Cirimo, C.P., Fahey, T.J., Blette, V.L., Bukaveckas, P.A., Burns, D.A., Gubala, C.P., Leopold, D.J., Newton, R.M., Raynal, D.J., Schofield, C.L., Yavitt, J.B. and Porcella,, D.B. (1996). The Experimental Watershed Liming Study: Comparison of lake and watershed neutralization strategies. *Biogeochemistry*, 32: 143-174.
- Edberg, F., Andersson, P., Borg, H., Ekström, C. and Hörnström, E. (2001). Reacidification effects on water chemistry and plankton in a limed lake in Sweden. *Water, Air and Soil Pollut.*, 130:1763-1768.

- Engblom, E. and Lingdell, P.-E. (1984). The mapping of short-term acidification with the help of biological pH indicators. Rep. Inst. Freshw. Res., Drottningholm, 61: 60-68.
- Engblom, E. and Lingdell, P.-E. (1985). Hur påverkar kalkdoserare bottenfaunan? SNV PM 1994.
- Ek, A., Grahn, O., Hultberg, H. and Renberg, I. (1995). Recovery from acidification in Lake Örvattnet, Sweden. Water, Air and Soil Pollut. 85: 1795-1800.
- Eriksson, A. (1998) Are the effects of acidification postponed and aggravated by lake liming? – A laboratory study on a re-acidification of the limed Lake Gårdsjön, SW Sweden. Examensarbete vid Institutionen för Geovetenskaper, avd för naturgeografi, Geovetarcentrum, Göteborgs Universitet. B170, 1998.
- Eriksson, F. (1988). Makrofytvegetationen i kalkade sjöar. Inform. Inst. Freshw. Res. Drottningholm, nr 9:1988.
- Eriksson, F., Hörnström, E., Mossberg, P. and Nyberg, P. (1983). Ecological effects of lime treatment of acidified lakes and rivers in Sweden. Hydrobiologia, 101: 145-164.
- Eriksson, M.O.G. (1991). Försurningspåverkan på fågel- och däggdjursbestånd. SNV PM 3969.
- Eriksson, M.O.G., Henrikson, L., Larsson, P.K., Nilsson, B.-I., Nyman, H.G., Oscarson, H.G. and Stenson, J.A.E. (1980). Predator-prey relations, important for the biotic changes in acidified lakes. Ambio, 9: 248-249
- Evans, R.A. (1989). Response of limnetic insect populations of two acidic, fishless lakes to liming and brook trout (*Salvelinus fontinalis*). Can. J. Fish. Aquat. Sci., 46: 342-351.
- Exley, C., Chapell, J.S. and Birchall, J.D. (1991). A mechanism for acute aluminum toxicity in fish. J. Theoret. Biol., 151: 417-428.
- Farmer, A.W. (1990). The effects of lake acidification on aquatic macrophytes – A review. Environ. Pollut., 65: 219-240.
- Ferm, M. and Hultberg, H. (1998). Atmospheric deposition to the Gårdsjön Research area. – In: Hultberg, H. and Skeffington, R.A. (eds.) Experimental Reversal of Acid Rain Effects: The Gårdsjön Roof Project. Baffins Lane /Chichester PO19 1UD, West Sussex/England: John Wiley and Sons Ltd, 1998. p.71-84.
- Fimreite, N., Nenseter, B., Stehen, B. (1996). Liming, reacidification and the mobilization of cadmium from sediments. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 57: 888-894
- Ford, J., Landers, D., Kugler, D., Lasorsa, B., Allen-Gil, S., Crecelius, E., Martinson, J. (1995). Inorganic contaminants in Arctic Alaskan ecosystems: long-range atmospheric transport or local point sources? Sci. Total Environ. 160/161: 323-335.
- Fiskeristyrelsen and SNV. (1981). Kalkning av sjöar och vattendrag 1977 - 1981. Inf. Inst. Freshw. Res., Drottningholm. nr. 4:1981.
- Fleischer, S. ed. (1993). Acidification of Surface Waters in Sweden - Effects and Counteracting Measures. Ambio, 22: 258-337.
- Forsius, M., Kämäri, J., Kortelainen, P., Mannio, J., Verta, M. and Kinnunen, K. (1990). Statistical lake survey in Finland: Regional estimates of lake acidification. – In: Kauppi, P., Anttila, P. and Kentämies, K. (eds.) Acidification in Finland. Springer-Verlag, Heidelberg. P. 759-780.

- Gambrell RP, Wiesepeape JB, Patrick Jr WH, Duff MC. (1991). The effects of pH, redox and salinity on metal release from a contaminated sediment. *Water, Air, and Soil Pollution*, 57/58: 359-367
- Gloss, S.P., Schofield, C.L., Spateholts, R.L. and Plonski, B.A. (1989). Survival, growth, reproduction, and diet of brook trout (*Salvelinus fontinalis*) stocked into lakes after liming to mitigate acidity. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 46: 277-286.
- Gobran, G. R. and Clegg, S. (1992). Relationship between TOC and SO_4^{2-} in soil and waters. *Science Total Environment* 117/118: 449-461.
- Grahn, O. (1977). Macrophyte succession in Swedish lakes caused by deposition of airborne substances. *Water, Air, and Soil Pollution*, 7: 295-306.
- Grahn, O. (1980). Fishkills in two moderately acid lakes due to high aluminum concentration. – In: Drablös, D. and Tollan, A. (eds.) *Ecological impact of acid precipitation*. SNSF-project, Oslo-Ås. p. 310-311.
- Grahn, O. (1985). Macrophyte biomass and production in Lake Gårdsjön – an acidified clearwater lake in SW Sweden. – In: Andersson, F. and Olsson, B. eds. *Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment*. *Ecol. Bull. (Stockholm)*, 37: 203-213.
- Grahn, O. (1986). Vegetation structure and primary production in acidified lakes in southwestern Sweden. *Experientia*, 42: 465-470.
- Grahn, O. and Sangfors, O. (1988). A Comparative Study of Macrophytes in Lake Gårdsjön, during Acid and Limed Conditions. – In: *Liming of Lake Gårdsjön – An acidified lake in SW Sweden*. Dickson, W. (ed.) The National Swedish Environmental Protection Agency, Report 3426. Solna Sweden. p. 281-309.
- Grahn, O., Hultberg, H. and Landner, L. (1974). Oligotrophication – a self-accelerating process in lakes subjected to excessive supply of acid substances. *Ambio*, 3: 93-94.
- Granéli, E. and Haraldsson, C. (1993). Can increased leaching of trace metals from acidified areas influence phytoplankton growth in coastal waters? *Ambio*, 22: 308-311.
- Grönlund, T. (1987). Igenväxningsproblem med hårslinga – en kalkningseffekt? *Fiskevård*, 3: 28-29.
- Gubala, C.P., Driscoll, C.T., Newton, R.M. and Schofield, C.L. (1991). Chemistry of a near-shore lake region during spring snowmelt. *Environ, Sci. Technol.*, 25: 2024-2030.
- Gunn, J.M., Hamilton, J.G., Booth, G.M., Wren, C.D., Beggs, G.L., Rietveld, H.J. and Munro, J.R. (1990). Survival, growth, and reproduction of lake trout (*Salvelinus namaycush*) and yellow perch (*Perca flavescens*) after neutralization of an acidic lake near Sudbury, Ontario. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 47: 446-453.
- Hagen, A. and Langeland, A. (1973). Polluted snow in southern Norway and the effect of meltwater on freshwater aquatic organisms. *Environ. Poll.*, 5: 45-57.
- Hall, R.J. (1990). Relative importance of seasonal, short-term pH disturbances during discharge variation on a stream ecosystem. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 47: 2261-2274.
- Hallgren Larsson, E., Knulst, J.C., Lövblad, G., Malm, G., Sjöberg, K. och Westling, O. (1997). *Luftföroreningar i södra Sverige 1985 - 1995*. IVL-Rapport, B 1257. 142 pp + Appendix

- Hare, L. and Tessier, A. (1998). The aquatic insect *Chaoborus* as a biomonitor for trace metals in lakes. *Limnol. Oceanogr.*, 43, 1850-1859.
- Hargeby, A. (1990). Effects of pH, humic substances and animal interactions on survival of *Asellus aquaticus* (L.) and *Gammarus pulex* (L.). *Oecologia* (Berlin), 82: 348-354.
- Harriman, R., Anderson, H. and Miller, J.D. (1995). The role of sea-salts in enhancing and mitigating surface water acidity. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 553-558.
- Hasselrot, B. (1985). Abborryngel som mätare av kvicksilverbelastning. IVL B-publ. 795
- Hasselrot, B. and Hultberg, H. (1984). Liming of acidified Swedish lakes and streams and its consequences for aquatic ecosystems. *Fisheries*, 9: 4-9.
- Hasselrot, B., Andersson, I. and Hultberg, H. (1984). Ecosystem shifts and reintroduction of Arctic char (*Salvelinus salvelinus* L.) after liming of a strongly acidified lake in southwestern Sweden. *Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, 61: 78-92.
- Hasselrot, B., Andersson, I.B., Alenäs, I. and Hultberg, H. (1987). Response of limed lakes to episodic acid events in southwestern Sweden. *Water, Air, and Soil Pollution*. 32: 341-362.
- Havas, M. (1985). Aluminium bioaccumulation and toxicity to *Daphnia magna* in soft water at low pH. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 42 :1741-1748.
- Havas, M. and Rosseland, B.O. (1995). Response of zooplankton, benthos, and fish to acidification: an overview. *Water, Air, and Soil Pollution*, 85: 51-62.
- Havens, K. E. (1993). Pelagic food web structure in Adirondack Mountain, U.S.A. lakes of varying acidity. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 50: 149-155.
- Havens, K. E. (1994). Experimental perturbation of a fresh water plankton community: a test of hypotheses regarding the effect of stress. *Oikos*, 69: 147-153.
- Havens, K.E. and Heath, R.T. 1990. Phytoplankton succession during acidification with and without increasing Aluminium levels. *Environ. Pollut.*, 68: 129-145.
- Havens, K.E. and Carlson, R.E. (1998). Functional complementarity in plankton communities along a gradient of acid stress. *Environm. Pollution*, 101: 427-436.
- Heath, R.H., Kahl, J.S. and Norton, S.A. (1992). Episodic stream acidification caused by atmospheric deposition of sea salts at Acadia National Park, Maine, United States. *Water Resour. Res.*, 28: 1081-1088.
- Heitto, L. (1990). A macrophyte survey in Finnish forest lakes sensitive to acidification. *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, 24: 667.670.
- Hendrey, G.R. and Vertucci, F.A. (1980). Benthic plant communities in acidic Lake Colden, New York: Sphagnum and the algal mat. – In: Drablös, D. and Tollan, A. (eds.). *Ecological impact of acid precipitation*. SNSF-project, Oslo-Ås. p. 314-315.
- Henriksen, A. (1980). Acidification of freshwater - a largescale titration. – In: Drablös, D. and Tollan, A. (eds.). *Ecological impacts of acid precipitation*. SNSF-project, Oslo-Ås. p. 68-74.
- Henriksen, A. and Brakke, D.F. (1988). Increasing contributions of nitrogen to the acidity of surface waters in Norway. *Water, Air, and Soil Pollution*, 42: 183-201.
- Henriksen, A., Hindar, A., Hessen, D.O. and Kaste, Ø. (1997). Contribution of nitrogen to acidity in the Bjerkreim River in southwestern Norway. *Ambio*, 26: 304-311.

- Henriksen, A., Lien, L., Traaen, T., Sevaldrud, I.S. and Brakke, D.F. (1988). Lake acidification in Norway - Present and predicted status. *Ambio* 17: 259-266.
- Henrikson, B.-I. (1988). The absence of antipredator behaviour in the larvæ *Leucorrhinia dubia* (Odonata) and the consequences for their distribution.
- Henriksson, B.-I. (1993). Sphagnum mosses as a microhabitat for invertebrates in acidified lakes, with special reference to the dragonfly *Leucorrhinia dubia* (Odonata, Anisoptera). *Ecography*, 16: 143-153.
- Henrikson, L. (1988). Effects on Water Quality and Benthos of Acid Water Inflow into the Limed Lake Gårdsjön. – In: Liming of Lake Gårdsjön – An acidified lake in SW Sweden. Dickson, W. (ed.) The National Swedish Environmental Protection Agency. Report 3426. Solna, Sweden. p. 281-309.
- Henrikson, L. (1996). Acidification and liming of freshwater ecosystems – Examples of biotic responses and mechanisms. Dissertation. Animal Ecology, Dep. Zoology, University of Gothenburg. ISBN 91-628-1993-3. 73 pp.
- Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (1995). Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. 458 pp.
- Henrikson, L. and Oscarson, H.G. (1981). Corixids (Hemiptera-Heteroptera) the new top predators in acidified lakes. *Verh. Int. Verein. Limnol.*, 21: 1616-1620.
- Henrikson, L. and Oscarson, H.G. (1984). Lime influence on macro-invertebrate zooplankton predators. *Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, 61: 93-103
- Henrikson, L. and Oscarson, H.G. (1985). History of the acidified Lake Gårdsjön: The development of chironomids. – In: Andersson, F and Olsson, B. (eds.) *Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment*. *Ecol. Bull. (Stockholm)*, 37: 64-73.
- Henrikson, L., Hindar, A. and Thörnclöf, E. (1995). Freshwater liming. *Water, Air, and Soil Pollution*, 85: 131-142.
- Henrikson, L., Oscarson, H.G. and Stenson, J.A.E. (1984). Development of the crustacean zooplankton community after lime treatment of the fishless Lake Gårdsjön, Sweden. *Rep. Inst. Freshw. Res., Drottningholm*, 61: 104-114.
- Herrmann, J. (1990). Physiological, foodchain and ecological effects among benthic invertebrates exposed to low pH and associated metal concentrations. – In: Mason B.J.(ed.). *SWAP The Surface Water Acidification Programme*. Cambridge University Press, U.K., 1990. p 383-396.
- Herrmann, J. and Svensson, B.S. (1995). Resilience of macroinvertebrate communities in acidified and limed streams. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 413-418.
- Herrmann, J., Degerman, E., Gerhardt, A., Johansson, C., Lingdell, P.-E. and Muniz, I.P. (1993). Acid-stress effects on stream biology. *Ambio*, 22: 298-307.
- Hindar, A. (1987). Long-term dissolution of sedimented limestone powder in running water. Consequences for liming strategy and interpretation of liming efficiency data. *Vatten*, 43: 54-58.
- Hindar, A. (1997). Liming of acidified surface waters – strategies and effects. Dissertation. University of Oslo. 185 pp.
- Hindar, A., and Henriksen, A., (1992). Acidification trends, liming strategy and effects of liming for Vikedalselva, a Norwegian salmon river. *Vatten*, 48: 54-58.

- Hindar, A. and Lydersen, E. (1994). Extreme acidification of a lake in Southern Norway caused by weathering of sulphide-containing bedrock. *Water, Air and Soil Pollution*, 77: 17-25.
- Hindar, A. and Lydersen, E. (1997). Er sedimentert aluminium etter vassdragskalking et miljøproblem? Paper presented at a workshop on Reacidification. April, 9-10, 1997. 4 pp.
- Hindar, A., Henriksen, A., Kaste, Ø. Tørseth, K. (1995). Extreme acidification in small catchments in southwestern Norway associated with a sea salt episode. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 547-552.
- Hindar, A., Henriksen, A., Tørseth, K and Semb, A. (1994). Acid water and fish death. *Nature*, 372: 327-328.
- Hindar, A., Kroglund, F., Lydersen, E., Skiple, A. and Høgberget, R. (1996). Liming wetlands in the acidified lake Røynealandsvatn catchment in southern Norway: effects on stream water chemistry. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 53: 985-993.
- Howarth, R.W., Stewart, J.W.B. and Ivanov, M.V. eds. (1992). Sulphur cycling on the continents: wetlands, terrestrial ecosystems and associated water bodies. SCOPE 48. John Wiley and Sons. Chichester, New York, Brisbane, Toronto, Singapore. ISBN 0-471-91404-5. 450 pp.
- Howells, G. and Dalziel, T.R.K. eds. (1992). Restoring acid waters: Loch Fleet 1984 - 1990. Elsevier Appl. Sci., London.
- Howells, G., Dalziel, T.R.K. and Turnpenny, A. (1992). Loch Fleet: liming to restore a brown trout fishery. *Environm. Pollut.*, 78: 131-139.
- Hultberg, H. (1977). Thermally stratified acid water in late winter - a key factor inducing self-accelerating processes which increase acidification. *Water, Air, and Soil Pollution*, 7: 279-294.
- Hultberg, H. (1985a). Changes in fish populations and water chemistry in Lake Gårdsjön and neighbouring lakes during the last century. – In: Andersson, F. and Olsson, B. (eds.) *Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment*. *Ecol. Bull.* (Stockholm), 37: 64-72.
- Hultberg, H. (1985b). Budgets of base cations, chloride, nitrogen and sulphur in the acid Lake Gårdsjön catchment SW Sweden. – In: Andersson, F. and Olsson, B. (eds.) *Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment*. *Ecol. Bull.* (Stockholm), 37: 133-158.
- Hultberg, H. (1994). Effekter av markkalking i Gårdsjöns avrinningsområde. Delprosjekt: Kemi och Hydrologi. Mimeographed. Slutrapport till SNV (in Swedish). 57 pp + Appendices.
- Hultberg, H. and Andersson, B.I. (1982). Liming of acidified lakes: Induced long-term changes. *Water, Air, and Soil Pollution*. 18: 311-331.
- Hultberg, H. and Grahn, O. (1975). Effects of acid precipitation on macrophytes in oligotrophic Swedish lakes. *J. Great Lake Res.*, 2: suppl. I: 208-217.
- Hultberg, H. and Munthe, J. (2001). High methyl mercury concentrations in runoff from forested catchments at Gårdsjön, Sweden – Causes and implications. Paper presented at the Xth International Conference on Mercury as a Global Pollutant. -

- Promoting local solutions for a global problem: Learning from the past to celebrate the future. Minamatsa, Japan, Oct. 15-19 2001.
- Hultberg, H. and Nyström, U. (1988). The Role of Hydrology in Treatment Duration and Reacidification in the Limed Lake Gårdsjön. – In: Liming of Lake Gårdsjön – An acidified lake in SW Sweden. Dickson, W. (ed.) The National Swedish Environmental Protection Agency, Report 3426. Solna, Sweden. p. 95-134.
- Hultberg, H and Stenson, J.A.E. (1970). Försurningens effekter på fiskfaunan i två bohusslänska småsjöar. *Fauna och Flora*, 65: 11-19.
- Hultberg, H., Nilsson, S.I. and Nyström, U. (1995). Effects on soils and leaching after application of dolomite to an acidified forested catchment in the Lake Gårdsjön watershed, south-west Sweden. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 1033-1038.
- Hultberg, H., F. Moldan, B. I. Andersson, and R. Skeffington. (1998). Recovery From Acidification in the Forested Covered Catchment Experiment at Gårdsjön: Effects on Biogeochemical Output Fluxes and Concentrations. – In: Hultberg, H. and Skeffington, R.A. (eds) *Experimental Reversal of Acid Rain Effects: The Gårdsjön Roof Project*. Baffins Lane /Chichester PO19 1UD, West Sussex/England: John Wiley and Sons Ltd, 1998. p. 157-84.
- Håkanson, L., Andersson, P., Andersson, T., Grahn, P., Johansson, J.Å., Jönsson, C.P., Kvarnäs, H., Lindgren, G. and Nilsson, Å. (1990). Åtgärder mot höga kvicksilverhalter i insjöfisk. Slutrapport för kvicksilverdelen av projektet Kalkning - Kviksilver - Cesium. Naturvårdsverket, rapport 3818.
- Högbom, A.G. (1921). Om vitriolbildning i naturen såsom orsak till massdöd av fisk i våra insjöar. *Svensk Fiskeritidskrift*, 30: 41-51.
- Hörnström, E. (1979). Kalknings- och försurningseffekter på växtplankton i tre västkustsjöar. National Swedish Environmental Protection Board, PM 1220.
- Hörnström, E. (1981). Trophic characterization of lakes by means of qualitative phytoplankton analysis. *Limnologica*, 13: 249-261.
- Hörnström, E. (1999). Long-term phytoplankton changes in acid and limed lakes in SW Sweden. *Hydrobiologia*, 394, 93-102.
- Hörnström, E. and Ekström, C. (1986). Acidification and liming effects on phyto- and zooplankton in some Swedish west coast lakes. National Swedish Environmental Protection Board. Report 1864.
- Hörnström, E., Ekström, C. and Andersson, P. (1992). Tio mellansvenska sjöar. Kalkningseffekter på plankton och vattenkemi. Naturvårdsverket, Rapport 4048.
- Hörnström, E., Ekström, C. and Duraini, M.O. (1984). Effects of pH and different levels of aluminium on lake plankton in the Swedish west coast area. *Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, 61: 115-127.
- Hörnström, E., Ekström, C., Fröberg, E. and Ek, J. (1993). Plankton and chemical-physical development in six Swedish west coast lakes under acidic and limed conditions. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 50: 688-702.
- Hörnström, E., Ekström, C., Miller, U. and Dickson, W. (1973). Försurningens inverkan på västkustsjöar. *Inform. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, nr.4: 1973

- Hörnström, E., Harbom, A. Edberg, F. and André, C. (1995). The influence of pH on aluminium toxicity in the phytoplankton species *Monoraphidium dybowskii* and *M. griffithii*. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 817-822.
- Iverfeldt, Å., Munthe, J., Brosset, C. and Pacyna, J. (1995). Long-term changes in concentration and deposition of atmospheric mercury over Scandinavia. *Water, Air and Soil Pollution*, 80: 227-233.
- Jackson, M.B., Vandermeer, E.M., Lester, N., Booth, J.A., Molot, L. and Gray, I.M. (1990). Effects of neutralization and early reacidification on filamentous algæ and macrophytes in Bowland Lake. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 47: 432-439.
- Jansson, M. Persson, G. and Broberg, O. (1986). Phosphorus in acidified lakes: Induced longterm changes. *Hydrobiologia*, 139: 81-96.
- Jensen, K.W. and Snekvik, E. (1972). Low pH levels wipe out salmon and trout populations in southern Norway. *Ambio*, 1: 223-225.
- Johansson, K. and Nyberg, P. (1981). Försurning av svenska ytvatten – effekter och omfattning 1980. Inform. Inst. Freshw. Res., Drottningholm. nr. 6:1981.
- Johansson, N., Runn, P. and Milbrink, G. (1977). Early development of three salmonid species in acidified water. *Zoon* 5: 127-132.
- Keller, W., Dodge, D.P. and Booth, G.M. (1990a). Experimental lake neutralization program: overview of neutralization studies in Ontario. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 47: 410-411.
- Keller, W., Molot, L.A., Griffiths, R.W. and Yan, N.D. (1990b). Changes in zoobenthos community of acidified Bowland Lake after whole-lake neutralization and lake trout (*Salvelinus namaycush*) reintroduction. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 47: 440-445.
- Keller, W., Yan, N.D., Holze, K. and Pitblado, J.R. (1990c). Inferred effects of lake acidification on *Daphnia galeata mendotæ*. *Environ. Sci. Technol.* 24: 1259-1261.
- Keller, W., Yan, N.D., Howell, T., Molot, L.A. and Taylor, W.D. (1992). Changes in zooplankton during the experimental neutralization and early reacidification of Bowland Lake near Sudbury, Ontario. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 49 (suppl. 1): 52-62.
- Kindbom, K., Lövblad, G. and Sjöberg, K. (1993). Beräkning av ackumulerad syrabelastning från atmosfären till de svenska ekosystemen. Delrapport 1: Emissioner av svavel, kväve och alkaliskt stoft i Sverige 1900-1990. IVL Report, B 1109.
- Kindbom, K., Lövblad, G. and Sjöberg, K. (1994). Sulphur and nitrogen compounds in air and precipitation in Sweden 1980 to 1992. IVL Report, B 1144.
- Korsman, T. (1993). Acidification trends in Swedish lakes: An assessment of past water chemistry conditions using lake sediments. Ph. D Thesis. Umeå University, Department of Ecological Botany. 13 pp + Appendices.
- Korsman, T. (1999). Temporal and spatial trends of lake acidity in Northern Sweden. *J. Paleolimnology*, 22: 1-15.
- Krantzberg, G. and Stokes, P. M. (1988). The importance of surface adsorption and pH in metal accumulation by Chironomids. *Environ. Tox. Chem.*, 7: 653-670.
- Kretzer, W.A. and Colquhoun, J.R. (1984). Treatment of New York's Adirondack lakes by liming. *Fisheries*, 9: 36-41.

- Kroglund, F. and Staurnes, M. (1999). Water quality requirements of smolting Atlantic salmon (*Salmo salar*) in limed acid rivers. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 56 : 2078-2086.
- Lindquist, P. (1974). Kalkning av försurade sjöar. Del I. Problembeskrivning samt utvärdering av kalkningen av Östra Nedsjön. CTH, Rep. 83
- Larsson, S. (1988). Liming Effects on Phytoplankton in Lake Gårdsjön 1982-1985. – In: Dickson, W. (ed.) Liming of Lake Gårdsjön – An acidified lake in SW Sweden. The National Swedish Environmental Protection Agency. Report 3426. Solna, Sweden. p. 245-281.
- Larsson, S. (1995). The effects of liming on aquatic flora. – In: Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (eds.). Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p. 193-220.
- Lazarek, S. (1982). Structure and function of a cyanophyten mat community in an acidified lake. *Can. J. Bot.*, 60: 2235-2240.
- Laudon, H. (2000). Separating natural acidity from anthropogenic acidification in the spring flood of northern Sweden. Doctoral thesis, Swedish University of Agricultural Sciences, Umeå. *Silvestria* 160. 48 pp + appendices.
- Leivestad, H., and G., Muniz, I.P. (1976). Fish kill at low pH in a Norwegian river. *Nature*, 259: 391-392.
- Lessmark, O. 1987. Markkalkning som metod för att motverka försurning av sjöar och vattendrag. *Inform. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*. nr. 9:1987.
- Lindmark, G.K. (1984). Acidified lakes: ecosystem response following sediment treatment with sodium carbonate. *Verh. Int. Verein. Limnol.*, 22: 772-779.
- Lindmark, G.K. (1993). Soda ash for mitigation of acidified waters. Long-term lake response and efficiency. *Verh. Int. Verein. Limnol.*, 25: 494-499.
- Lindström, T., Dickson, W. and Andersson, G. (1984). Reclaiming acid high mountain lakes by liming: a progress report. *Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, 61: 128-137.
- Lingdell, P-E. (1997). Vilken biologisk mångfald offrar vi vid återförsurning? Paper presented at a workshop on Reacidification. April, 9-10, 1997.
- Lingdell, P-E. and Engblom, E. (1990). Kräftdjur som miljöövervakare. *SNV Rapport* 3811. 119 pp.
- Lingdell, P-E. and Engblom, E. (1992). Försurningssituationen i några Vätterbäckar. En studie av bottenfauna oktober 1991. *Länstyrelsen i Skaraborg. Rapport*, 3/92.
- Lingdell, P-E. and Engblom, E. (1995). Liming restores the benthic invertebrate community to "pristine" state. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 955-960.
- Livonen, P., Piepponen, S. and Verta, M. (1992). Factors affecting trace-metal bioaccumulation in Finnish headwater lakes. *Environ. Pollut.*, 78: 87-95.
- Lithner, G. (1989). Bedömningsgrunder för sjöar och vattendrag – Bakgrundsdokument 2: Metaller. *Naturvårdsverket, rapport* 3628.
- Lithner, G., Holm, K. and Borg, H. (1995). Bioconcentration factors for metals in humic waters at different pH in the Rönnskär area (N. Sweden). *Water, Air and Soil Pollut.*, 85: 785-790.

- Lydén, A. and Grahn, O. (1985). Phytoplankton species composition, biomass and production in Lake Gårdsjön – an acidified clearwater lake in SW Sweden. – In: Andersson, F and Olsson, B. (eds.) Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment. Ecol. Bull. (Stockholm) 37: 195-203.
- Lövblad, G., Kindbom, K. Grennfelt, P. Hultberg, H. and Westling, O. (1995). Deposition of acidifying substances in Sweden. – In: Staaf, H. and Tyler, G. Effects of acid deposition and tropospheric ozone on forest ecosystems in Sweden. Ecol. Bull. (Stockholm), 44: 17-34.
- Mason B.J.(ed.). SWAP The Surface Water Acidification Programme. Cambridge University Press, U.K., 1990.
- Matschullat J, Wyrobek M. (1993). Controlled experimental acidification of lake sediments and resulting trace metal behaviour. Water, Air, and Soil Pollution; 69: 393-403
- Medin, M., Ericson, U. and Nilsson, C. (1993). Studier av bottenfaunan i försurade och kalkade vattendrag. Länsstyrelsen i Värmlands län. Rapport, 1993:19.
- Meili, M. (1995). Liming effects on mercury concentrations in fish. – In: Henrikson L. and Brodin Y.-W. (eds.). Liming of acidified surface waters - a Swedish synthesis. Springer Verlag, p 383-397.
- Meili, M., Bishop, K., Bringmark, L., Johansson, K., Munthe, J., Sverdrup, H. and de Vries, W. (2002). Critical levels of atmospheric pollution: Criteria and concepts for operational modelling of mercury in forest and lake ecosystems. (Submitted).
- Meili, M., Iverfeldt, Å. and Håkanson, L. (1991). Mercury in the surface water of Swedish forest lakes - concentrations, speciation and controlling factors. Water, Air and Soil Pollution, 56: 439-453.
- Moldan, F., Wright, R. F., Ferrier, R. C., Andersson, I. and Hultberg, H. (1998). Simulating the Gårdsjön Covered Catchment Experiment With the MAGIC Model. – In: Hultberg, H. and Skeffington, R.A. (eds.) Experimental Reversal of Acid Rain Effects: The Gårdsjön Roof Project. Baffins Lane /Chichester PO19 1UD, West Sussex/England: John Wiley and Sons Ltd, 1998. p. 351-61.
- Moldan, F., Westling, O and Munthe, J. (1999). Geochemical modelling of acidification and recovery in forest soils and runoff waters. IVL B, 1323. 56 pp.
- Molot, L.A., Dillon, P.J. and Booth, G.M. (1990a). Whole-lake and nearshore water chemistry in Bowland Lake, before and after treatment with CaCO₃. Can J. Fish. Aquat. Sci., 47: 412-421.
- Molot, L.A., Heintsch, L. and Nicholls, K.H. (1990b). Response of phytoplankton in acidic lakes in Ontario to whole-lake neutralization. Can J. Fish. Aquat. Sci., 47: 422-431.
- Mossberg, P. and Nyberg, P. (1979). Bottom fauna of small acid forest lakes. Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm, 58: 77-87
- Muniz, I.P. and Leivestad, H. (1980). Toxic effects of aluminium on the brown trout, *Salmo trutta* L. – In: Drablös, D. and Tollan, A. (eds.) Ecological impact of acid precipitation. SNSF-project, Oslo-Ås. p. 320-321.
- Munthe, J., Lee, Y. H. Hultberg, H. Iverfeldt, Å. Borg, G. C. and Andersson. B. I. (1998). Cycling of Mercury and Methyl Mercury in the Gårdsjön Catchments. – In: Hultberg, H. and Skeffington, R.A. (eds.) Experimental Reversal of Acid Rain Effects: The Gårdsjön Roof Project. Baffins Lane /Chichester PO19 1UD, West Sussex/England: John Wiley and Sons Ltd, 1998. p. 261-76.

- Naturvårdsverket (1999). Nationell plan för kalkning av sjöar och vattendrag 2000-2009. redovisning av ett regeringsuppdrag. ISBN:91-620-9934-5
- Naturvårdsverket (1999). Sjöar och vattendrag. SNV, Rapport 4913.
- Nihlgård, B., Nilsson, S.I. and Rosengren, U. (1988). Concentrations and fluxes of main cations and anions in soil water and run-off water. – In: Andersson, F. and Persson, T. (eds.). Liming as a measure to improve soil and tree conditions in areas affected by air pollution. SNV, Rapport 3518. p 40-52.
- Nilssen, J.P. (1980). Acidification of a small watershed in southern Norway and some characteristics of acidic aquatic environments. *Int. Rev. ges. Hydrobiol.* 65: 177-207.
- Nilssen, J.P. (1984). An ecological jig-saw puzzle: reconstructing aquatic biogeography and pH in an acidified region. *Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, 61: 138-147.
- Nilssen, J.P., Østdahl, T. and Potts, W.T.W. (1984). Species replacement in acidified lakes: Physiology, predation or competition. *Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, 61: 148-153.
- Nilsson, A.N. and Johansson, A. (1985). En jämförelse av bottenfaunan i några kalkade och okalkade vattendrag: Med tonvikt på kalkningsmetodik. *Inform. Inst. Freshw. Res.* , Drottningholm, nr 11:1985.
- Nilsson, S.I. (1993). Acidification of Swedish oligotrophic lakes - interaction between deposition, forest growth and effects on lake water quality. *Ambio*, 22: 272-276.
- Nilsson, Å., Andersson, T., Håkanson, L. and Andersson, A. (1989). Kvicksilver i insjöfisk - koppling till kvicksilver och selen i mår och historiska utsläpp. Naturvårdsverket, Rapport 3593.
- Norrgrén, L. and Degerman, E. (1993). Effects of different water qualities on the early development of Atlantic salmon and brown trout exposed *in situ*. *Ambio*, 22: 213-218.
- Notter, M., ed. (1993). Metallerna och miljön. Naturvårdsverket Rapport 4135.
- Nyberg, P. (1984) Impact of chaoborus predation on planktonic crustacean communities in some acidified and limed forest lakes in Sweden. *Rep. Inst. Freshw, Res. Drottningholm*, 61: 154-166.
- Nyberg, P. (1998). Biotic effects in planktonic crustacean communities in acidified Swedish forest lakes after liming. *Water, Air and Soil Pollution*, 101: 257-288.
- Nyberg, P. and Thörnelöf, E. (1988). Operational liming of surface waters in Sweden. *Water, Air, and Soil Pollution*, 41: 3-16.
- Nyberg, P., Appelberg, M. and Degerman, E. (1986). Effects of Liming on Crayfish and Fish in Sweden. *Water, Air, and Soil pollution* 31: 669-687.
- Nyberg, P., Andersson, P., Degerman E., Borg, H. and Olofsson, E. (1995) Labile inorganic manganese – an overlooked reason for fish mortality in acidified streams? *Water, Air, and Soil Pollution*, 85: 333-340.
- Nyman, H.G., (1990). Some biological mechanisms reducing the availability of phosphorus in acid lakes. – In: Mason B.J.(ed.). SWAP The Surface Water Acidification Programme. Cambridge University Press, U.K., 1990.

- Nyman, H.G., Oscarson, H.G. and Stenson, J.A.E. (1985). Impact of invertebrate predators on the zooplankton composition in acid forest lakes. – In: Andersson, F and Olsson, B. (eds.) Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment. Ecol. Bull. (Stockholm), 37: 239-244.
- Nyström, U., Hultberg, H. and Lind, B.B. (1995). Can forest-soil liming mitigate acidification of surface waters in Sweden? Water, Air and Soil Pollution, 85: 1855-1860.
- Odén, S. (1968). Nederbördens och luftens försurning. Dess orsaker, förlopp och verkan i olika miljöer. Ecol. Bull. (Stockholm), 1: 1-86. (In Swedish with English summary)
- Ohle, W. (1936). Der schwefelsaure Tonteich bei Reinbak. Arch. Hydrobiol., 30: 604-662.
- Olem, H. (1990). Liming acidic surface waters. NAPAP Report 15, 149 pp + Appendices.
- Olem, H., Schreiber, R.K., Brocksen, R.W. and Porcella, D.B. eds. (1991). International lake and watershed liming practices. Terrene Inst., Washington, D.C.
- Olofsson, O. (1930). Ett nytt exempel på fiskdöd i samband med sjösänkning. Svensk Fiskeritidskrift, 49: 212-213.
- Olsson, B. (1982). Storskalig spridning av kalkstens- och olivinmjöl på mark: effekter på fält- och bottensviktsvegetation. IVL, Rapport EM 811
- Olsson, H. and Pettersson A. (1993). Oligotrophication of acidified lakes – a review of hypotheses. Ambio, 22: 312-317.
- Oscarson, H.G. (1986). Studies on the ecology of water bugs (Corixidæ) in changing environments. With special reference to the water boatman *Glaenocoris propinqua*. Dissertation, Gothenburg University, Dep. of Zoology. 126 pp.
- Overrein, L., Seip, H.M. and Tollan, A. (1980) Acid precipitation - effects on forest and fish. SNSF-project, Final Report 1972-1980. Fagrappport 19/80. Oslo-Ås. 175 pp.
- Persson, G. and Broberg, O. (1985). Nutrient concentration in the acidified Lake Gårdsjön: The role of transport and retention of phosphorus, nitrogen and DOC in watershed and lake. – In: Andersson, F and Olsson, B. (eds.) Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment. Ecol. Bull. (Stockholm) 37: 158-176.
- Persson, G., Edberg, F., Andrén, C., Borg, H. (1997). Vattenkemi i IKEU-sjöarna. – In: B. Söderbäck (ed.), Biologisk mångfald i kalkade sjöar. Naturvårdsverket rapport 4816. p 10-24.
- Pleijel, H., Andersson, I. and Lövblad, G. (1999). Försurningen år 2010. Vilka blir effekterna i naturmiljön. Rapport för Internationella Försurningssekretariatet och Naturvårdsverket. 33 pp + Appendix.
- Poléo, A.B.S., Østbye, K., Øxnevad, S.A., Andersen, R.A., Heibo, E. and Vøllestad, A. (1997). Toxicity of acid aluminium-rich water to seven freshwater fish species: A comparative laboratory study. Environ. Pollut., 96: 129-139.
- Porcella, D.B. ed. (1989). Lake Acidification Mitigation Project (LAMP). Can. J. Fish. Aquat. Sci., volume 46, No 2. p 246-359.
- Porcella, D.B., Driscoll, C.T., Schofield, C.L. and Newton, R.M. (1995). Lake and watershed neutralization strategies. Water, Air, and Soil Pollution, 85: 889-894.
- Raddum, G.G. (1979). Effects of low pH on insect larvæ. SNSF-project IR 45/79. Oslo-Ås. 58 pp. (in Norwegian with English summary).

- Raddum, G.G. and Fjellheim, A. (1984). Acidification and early warning organisms in freshwater in western Norway. Verh. Int. Verein. Limnol., 22: 1973-1980.
- Raddum, G.G., Brettum, P., Matzow, D., Nilssen, J.P., Skov, A., Svedälvs, T. and Wright, R.F. (1986). Liming the acid Lake Hovvatn, Norway: A whole-ecosystem study. Water, Air, and Soil Pollution, 31: 721-763.
- Renberg, I. (1985). Influences of acidification on the sediment chemistry of Lake Gårdsjön. – In: Andersson, F. and Olsson, B. (eds.) Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment. Ecol. Bull. (Stockholm) 37: 246-250.
- Renberg, I. and Hultberg, H. (1992). A Paleolimnological Assessment of Acidification and Liming Effects on Diatom Assemblages in a Swedish Lake. Can. J. Fish. Aquat. Sci., 49: 65-72.
- Renberg, I. and Wallin, J.-E. (1985). The history of the acidification of Lake Gårdsjön as deduced from diatoms and Sphagnum leaves in the sediment. – In: Andersson, F. and Olsson, B. (eds.) Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment. Ecol. Bull. (Stockholm) 37: 47-52.
- Renberg, I., Korsman, T. and Anderson, N.J. (1993). A temporal perspective of lake acidification in Sweden. Ambio, 22: 264-271.
- Renberg, I., Brodin, Y.-W., Cronberg, G., El-Daoushy, F., Oldfield, F., Rippey, B., Sandøy, S., Wallin, J.-E. and Wik, M. (1990). Recent acidification and biological changes in Lilla Öresjön, southwest Sweden, and the relation to atmospheric pollution and land-use history. Phil. Trans. R. Soc. London, B 327: 391-396.
- Roelofs, J.G.M. (1983). Impact of acidification and eutrophication on macrophyte communities in soft waters in The Netherlands. I. Field observations. Aquat. Bot., 17: 139-155.
- Roelofs, J.G.M., Brandrud, T.E. and Smolders, A.J.P. (1994). Massive expansion of *Juncus bulbosus* L. after liming of acidified SW Norwegian lakes. Aquatic Botany, 48: 187-202.
- Ross, H., (1991). Övervakning av tungmetaller i nederbörden. Rapport från verksamheten 1990. Naturvårdsverket Rapport 3943.
- Rosseland, B.O. and Hindar, A. (1991). Mixing zones – a fishery management problem? – In: Olem, H., Schreiber, R.K., Brocksen, R.W. and Porcella, D.B. (eds.) International lake and watershed liming practices. Terrene Inst., Washington, D.C. p.161-172.
- Rosseland, B.O. and Skogheim, O.K. (1986). Acid Soft Water and Neutralisation: Effects on Fish Physiology Fish Toxicology and Fish Populations. Dissertation DNF. Fish. Res. Div., Tungasletta, Trondheim.
- Rosseland, B.O. and Staurnes, M. (1994). Physiological mechanisms for toxic effects and resistance to acidic water: An ecophysiological and ecotoxicological approach. – In: Steinberg, C.E.W. and Wright, R.F. (eds.). Acidification of freshwater ecosystems. Implications for the future. John Wiley and Sons. Ltd. p. 227-246.
- Rosseland, B.O., Blakar, I., Bulger, A., Kroglund, F., Kvellestad, A., Lydersen, E., Oughton, D.H., Salbu, B., Staurnes, M. and Vogt, R. (1992). The mixing zone between limed and acidic river waters; Complex Al chemistry and extreme toxicity for salmonids. Environ. Pollut., 78; 3-8.

- Runn, P., Johansson, N. and Milbrink, G. (1977). Some effects of low pH on the hatchability of eggs of perch, *Perca fluviatilis* L. *Zoon* 5: 115-125.
- Rudd, J.W.M. (1995). Sources of methyl mercury to freshwater ecosystems. *Water, Air and Soil Pollution*, 80: 697-713.
- Rühling, Å., Steinnes, E. and Berg, T. (1996) Atmospheric heavy metal deposition in northern Europe 1995. *NORD 1996:37*, The Nordic Council of Ministers 46 pp.
- Rühling, Å., Rasmussen., L., Pilegaard, K., Mäkinen, A. and Steinnes, E. (1987) Survey of atmospheric heavy metal deposition - monitored by moss analyses. *NORD 1987:21*, The Nordic Council of Ministers.
- Rühling, Å., Brumelis, G., Goltsova, N., Kviatkus, K., Kubin, E., Liivs, S., Magnusson S., Mäkinen, A., Pilegaard, K., Rasmussen., L., Sander, E. and Steinnes, E. (1992) Atmospheric heavy metal deposition in northern Europe 1990. *NORD 1992:12*, The Nordic Council of Ministers.
- Sangfors, O. (1991). Inventering av makrofyter i Gårdsjön, september 1991. Miljöforskargruppen, Rapport F91/085:2.
- Sarvala, J. and Halsinaho, S. (1990). Crustacean zooplankton of Finnish forest lakes in relation to acidity and other environmental factors. – In: Kauppi, P., Anttila, P. and Kentämies, K. (eds.) *Acidification in Finland*. Springer-Verlag, Heidelberg. p. 1009-1027.
- Satake, K., Oyagi, A. and Iwao, Y. (1995). Natural acidification of lakes and rivers in Japan: the ecosystem of Lake Usoriko. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 511-516.
- Schindler, D.W. (1980). Experimental acidification of a whole lake: A test of the oligotrophication hypothesis. - In: Drablös, D. and Tollan, A. (eds.) *Ecological impact of acid precipitation*. SNSF-project, Oslo- Ås. p. 370-374.
- Schindler, D.W. (1990). Experimental perturbations of whole lakes as tests of hypothesis concerning ecosystem structure and function. *Oikos*, 57: 24-41.
- Schindler, D.W. (1999). From acid rain to toxic snow. Volvo Environment Prize Lecture 1998. *Ambio*, 28:350-355.
- Schofield, C.L., Gloss, S.P., Plonski, B. and Spateholts, R. (1989). Production and growth efficiency of brook trout (*Salvelinus fontinalis*) in two Adirondack Mountain (New York) lakes following liming. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 46: 333-341.
- Schreiber, R.K. and P.J. Rago (1984). The federal plan for mitigation of acid precipitation effects in the United States: Opportunities for basic and applied research. *Fisheries*, 9: 31-36.
- Skeffington, R. A., and Lines, J.M. (1995). The Loch Fleet Project in the context of acidification reduction measures. *Chemistry and Ecology*, 9: 247-260.
- Skogheim, O.K., Rosseland, B.O. and Sevaldrud, I.H. (1984). Deaths of spawners of Atlantic salmon (*Salmo salar* L.) in River Ognå, SW Norway, caused by acidified aluminium-rich water. *Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm*, 61: 195-202.
- Smallidge, P.J., Brach, A.R. and Mackun, I. (1993). Effects of watershed liming on terrestrial ecosystem processes. *Environ. Rev.* 1: 157-171.
- SNV (1997). Nationell plan för kalkning av sjöar och vattendrag – en översikt. Naturvårdsverket.
- SOU 1996:53. (1996) Kalkningsutredningen.

- Stenson, J.A.E. (1972). Fish predation effects on the species composition of the zooplankton community in eight small forest lakes. Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm, 52: 132-148.
- Stenson, J.A.E. (1981). The role of predation in the evolution of morphology, behaviour and life history of two species of *Chaoborus*. Oikos 37: 323-327.
- Stenson, J.A.E. (1985). Biotic structures and relations in the acidified Lake Gårdsjön system – A synthesis. – In: Andersson, F and Olsson, B. (eds.) Lake Gårdsjön – An acid forest lake and its catchment. Ecol. Bull. (Stockholm) 37: 319-327.
- Stenson, J.A.E., Bohlin, T., Henrikson, L., Nilsson, B-I., Nyman, H.G., Oscarson, H.G. and Larsson, P. (1978). Effects of fish removal from a small lake. Verh. Int. Verein. Limnol., 20: 794-801.
- Stenson, J.A.E., Svensson, J-E. and Cronberg, G. (1993). Changes and interactions in the pelagic community in acidified lakes in Sweden. Ambio, 22: 277-282.
- Svedäng, M. (1990). The growth dynamics of *Juncus bulbosus* L. – A strategy to avoid competition. Aquatic Botany, 37: 123-138.
- Svensson, J.-E., Henrikson, L., Larson, S. and Wilander, A. (1995). Liming strategies and effects: The Lake Gårdsjön case study. – In: Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (eds.). Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p. 309-325.
- Sverdrup, H.U. (1985). Calcite dissolution kinetics and lake neutralization. Ph. D. thesis, Dept. Chem. Eng., Institute of Technology, Lund Univ. Lund, Sweden. 170 pp.
- Sverdrup, H.U. (1986). A Scandinavian model used to predict the reacidification of limed lakes in Nova Scotia and Ontario, Canada. Water, Air, and Soil Pollution, 31: 689-707.
- Sverdrup, H.U., Warfvinge, P.G. and Fraser, J. (1985). The dissolution efficiency for different stream liming methods and technology. Vatten, 41: 155-163.
- Sverdrup, H., Warfvinge, P., Hultberg, H. and Moldan, F. (1995). Modelling acidification and recovery in the roofed catchment at Lake Gårdsjön. Water, Air, and Soil Pollution, 85: 1753-1758.
- Traaen, T.S., Frogner, T., Hindar, A., Kleiven, E., Lande, A. and Wright, R.F. (1997). Whole-catchment liming at Tjønnestrand, Norway: an 11-year record. Water, Air and Soil Pollution, 94: 163-180.
- Vallin, S. (1953). Zwei azidotrophe Seen im Küstengebiet von Nordschweden. Rep. Inst. Freshw. Res. Drottningholm, 34: 167-189.
- Van Dam, H., Van Geel, B., Van der Wijk, A., Geelen, J.F.M., Van der Heijden, R. and Dickman, M.D. (1988). Palaeolimnological and documented evidence for alkalization and acidification of two moorland pools (The Netherlands). Rev. Palaeobot. Palynol., 55: 273-316.
- Verta, M. (1990) Changes in Fish Mercury Concentrations in an Intensively Fished Lake. Can. J. Fish. Aquat. Sci., 47: 1888-1897.
- Warfvinge, P., Löfgren, S. and Lundström, U. (1995a). Implications of natural acidification for mitigation strategies in northern Sweden. Water, Air and Soil Pollution, 85: 499-504.

- Warfvinge, P., Sverdrup, H., Alveteg, M. and Rietz, F. (1995b). Modelling geochemistry and lake pH since glaciation at Lake Gårdsjön. *Water, Air and Soil Pollution*, 85: 713-718.
- Weatherly, N.S., Jenkins, M.J., Evans, D.M., Rogers, A.P. and Gee, A.S. (1995). Options for liming rivers to ameliorate acidity – A UK perspective. *Water, Air, and Soil Pollution*, 85: 1009-1014
- Wiederholm, T. and Eriksson, L. (1977). Benthos of an acid lake. *Oikos*, 29: 261-267.
- Wiklander, L. (1975). The role of neutral salts in the ion exchange between acid precipitation and soil. *Geoderma*, 14: 93-105.
- Wilander, A., Andersson, P., Borg, H. and Broberg, O. (1995). The effects of liming on water chemistry. – In: Henrikson, L. and Brodin, Y.W. (eds.). *Liming of acidified Surface waters. A Swedish synthesis*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. ISBN 3-540-58505-2. p. 125-178.
- Wilander, A., Johnson, R.K., Goedkoop, W. and Lundin, L. (1998). Riksinventering 1995. En synoptisk studie av vattenkemi och bottenfauna i svenska sjöar och vattendrag. Naturvårdsverket. Rapport, 4813.
- Wilander, A. and Lundin, L. (2000). Recovery of surface waters and forest soils in Sweden. – In: Warfvinge, P. and Bertills, U., (eds.). *Recovery from Acidification in the Natural Environment*. Naturvårdsverket, Rapport 5034, p. 53-66.
- Witters, H. and Vanderborght, O. eds. (1987). *Ecophysiology of acid stress in aquatic organisms*. *Annales de la Soc. Royal Zool. de Belgique*, 117, suppl. 1. 472 pp.
- Witters, H., Van Puymbroeck, S. and Vanderborght, O.L.J. (1991). Adrenergic response to physiological disturbances in rainbow trout. *Oncorhynchus mykiss*, exposed to aluminum at acid pH. *Can. J. Fish. Aquat. Res.*, 48: 414-420
- Wood, J. M. (1985). Effects of acidification on the mobility of metals and metalloids: An overview. *Environ. Health Perspectives.*, 63: 115-119.
- Wright, R.F. (1983). Kalking av Hovvatn. Vannkvalitet før og etter kalking. Kalkningsprosjektet DVF, Rapport 3-82. NIVA nr 0-80044-01. 63 pp.
- Wright, R.F. and Skogheim, O. (1983). Aluminium speciation at the interface of an acid stream and a limed lake. *Vatten*, 39: 301-304.
- Wright, R.F., Lotse, E. and Semb, A. (1993). RAIN Project: Results after 8 years of experimentally reduced acid deposition to a whole catchment. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 50: 258-268.
- Wright, R.F., Norton, S.A., Brakke, D.F. and Frogner, T. (1988). Experimental verification of episodic acidification of freshwaters by sea salts. *Nature*, 334: 422-424.
- Wright, R.F., Dale, T., Henriksen, A., Hendrey, G.R., Gjessing, E.T., Johannessen, M., Lysholm, C. and Støren, E. (1977). Regional surveys of small Norwegian lakes October 1974, March 1975, March 1976 and March 1977. SNSF-project, IR 33/77. 153 pp.
- Wällstedt, T. (1998). Inverkan av pH på utlakning av metaller ur sjösediment. Examensarbete i vattenkemi, ITM-Inst. för strukturkemi, Stockholms Universitet.
- Wällstedt, T., and Borg, H. (2002). Effects of experimental acidification on mobilisation of metals from limed and unlimed lake sediments. (in prep.).

- Yan, N.D., Mackie, G.L. and Dillon, P.J. (1990). Cadmium concentrations of crustacean zooplankton of acidified and non-acidified Canadian Shield lakes. *Environ. Sci. Technol.*, 24: 1367-1372.
- Yates, C. and DeCosta, J. (1994). Some bag experiments on Tibbs Run Lake, W.V., A eutrophic acidified lake. *Int. Revue ges. Hydrobiol.*, 79: 437-460.
- Ågren, C. (1993). Åtgärder mot utsläpp av luftföroreningar i Europa. *Vatten*, 49: 202-206.
- Økland, J. and Økland, K.A. (1986). The effects of acid deposition on benthic animals in lakes and streams. *Experientia*, 42: 471-486.

Återförsurning av sjöar

observerade och förväntade biologiska och kemiska effekter

Denna rapport är en översikt av resultaten från studier av effekter vid återförsurning av ytvatten där kalkning avbrutits. Dessutom ingår en mer omfattande litteraturoversikt (Appendix: *Reacidification of limed surface waters – Assessment of biological effects, a literature review*, 1999-12-20. Kontrakt nr. 012-011-98-01, Dnr 802-000169-97-FF).

Resultaten från hittills genomförda fältstudier av återförsurning, visade snabba förändringar, i riktning mot det tidigare sura tillståndet, med negativa effekter på ekosystemet och haltökning av aluminium m. fl. metaller i vattnet. Av de kalkade sjöarna i Sverige beräknas ca 20 % kunna få pH-värden kring 5,4 (ingen alkalinitet kvar) om kalkningen upphör. Flertalet av dessa är belägna i de mest försurningsskadade områdena i sydvästra Sverige. I rapporten föreslås en översyn av kalkningsverksamheten, med rekommendationer av urvalskriterier för olika ytvatten vid en eventuellt minskad kalkning. Slutligen föreslås forskningsinsatser för att belysa en del av de oklarheter som för närvarande råder om effekterna av återförsurning. Rapporten riktar sig till de som arbetar med försurnings- och kalkningsfrågor vid t ex länsstyrelser, kommuner och vid universitet och högskolor.