
Suivi du transfert des produits phytosanitaires sur les bassins versants et exemple de modélisation globale

Véronique Gouy, Jean-Joël Gril, Brigitte Laillet,
Christelle Garon-Boucher, Jean-François Dubernet
et Charles Cann

L'UIPP (Union des Industriels de la Protection des Plantes) estime à 94 000 tonnes la quantité totale de matières actives utilisées en France en 1992 pour une surface développée (surface traitée x nombre d'applications) de 129 millions d'hectares. Les fongicides et les herbicides représentent à eux seuls 89 % de ce tonnage et l'agriculture est de loin la plus grosse consommatrice de ces produits (Larguier et Michon, 1994).

Bien que les risques de contamination des milieux aquatiques par les produits phytosanitaires aient été évoqués dès la fin des années 70 (Wauchope, 1978 ; Hénin, 1980), leur prise en compte dans les programmes de surveillance n'apparaît en France qu'en 1989, à la suite du passage en droit français de la Directive européenne (80/778/CEE) sur l'eau potable limitant à 0,1 µg/l la concentration maximale admissible de la plupart des matières actives. De cette date à nos jours, les analyses dans les eaux de surface et souterraines se sont généralisées. Toutefois, il n'est pas possible de dresser pour autant un état des lieux satisfaisant de la qualité de la ressource en raison des limites très fortes suivantes :

- le nombre des matières actives homologuées s'élève aujourd'hui en France à environ 900 molécules, qui participent à la fabrication de plus de 8 000 spécialités commerciales (Larguier et Michon, 1994) ;
- l'analyse des résidus dans l'environnement requiert la mise en œuvre d'un protocole qualité exigeant et coûteux ;

– la méconnaissance des modes de transfert occasionne parfois des échantillonnages mal adaptés au suivi de la pollution diffuse ;

– la formation de résidus liés peut être à l'origine d'une rétention plus ou moins longue des produits dans le sol, ces derniers pouvant être libérés bien plus tard lors de changements des conditions du milieu. Or, les mécanismes responsables du piégeage et du relargage sont encore mal connus.

On constate que les causes de la contamination agricole sont aussi bien ponctuelles, liées à des erreurs de manipulation, que diffuses, liées aux pratiques usuelles. Les eaux de surface sont tout autant concernées que les nappes souterraines. Elles montrent même des concentrations maximales nettement plus élevées que ces dernières, même si elles sont plus épisodiques. De plus, contrairement à la pollution liée aux fertilisants, les phytosanitaires peuvent présenter un effet toxique vis-à-vis de l'environnement et de l'homme.

La pollution des cours d'eau par les produits phytosanitaires peut être appréhendée aux différentes échelles de la parcelle agricole et du bassin versant. Au niveau de la parcelle ou de l'unité de production, l'un des enjeux réside dans l'optimisation du choix des produits et des itinéraires culturaux pour minimiser leurs potentialités de transfert, tout en conservant leur efficacité, dans un contexte socio-économique donné. Au niveau du bassin versant, les enjeux sont plutôt de l'ordre de la préservation des écosystèmes aquatiques et de la qualité de la ressource. Ces deux échelles d'étude sont nécessaires et complémentaires. Dans la suite, nous

Véronique Gouy, Jean-Joël Gril, Brigitte Laillet, Christelle Garon-Boucher

Cemagref
3 bis quai
Chauveau CP 220
69336 Lyon Cedex
09

Jean-François Dubernet

Cemagref
50 avenue de
Verdun
BP 3

33612 Cestas
Cedex

Charles Cann

Engref
19 avenue du
Maine
75015 Paris

étudierons plus particulièrement l'aspect bassin versant, échelle primordiale pour l'évaluation des possibilités d'exposition du milieu vis-à-vis des phytosanitaires et le développement d'outils de gestion minimisant les risques.

Cet article vient illustrer et compléter celui de Carluer *et al.*, 1996, auquel on pourra se reporter pour plus de détails quant aux processus de base mis en jeu dans le transfert des molécules et la description des modèles développés actuellement dans ce domaine.

A travers le suivi des concentrations à l'exutoire des bassins versants, cette étude fournit des informations sur le niveau d'exposition auquel le milieu est confronté. Elle rassemble les résultats obtenus sur trois sites de 4 à 12 km² et met l'accent sur l'importance des différentes étapes qui aboutissent à l'obtention de données de qualité utilisables à des fins de compréhension des processus de modélisation. Enfin, le modèle mathématique conceptuel GLEAMS (Leonard *et al.*, 1990), déjà étudié par le Cemagref (Carluer *et al.*, 1996) a été utilisé pour évaluer les niveaux de transfert à l'exutoire des bassins versants.

Principaux modes de dispersion des produits phytosanitaires vers les eaux de surface

Les produits phytosanitaires appliqués lors des usages agricoles peuvent être entraînés vers les eaux de surface par « voie terrestre » au sein des écoulements latéraux générés par la pluie ou l'irrigation, ou encore par voie atmosphérique lors de la pulvérisation ou après volatilisation des produits appliqués en surface. Dans le premier cas, les principaux modes de transfert sont le ruissellement de surface, les écoulements latéraux sous la surface du sol sur une couche moins perméable (comme la couche de labour) ou le drainage agricole. Une caractéristique fondamentale de la contamination est sa grande variabilité spatio-temporelle. Les différents types de hiérarchisation du chevelu hydrique souvent étroitement liés à la nature du sol et au climat, ainsi que la diversité des paysages et des systèmes agraires, influencent de façon considérable les chemins d'écoulement de l'eau et de la pollution associée. Ces éléments contribuent à expliquer les disparités entre régions (à socle imperméable ou non, par exemple), et le

fort effet d'échelle possible. D'autre part, le transfert par « voie terrestre », très dépendant du régime des pluies, est fortement événementiel.

De par leurs caractéristiques physico-chimiques, les produits phytosanitaires peuvent être transportés sous forme dissoute ou particulaire, associés aux particules de sol érodées. Le recours aux paramètres classiques de la mobilité des produits que sont le coefficient de distribution eau/solide (Kd) et la demi-vie (DT50) (encadré 1) pour tenter d'expliquer le comportement des produits phytosanitaires vers les eaux de surface est d'autant plus délicat que, par nature, ces paramètres sont très dépendants du milieu. Il est clair qu'à l'échelle d'un bassin versant ils n'ont plus de réel sens physico-chimique, mais sont plutôt des indicateurs globaux de l'interaction produit/milieu. Ceci pose en particulier le problème de la représentativité des valeurs mesurées au laboratoire en conditions standards par rapport aux conditions réelles du terrain.

En outre, compte tenu de l'influence déterminante du climat et du milieu, les seules valeurs de la DT50 et du Kd ne sauraient suffire à estimer les potentialités de transfert des produits à l'exutoire d'un bassin et il est nécessaire d'avoir recours à des modèles hydrologiques, complétés par des observations directes.

Stratégies d'échantillonnage et de mesure

Les études ont été réalisées sur trois bassins caractérisés par des conditions agro-pédo-climatiques distinctes (tableau 1).

Ces trois bassins, gérés par le Cemagref, sont équipés de dispositifs de suivi pluviométrique et d'une station à l'exutoire où sont mesurées les hauteurs d'eau et prélevés les échantillons d'eau à analyser. Pluviométrie et limnimétrie sont relevées au pas de temps fin de la minute. Afin de suivre au mieux les modalités de transfert des produits, des stratégies d'échantillonnage diverses pour le suivi chronique et le suivi en crue ont été mises en œuvre. Ces différents types de prélèvement et de suivi permettent d'aborder des sujets complémentaires tels que :

– l'état général de la contamination sur le long terme, pour le suivi chronique ;

Bassin de la Morcille	Bassin du Ruiné	Bassin du Coët Dan
4 km ² Haut Beaujolais Substrat cristallin altéré Sol sablo-limoneux Vignes	5,7 km ² Charente Substrat calcaire Sol limoneux fin calcaire Céréales, vignes, tournesol	12 km ² Bretagne centrale Substrat schisteux Sol limoneux fin Maïs, céréales, légumes

◀ Tableau 1. – Caractéristiques agro-pédo-climatiques des sites étudiés.

– l'étude de pics de concentration, pour le suivi en crue ;

– le suivi du rôle de la fraction solide dans le transfert au cours des orages, dans les deux cas.

• Dans le cas du suivi chronique, des échantillons ponctuels hebdomadaires sont prélevés sur les bassins du Ruiné et du Coët Dan, alors que sur la Morcille des échantillons moyens hebdomadaires sont constitués à partir de prélèvements horaires automatiques. On obtient, dans le premier cas, des « instantanés » de la situation au cours du temps, dans le second cas, une valeur moyenne sur des mesures plus rapprochées.

• De même, le type d'échantillonnage en crue varie d'un site à l'autre et peut conduire à des échantillons plus ou moins représentatifs de la crue. L'évaluation du pic de concentration est toujours un point délicat. Sur les trois sites étudiés, l'étude en crue est réalisée au moyen d'un préleveur automatique qui se déclenche lorsque la variation de la hauteur d'eau sur la minute dépasse une valeur seuil. Dans le cas du Ruiné, des échantillons moyens horaires sont ainsi constitués par six prélèvements toutes les dix minutes pendant la durée de la crue. Dans le cas de la Morcille et du Coët Dan, les prélèvements sont effectués à pas de temps variable asservi à la hauteur d'eau. Pour limiter le nombre d'analyses, ces échantillons sont moyennés sur la crue pour la Morcille.

Aux différents modes d'échantillonnage, se superposent les techniques de conservation, de séparation, d'extraction et d'analyse de l'échantillon qui peuvent aussi avoir une influence considérable sur la qualité des résultats.

Sur les sites étudiés, la recherche de la présence de produits phytosanitaires dans les eaux de surface a été précédée d'une étape préliminaire d'enquête sur les applications agricoles auprès de la totalité des exploitants ou d'un échantillon le plus

Encadré 1

Paramètres clés de la mobilité des produits phytosanitaires

• Le coefficient de distribution

Afin d'évaluer la répartition des produits entre les fractions dissoute et particulaire du milieu, on a recours à des modèles dont le plus simple est la relation linéaire, qui se traduit par l'équation suivante :

$$K_d = \frac{C_s}{C_e}$$

avec

K_d : coefficient de distribution du produit entre les fractions dissoute et particulaire

C_s : concentration du produit sur la fraction solide $\mu\text{g/g}$

C_e : concentration en produit dans la fraction liquide $\mu\text{g/ml}$

Il existe des modèles qui prennent en compte l'effet de saturation des sites de fixation avec la concentration en produit comme le modèle de Langmuir, ou celui plus empirique de Freundlich (Gouy, 1993).

Ce coefficient est facilement mesuré au laboratoire selon des méthodes standard pour différentes combinaisons de produits et de sols. Par contre, il est plus difficile de l'évaluer dans les conditions naturelles du fait de la grande variabilité des facteurs environnementaux et des faibles concentrations rencontrées.

Etudié au laboratoire en conditions contrôlées, ce paramètre permet d'accéder à la capacité d'adsorption du produit sur un sol ou un sédiment donné. Mesuré en conditions au champ, comme par exemple dans le ruissellement sur une parcelle, il n'a plus la même signification et peut recouvrir un ensemble de processus simultanés tels que l'adsorption, la désorption, l'absorption, la précipitation, la dégradation (Calvet *et al.*, 1997).

• La demi-vie

Le terme de demi-vie, noté DT_{50} , désigne la durée nécessaire pour que 50 % de la quantité initiale d'un produit disparaisse. On la décrit le plus simplement à partir d'une cinétique de disparition d'ordre 1, mais il existe des modèles plus complexes, qui font intervenir l'effet de l'humidité et de la température du sol.

La mesure de la DT_{50} au laboratoire dans une solution correspond le plus souvent à une mesure de dégradation. Par contre, en plein champ, se superposent les actions du transfert par ruissellement, lessivage ou volatilisation et de la rétention, si bien que l'on ne mesure plus une dégradation mais une dissipation.

représentatif possible (Munoz, 1991 ; Demeillez, 1994 ; Partenaires ISMAP Français, 1997 - b). Cette étape préliminaire permet d'une part de connaître l'ensemble des molécules utilisées et d'autre part d'obtenir des informations sur les doses et les dates d'application pour les principales cultures rencontrées. Puis, les listes souvent longues des produits répertoriés (ex. : 50 matières actives utilisées sur la Morcille) ont été simplifiées par l'application de méthodes de tri basées sur les caractéristiques physico-chimiques des molécules, leur taux d'application et leur toxicité. Une fois les matières à analyser choisies, dans les limites de l'enquête et de la sélection opérée, des méthodes d'extraction multirésidus ont été mises au point et validées. Les analyses ont été effectuées au moyen de chromatographes en phase gazeuse (CPG) ou liquide (HPLC) selon les produits (Partenaires ISMAP Français, 1997 a et b).

Cette étape a été réalisée de façon spécifique pour chaque site en fonction des produits retenus et des moyens analytiques disponibles.

Dans le cas du Ruiné et du Coët Dan, les observations disponibles à l'exutoire concernent seulement l'eau filtrée, alors que sur la Morcille les teneurs en produits phytosanitaires des matières en suspension (MES) ont aussi été mesurées lorsque les quantités de MES le permettaient. Des informations sur la distribution des produits entre les fractions particulaire et dissoute ont aussi été obtenues. Des résultats antérieurs de prélèvements ponctuels, effectués en période d'orage, dans d'autres affluents de l'Ardières (bassin versant de 180 km²) et dans

la Mauvaise, tout deux affluents de la Saône, sont aussi présentés dans cet article.

Principaux résultats de mesures

Le suivi chronique montre un niveau de concentration de base en atrazine (herbicide de la famille des triazines) qui varie entre moins de 0,05 µg/l et 1,5 µg/l sur le Ruiné et entre moins de 0,07 µg/l et 0,4 µg/l sur le Coët Dan (Cann, 1994). Sur la Morcille les échantillons cumulés hebdomadaires indiquent des niveaux de concentrations plus élevés, mais ils englobent des prélèvements en crue (Munoz, 1991)...

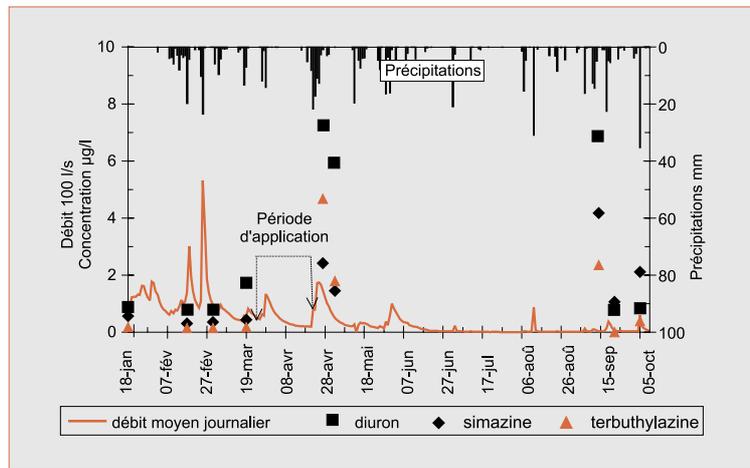
L'étude des crues sur les trois sites met en évidence que les valeurs les plus élevées sont détectées le plus souvent pendant les périodes de traitement. Elles peuvent dépasser le niveau de base de plusieurs ordres de grandeur et diminuent ensuite assez rapidement au cours de l'année. Toutefois, sur le bassin de la Morcille, les concentrations détectées durant les faibles crues de l'automne 1995 sont voisines de celles mesurées au printemps, en période d'application. Néanmoins, les quantités totales transférées sont nettement plus faibles en raison du moindre débit observé (figure 1).

D'autre part, dans le cas du Ruiné, la diminution des concentrations et des taux de transfert en atrazine au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la période d'application est accompagnée d'une augmentation des pertes en produits de dégradation que sont la déséthyl-atrazine et la désisopropyl-atrazine, dont le niveau de concentration peut atteindre le microgramme par litre en automne.

On peut aussi noter à la figure 2 que d'une année à l'autre, les concentrations maximales observées varient considérablement en fonction des conditions hydrologiques, de la période écoulée entre l'application et le premier événement pluvieux et des doses appliquées.

Il en est de même pour les taux de transfert annuels, qui varient en général de l'ordre de 0,1 % à 0,6 % de la dose appliquée, selon le produit et l'année. Le suivi pluriannuel du Ruiné met en évidence le rôle déterminant des conditions climatiques pendant la période d'application sur les taux de transfert à l'exutoire du bassin (tableau 2), mais ce n'est évidemment pas le seul facteur explicatif, surtout pour les produits les plus persistants.

Figure 1. – Débits et concentrations en produits observés sur la Morcille en 1995.



Les résultats sur le bassin du Coët Dan permettent d'obtenir des profils de concentration au cours d'une crue en relation avec la hauteur d'eau. Ils montrent une augmentation rapide des concentrations pendant la crue, puis une diminution plus lente jusqu'au niveau de base (figure 3).

De plus, il n'est pas rare que le pic de débit et le pic de concentration ne soient pas simultanés, surtout au cours des crues d'automne. De ces observations on peut conclure que même dans ce dernier cas où l'échantillonnage est fractionné et asservi à la hauteur d'eau, il n'est pas sûr que le pic de concentration soit observé à chaque fois...

Les suivis sur le site de l'Ardières ont permis d'obtenir des informations sur la distribution des produits entre les fractions particulaire et dissoute durant le transfert dans les cours d'eau. On observe que la plupart des produits analysés se répartissent à plus de 50 % dans la fraction liquide.

Les cas où la fraction solide contient plus de 50 % de produit correspondent à des substances très peu solubles (ex. : bromopropylate) et à des teneurs en MES supérieures à 2 g/l. Ceci apparaîtrait comme un point positif dans la mesure où cette pollution pourrait être retenue dans des bacs de décantation. Cependant, plusieurs observations en limitent l'intérêt : tout d'abord, il n'est pas sûr que ces produits ne se désorbent pas, mais plus lentement que les produits plus solubles, d'autre part, les phytosanitaires se fixent de préférence sur les particules fines, qui sont aussi celles qui sont les moins bien retenues dans les bacs.

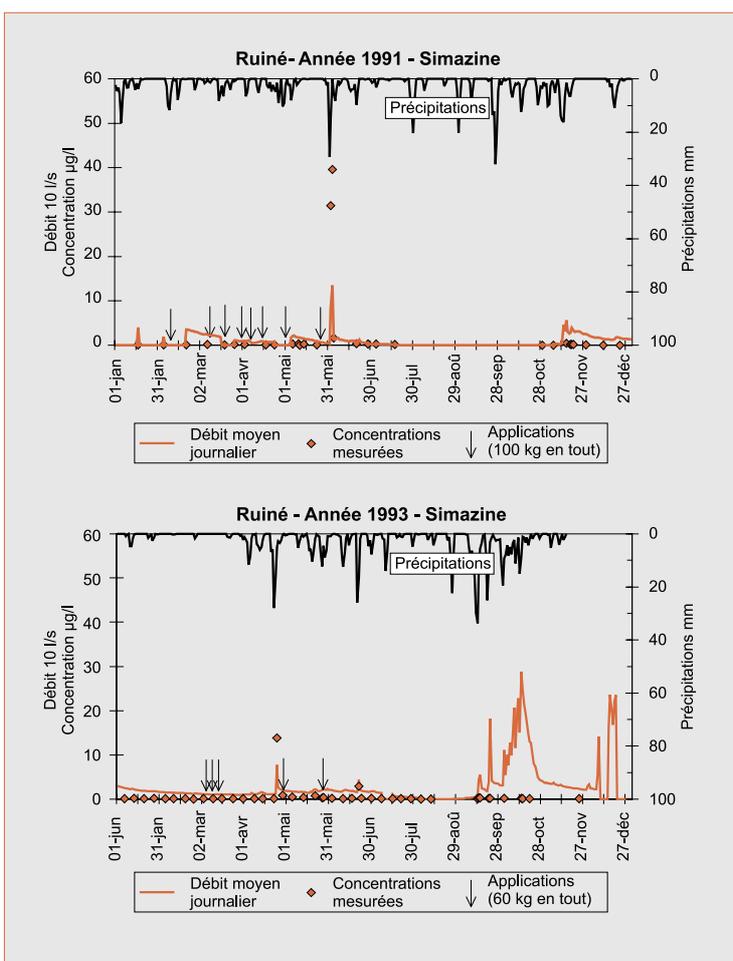
Le calcul du coefficient de distribution entre les fractions particulaire et dissoute conduit à des chiffres nettement au-dessus des valeurs standards mesurées sur des suspensions de sol par la méthode normalisée en pots de l'OCDE (ligne directrice OCDE 106 pour les essais de produits chimiques).

Afin d'étudier cette distribution dans des situations mieux contrôlées et permettant d'approcher les conditions du ruissellement, un dispositif de simulation de pluie a été mis en œuvre sur du sol de l'Ardières.

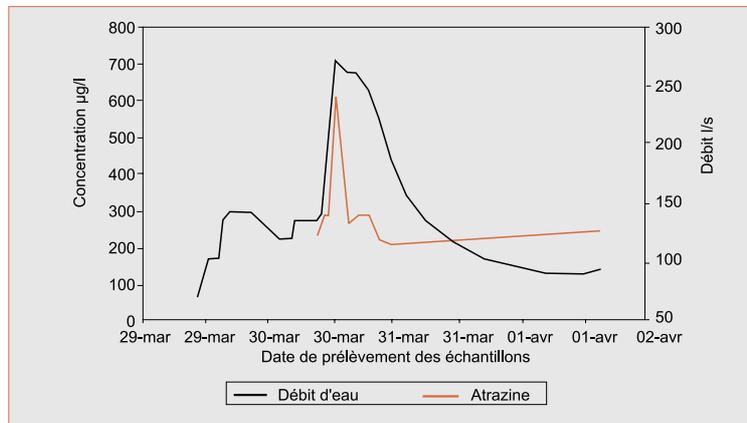
L'expérience consiste à générer une pluie artificielle au dessus d'une microparcelle contenant de la terre rapportée sur laquelle une quantité connue de produit a été appliquée. Le ruissellement est recueilli et le coefficient de distribution des produits entre l'eau et les MES est mesuré.

Année	Précipitations totales (mm)	Quantités totales appliquées (kg)	Taux de transfert annuel en atrazine (%)
1991	736 (21 %*)	125	0,15
1992	796 (15 %*)	89	0,10
1993	1 198 (14 %*)	100	0,29
1994	947 (25 %*)	96	0,54
1995	225 (24 %*)	143	0,10

▲ Tableau 2. – Mise en correspondance des hauteurs de précipitations cumulées annuelles, des quantités totales appliquées et des taux de transfert annuels en atrazine, par rapport à l'application. L'astérisque * indique le pourcentage de pluie répartie sur la période d'application.



▲ Figure 2. – Evolution des concentrations en simazine sur le bassin du Ruiné.



▲ Figure 3. – Variation des concentrations en atrazine au cours de la crue du 29 mars 1992 sur le Coët Dan (d'après Jonvel, 1992).

Les résultats montrent que dans ces conditions, le coefficient de distribution est aussi très élevé et du même ordre de grandeur que celui observé dans le cours d'eau en période d'orage (tableau 3).

Plusieurs hypothèses concourent à expliquer ce phénomène

Comme nous l'avons déjà évoqué plus haut, les produits phytosanitaires ont une plus grande affinité pour les particules fines et pour la matière organique. Or, l'érosion privilégie le départ des particules de surface les plus légères et les moins cohésives ; de même, durant le transport, s'effec-

tue un dépôt préférentiel des particules les plus grossières lors du ralentissement de la vitesse du ruissellement. Ainsi, les matériaux érodés tendent à être plus riches en éléments fins et en matière organique que le sol en place, d'où une plus grande capacité d'adsorption (Palis *et al.*, 1990 a et b). Ghadiri et Rose, 1991 a et b, proposent un autre facteur explicatif en montrant que les gouttes de pluie peuvent provoquer le « décapage » de surface des agrégats de terre stables, générant ainsi l'apparition de très fines particules extraites de la couche périphérique des agrégats, où la concentration en produit adsorbé est souvent la plus élevée.

Quoi qu'il en soit, ce coefficient est un paramètre sensible des modèles de transfert existants et ces résultats montrent qu'il doit donc être évalué avec précaution.

Essai de modélisation

Il existe aujourd'hui un certain nombre de modèles relatifs au devenir des produits phytosanitaires dans l'environnement. Chacun a été conçu dans un objectif précis et correspond à une utilisation spécifique. On peut par exemple distinguer :

- des modèles de recherche, conçus dans l'objectif d'apporter une meilleure compréhension des processus et qui tentent une représentation relative fine des phénomènes ;

Tableau 3. – Valeurs moyennes du coefficient de distribution Kd de plusieurs produits évalués dans différentes conditions.

	Méthode OCDE (Gouy, 1993)	Simulation de laboratoire (Gouy, 1993)	Simulation de plein champ (Munoz, 1991)	Echantillonnage en période d'orages (Munoz, 1991)
Matière active	Coefficient Kd ml/g	Kd moyen sur les MES totales ml/g	Kd moyen sur les MES < 50 µm ml/g	Kd moyen sur les MES < 50 µm sur 5 rivières* ml/g
Lindane	38,4	275	-	-
Méthidathion	3,3	133	159	187
Fénitrothion	13 (!)	-	1455	3214
Tétradifon	-	-	3318	-
Bromopropylate	24 (!)	-	687	676
Atrazine	2,9 (!)	100	-	-
Simazine	2,4 (!)	460	-	259
Diuron	5,4 (!)	-	721	380
Captafol	-	-	-	61

(!) lu dans la littérature

* L'Ardières, 3 affluents et la Mauvaise.

- des modèles de gestion, moins fins que les premiers, qui ont pour objectif d'apporter une aide à l'action en matière d'utilisation des produits et d'aménagement ;
- des modèles de « *screening* » ou de tri, souvent fondés sur des fonctions simplifiées, qui ont pour but d'apporter des informations à un premier niveau de classement des substances ou de différents scénarios agro-pédo-climatiques.

La plupart des modèles existants ont été élaborés au niveau de la parcelle agricole. Toutefois, de par leur nature conceptuelle en réservoirs superposés, certains modèles ont vu étendre leur utilisation aux petits bassins versants (GLEAMS : Leonard *et al.*, 1990 ; ANSWERS : Beasley *et al.*, 1991...). Plus récemment, on peut aussi citer les travaux de couplage du modèle pluie-débit GR4 (Edijatno, 1991) avec une fonction de transfert de l'atrazine à l'exutoire du bassin du Grand Morin (757 km²) (Rogier, 1993). L'inconvénient de cette dernière approche est qu'elle est difficilement transposable à un autre site et à d'autres produits. En parallèle, des modèles plus sophistiqués proposent une représentation maillée de l'espace comme SHE (Abbott *et al.*, 1986) et ses successeurs. Cependant, ces modèles sont souvent lourds à mettre en œuvre et leur capacité à être utilisés comme outils de prévision ou d'aménagement de bassin n'est pas encore validée.

Dans le cadre de cette étude, nous nous sommes orientés vers un modèle qui ne soit pas trop lourd et qui prenne en compte l'influence des facteurs climat/sol/culture sur le transfert des produits vers les eaux de surface. C'est le cas du GLEAMS. Ce modèle est global et simule le transfert des produits au cours du ruissellement, en solution et fixés sur les particules érodées. Il est constitué de trois composantes que l'on notera : « hydrologie », « érosion » et « chimie ». La composante « hydrologie » est fondée sur la méthode du *Soil Conservation Service* du département de l'agriculture des États-Unis, c'est-à-dire une fonction de production qui calcule les volumes journaliers ruisselés à partir des données de pluie et d'un paramètre de rétention de l'eau dans le sol appelé *curve number* (USDA, 1972). Ce dernier est estimé grâce à des tableaux de référence élaborés à partir de séries de mesures réalisées aux États-Unis, pour différents types de sols, d'utilisation des terres et d'aménagement.

La composante « érosion » repose sur une forme modifiée de l'équation universelle de perte des sols (MUSLE) qui calcule l'érosion moyenne sur un événement en fonction de facteurs d'érosivité de la pluie, d'érodibilité du sol, de pente, de culture et d'aménagement (Wischmeier *et al.*, 1978). Cette formule a également été établie de façon empirique à partir de séries d'observations conduites selon les conditions des États-Unis.

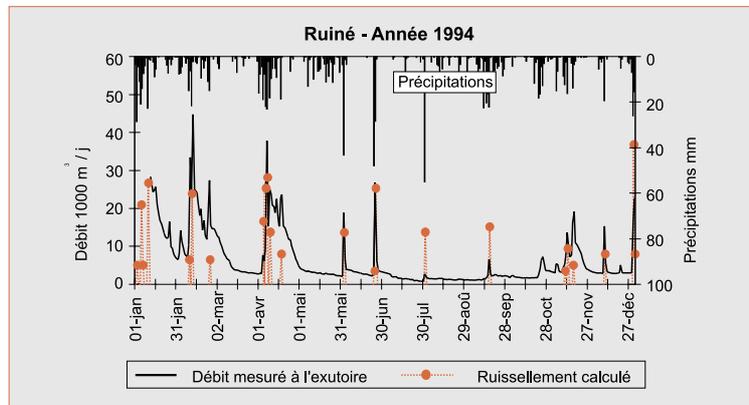
La composante « chimie » relative aux produits phytosanitaires considère que les produits sont entraînés par lavage foliaire, lessivage ou ruissellement. La fonction de lessivage est basée sur l'équation de conservation de la masse, où le terme de diffusion/dispersion est négligé. Le devenir du produit repose sur la description de sa mobilité et de sa dégradation représentées respectivement par une fonction de distribution linéaire où apparaît le coefficient de distribution K_d et par une cinétique de dégradation globale d'ordre un. La volatilisation n'est pas considérée.

Comme le coefficient de distribution est un paramètre sensible et que nous avons vu précédemment sa grande variabilité en fonction des méthodes d'acquisition, la modélisation a été réalisée en utilisant la valeur de K_d donnée par les mesures en pots pour le calcul de l'infiltration des produits et la valeur de K_d observée sur les sites (par simulation de pluie ou mesures en période d'orage) pour le calcul des quantités ruisselées.

Le modèle a été mis en œuvre sur les bassins du Ruiné (années 1991 à 1994) et de la Morcille (année 1995). Quelques résultats sont illustrés par les figures 4 à 10. Il est important de préciser que les débits et concentrations calculés ne sont pas directement comparables aux débits et concentrations observés à l'exutoire des bassins, du fait que le modèle ne simule que la composante de ruissellement du transfert.

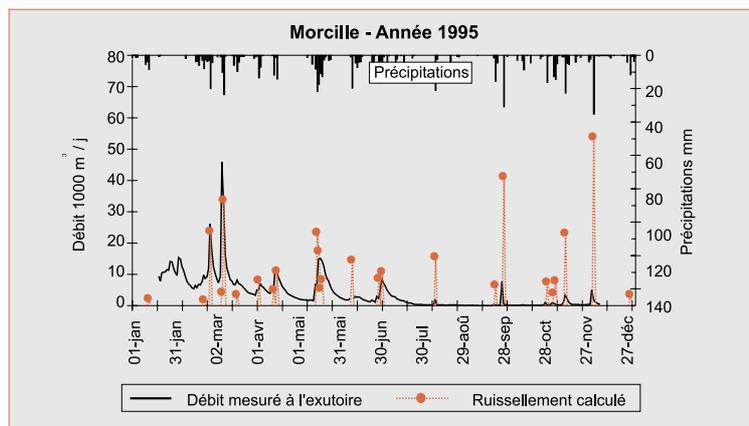
■ **Résultats hydrologiques**

Sur le Ruiné, les années 1991 à 1993 ont été relativement sèches et le cours d'eau s'est tari temporairement. Pour cette période, le modèle ne donne pas de résultats exploitables (Lonjaret, 1995). Pour 1994, on constate que les pics de ruissellement calculés par le modèle correspondent à des pointes de débit observées (figure 4). Il en est de même sur la Morcille pour l'année 1995 (figure 5). Toutefois, dans les deux cas, les débits calculés en été



▲ Figure 4. – Comparaison entre ruissellement calculé et débit mesuré à l'exutoire du bassin du Ruiné.

Figure 5. – Comparaison entre ruissellement calculé et débit mesuré à l'exutoire du bassin de la Morcille. Le 14 mai 1995 les débits n'ont pu être relevés sur la Morcille.



et en automne pour la Morcille, sont nettement surestimés. On note que ces périodes sont marquées par des étiages où le débit approche 9 l/s pour le Ruiné et 0,2 à 2,5 l/s pour la Morcille. D'autre part, les pics de ruissellement donnés par le GLEAMS sont concentrés en tout début des crues observées, qui elles, au contraire, s'étalent au cours du temps. Ceci peut être relié au fait que le modèle ne prend pas en compte de fonction de transfert sur le bassin.

■ Résultats relatifs aux produits phytosanitaires

Seules les informations relatives aux produits les plus mobiles sur l'année considérée sont présen-

tées. Il s'agit en l'occurrence de l'atrazine et de la simazine pour le Ruiné et du diuron sur la Morcille (figures 6 à 9).

On constate que les pics importants sont reproduits par le modèle avec un facteur d'erreur variable. Par contre, des pics sont modélisés mi-avril pour l'atrazine, alors que l'on n'a pas d'observations correspondantes...

Indépendamment d'autres sources d'erreur, il faut noter que le modèle ne prend pas en compte l'effet de dilution du produit dans le cours d'eau, ce facteur jouant plus ou moins en fonction du débit.

Dans le cas de la Morcille, on peut faire plusieurs autres remarques qui sont illustrées ici pour le diuron, mais qui sont aussi valables pour la simazine et la terbuthylazine.

Tout d'abord, les dates et taux d'application ont été déduits d'une enquête relative à l'année 1993 (Demeillez, 1994), d'où une incertitude à ce niveau.

Lors de la crue qui commence le 22 avril, la quantité de produit calculée est concentrée sur deux pics en début de crue, comme on l'a aussi remarqué pour le débit calculé (figure 8). Le modèle simule donc une « décharge » de produit en tout début de crue, alors que les observations montrent un décalage dans le temps. Pics observés et simulés ne coïncident donc pas.

La crue du 14 mai n'a pas été échantillonnée, donc il n'y a pas d'observation correspondante.

On remarque aussi que le modèle ne reproduit pas du tout le pic observé mi-septembre. On peut mettre en cause une mauvaise appréciation de la dégradation dans les conditions du milieu viticole concerné (sol appauvri en matière organique et agents dégradants ?). On peut aussi supposer que les produits se sont trouvés momentanément piégés dans le sol et ont été relargués au cours des crues d'automne. Mais ces hypothèses demandent à être vérifiées.

Afin de montrer l'importance du choix des valeurs des paramètres sensibles, la même simulation a été réalisée en n'utilisant que la valeur du coefficient K_d donnée par les mesures en pots, selon la méthode normalisée de l'OCDE. La figure 9 indique alors les écarts obtenus entre valeurs calculées et valeurs observées.

On observe alors une très forte surestimation du modèle, allant jusqu'à 10 fois les valeurs observées...

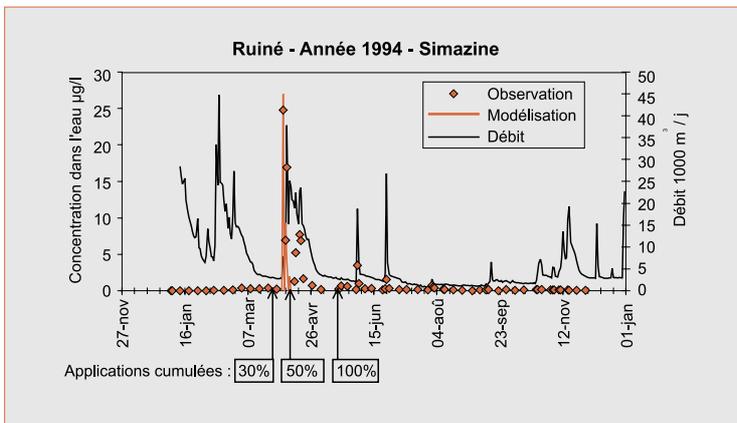
Des résultats similaires ont été obtenus pour la simazine et la terbuthylazine sur la Morcille.

Le modèle GLEAMS appliqué aux deux petits bassins versants du Ruiné et de la Morcille ne permet donc pas de reproduire l'ensemble des pics de concentration observés. Ceci peut être lié en partie à sa structure globale et au fait qu'il n'intègre pas des voies de transfert comme les écoulements subsuperficiels ou les remontées de nappes. D'autre part, en période d'étiage il surestime largement les volumes d'eau ruisselés. Enfin, il ne prend pas en compte la formation de résidus liés dont on connaît encore peu les mécanismes de relargage. On ne peut donc pas attendre d'un modèle de ce type de fournir des chroniques de concentrations exactes. Par contre, dans les exemples traités, il reproduit bien l'ordre de mobilité des produits aussi bien selon les masses totales transférées que selon les pics de concentrations (figure 10). Il permet donc d'accéder à un classement qualitatif des molécules selon leur potentialité de transfert dans le ruissellement dans des conditions hydrologiques suffisamment pluvieuses. On remarque que la simazine est beaucoup plus mobile sur le bassin versant du Ruiné que sur la Morcille. Ceci ne peut être lié à l'écart d'application, qui est très faible, mais plutôt au fait que le pic observé mi-avril sur le Ruiné est tout à fait exceptionnel et a été à l'origine d'un transfert « catastrophique » par rapport à la moyenne sur les autres années suivies.

Le GLEAMS pourrait donc constituer un outil d'aide au diagnostic à partir de scénarios agro-pédoclimatiques représentatifs du site d'étude, pour la sélection de produits plus ou moins mobiles dans le ruissellement et l'identification de zones à plus ou moins fort potentiel de ruissellement des produits.

Conclusion

Le suivi du transfert des produits phytosanitaires sur les bassins versants montre que les quantités parvenant à la rivière sont en général très faibles (moins de 1 % de l'application). Une bonne évaluation de l'exposition implique donc de déterminer au mieux des éléments traces dans un milieu complexe où les méthodes d'échantillonnage et de



▲ Figure 6. – Comparaison entre les concentrations en solution calculées et observées pour la simazine sur le Ruiné.

Figure 7. – Comparaison entre les concentrations en solution calculées et observées pour l'atrazine sur le Ruiné. ▼

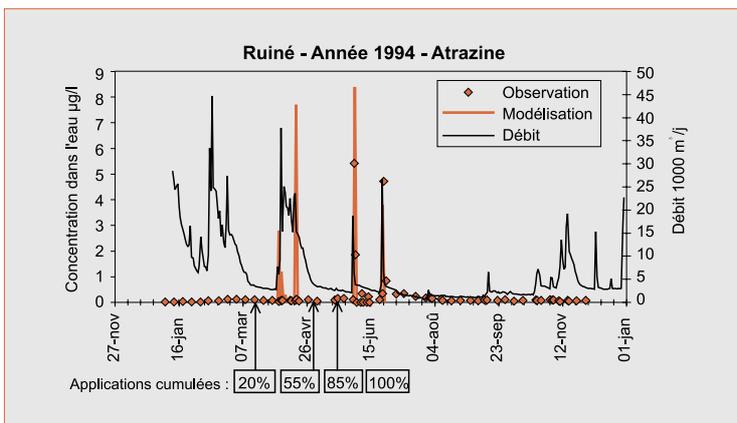
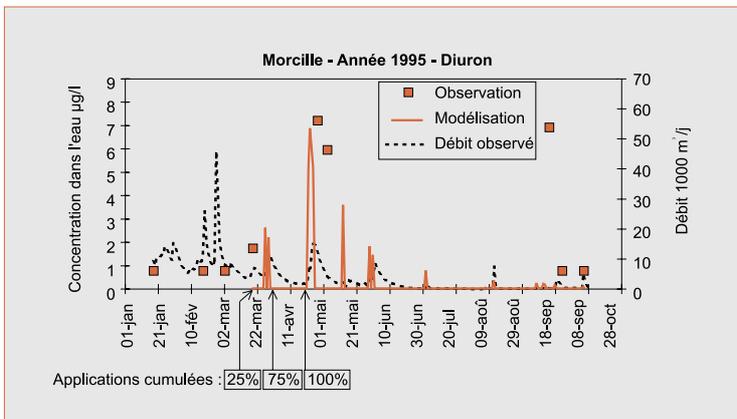
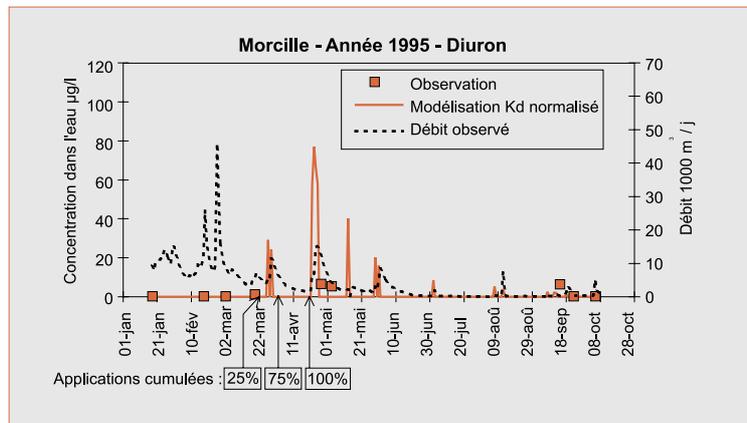
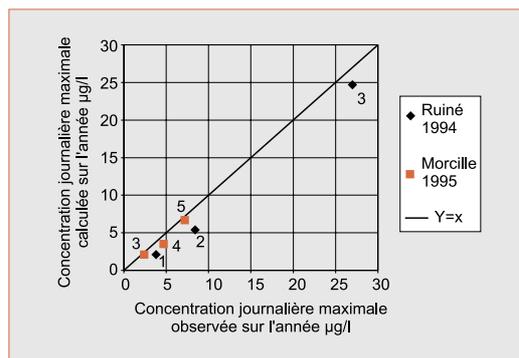


Figure 8. – Comparaison entre les concentrations totales en diuron calculées et observées sur la Morcille. ▼





▲ Figure 9. – Comparaison entre les concentrations totales en diuron observées sur la Morcille et les concentrations calculées en utilisant seulement la valeur du Kd obtenue dans des conditions normalisées.



▲ Figure 10. – Comparaison entre les concentrations journalières maximales annuelles, observées et calculées sur les bassins du Ruiné et de la Morcille (les chiffres reportent aux produits : 1 : isoproturon, 2 : atrazine, 3 : simazine, 4 : terbuthylazine, 5 : diuron).

traitement de l'échantillon ont une influence considérable sur la représentativité et la qualité de la mesure finale. D'autre part, il faut garder à l'esprit que les méthodes d'analyse sont spécifiques des produits recherchés et peuvent en laisser d'autres inaperçus. Le suivi sur le bassin du Ruiné souligne l'importance du suivi des métabolites de l'atrazine, surtout en automne et en hiver.

Par ailleurs, cette étude a permis de déterminer la distribution des produits entre les fractions particulière et dissoute dans des conditions variables et a montré la très grande variabilité du coefficient de distribution. Ces différentes considérations ont

une implication directe sur la modélisation des transferts. Tout d'abord, étant donnés les faibles niveaux de concentration observés et leurs incertitudes, il semble illusoire de vouloir prévoir des concentrations exactes mais plutôt des ordres de grandeur. Les modèles actuels, souvent globaux et reposant sur des lois empiriques, sont d'avantage à considérer comme des outils de classement de produits et de situations que comme des outils de prévision des concentrations. En outre, la validité du classement nécessite une estimation méticuleuse des valeurs et paramètres d'entrée sensibles, comme on l'a vu pour le coefficient de distribution.

Le type de modèle présenté est par contre difficilement utilisable dans un objectif d'aménagement de bassin. En effet, il ne prend pas en compte les chemins de circulation de l'eau (aussi bien superficiels que subsuperficiels) ni les obstacles (haies) ou aménagements (fossés, buttes, bandes filtrantes...).

Ainsi, cette étude soulève plusieurs points essentiels pour le développement de méthodes adaptées au contrôle des pollutions diffuses par les produits phytosanitaires.

Tout d'abord, elle met en avant le besoin de sites d'observation variés pour, d'une part, mieux caractériser les facteurs clés du transfert, et d'autre part, orienter et soutenir le développement d'outils pertinents.

Il apparaît fondamental, en particulier, de proposer des méthodes pratiques pour le diagnostic des origines et des voies de circulation des polluants sur les bassins versants. A cette fin, il conviendrait de développer et de tester l'apport de modèles distribués d'aménagement et de prévision (Carlier *et al.*, 1996). Une telle démarche doit évidemment s'appuyer sur des outils de télédétection et de cartographie adaptés.

De plus, il serait nécessaire de mieux définir la notion d'exposition des milieux vis-à-vis de la pollution, en terme d'effet écotoxicologique, afin d'aboutir à une évaluation de risque.

Pour répondre, au moins en partie, à ces besoins, un projet fédérateur du Cemagref a démarré début 1997 sur le bassin versant du Don, en Loire Atlantique. Il est caractérisé par une activité agricole dominante, des sols peu profonds à tendance hydromorphe et un réseau hydrographique dense,

marqué par la présence de nombreux fossés. Sur ce site est développée une démarche de diagnostic relativement complet, intégrant non seulement l'aspect phytosanitaires mais aussi la pollution par les nitrates et la gestion quantitative de l'eau sur le bassin. Les méthodologies et résultats déjà acquis

sur les bassins gérés par le Cemagref serviront de base pour le développement d'une méthode plus générale et la proposition de scénarios d'action à l'échelle d'un territoire pour une meilleure gestion de l'eau. □

Résumé

Cet article réunit des observations relatives au transfert des produits phytosanitaires sur trois bassins versants de 4, 6 et 12 km² situés respectivement en Charente, dans le Rhône et le Morbihan. Il apparaît que les concentrations maximales sont souvent liées aux premiers événements pluvieux majeurs survenant après l'application et qu'elles sont très variables d'une année à l'autre. De plus, les taux de transfert annuels dépassent rarement 1% de la dose appliquée. Un essai d'application du modèle global GLEAMS (*Ground water Loading Effects of Agricultural Management Systems*) montre que celui-ci n'est pas adapté à une démarche de prévision. Ce type de modèle doit plutôt être envisagé comme un outil de classement des produits selon leur mobilité relative dans le ruissellement, pour des scénarios donnés. Par ailleurs, l'utilisation de(s) ou du modèle(s) implique de définir de façon précise les conditions dans lesquelles il est appliqué, notamment au niveau du choix des paramètres sensibles.

Abstract

This article provides information on pesticide transfer in three watersheds of 4 to 12 km² in France. It shows that the maximum concentrations are often related to the first main rainfall events occurring after the application and that they can vary from year to year. The amount of pesticide measured at the outlet was less than 1% of the application. The GLEAMS (*Ground water Loading Effects of Agricultural Management Systems*) model was applied to simulate pesticide mobility on small watersheds. The results show that this kind of model can't predict accurate concentrations but could be used as a screening model to classify pesticide according to their mobility in runoff, for given scenarios. A particular attention should be given to the selection of the sensitive parameters.

Bibliographie

- ABBOTT, M.-B., BATHURST, J., CUNGE, J.-A., O'CONNELL, P.-E., RASMUSSEN, J., 1986. An introduction to the european hydrological system - Système Hydrologique Européen, SHE, 1 : Hystory and philosophy of a physically-based, distributed modelling system. 2 : Structure of a physically-based, distributed modelling system. *Journal of Hydrology*, 87 : 45-77.
- BEASLEY, D.-B., *et al.*, 1991. Adapting the ANSWERS model for water quality planning and research on agricultural watersheds in Chernozem zone of the USSR. Work conducted as part of project 02.02.11 «River Water Quality Plannig and Management» of the joint US-USSR Agreement on cooperation in the field of environmental protection. Tifton, Georgia, USA. 15 p.
- CANN, C., 1994. Atrazine transfer from a rural catchment to water, dans « Environmental behaviour of pesticides and regulatory aspects », *Actes du 5^e Congrès du COST66*, Bruxelles, 26-29 Mai 1994, p. 313-317.
- CALVET, R., GOUY, V., GAILLARDON, P., BELAMIE, R., 1997. Distribution des molécules pesticides entre les phases solides et liquides du sol. Signification du coefficient de distribution. Séminaire national Hydrosystèmes - Groupe français des pesticides : produits phytosanitaires processus de transfert et modélisation dans les bassins versants, Nancy, 22-23 mai 1996. Cemagref Editions, Antony, p. 104-115.
- CARLUER, N., GOUY, V., GRIL, J.-J., 1996. Contamination des eaux de surface par les produits phytosanitaires : apport de la modélisation, *Ingénieries-EAT*, n°6, juin 1996.

- DEMEILLEZ, M., 1994. *Enquête sur l'utilisation des produits phytosanitaires dans un bassin versant viticole du Beaujolais*. Institut Supérieur Européen des métiers de l'environnement/Cemagref de Lyon, 35 p.
- EDIJATNO, 1991. *Mise au point d'un modèle élémentaire pluie-débit au pas de temps journalier*. Thèse de doctorat Sciences et techniques de l'Eau, Cemagref Antony.
- GHADIRI, H., ROSE, C.-W., 1991 - a. Soil processes and chemical transport, sorbed chemical transport in overland flow : I. A nutrient and pesticide enrichment mechanism. *J. Environ. Qual.*, n°20, p. 628-633.
- GHADIRI, H., ROSE, C.-W., 1991 - b. Soil processes and chemical transport, sorbed chemical transport in overland flow : II. Enrichment ratio variation with erosion processes. *J. Environ. Qual.*, n°20, p. 634-641.
- GOUY, V., 1993. *Contribution de la modélisation à la simulation du transfert des produits phytosanitaires de la parcelle agricole vers les eaux superficielles*. Thèse de doctorat de l'université Louis Pasteur/ENITRTS Strasbourg et Cemagref, Lyon, 350 p.
- HÉNIN, S., 1980. *Activités agricoles et qualité des eaux*, Tome II. Ministère de l'Environnement et du Cadre de Vie, ministère de l'Agriculture, 294 p.
- JONVEL, S., 1992. *Transferts de pesticides vers les eaux de surface en milieu rural* (Etude menée sur le bassin versant expérimental du Coët-Dan dans le Morbihan) - Mémoire d'ingénieur ENITRTS-Cemagref, Déchets Solides, Rennes, 92 p. + annexes.
- LARGUIER, M., MICHON, P., 1994. Un aperçu sur l'évolution des produits phytosanitaires, *BTT* 17-18-19 Juillet/Décembre : 12-21.
- LEONARD, R.-A., KNISEL, W.-G., DAVIS, M., 1990. *The GLEAMS model - A tool for evaluating agrochemical ground-water loading as affected by chemistry, soils, climate and management. Transferring models to users*, American Water Resources Association, November 1990 : 187-197.
- LONJARET, E., 1995. *Pollution des eaux de surface par les produits phytosanitaires : évaluation comparée des performances d'un modèle global et d'un modèle distribué à l'échelle d'un petit bassin versant agricole*. DEA national d'hydrologie, filière gestion et valorisation de l'eau, Engref-Cemagref, 130 p.
- MUNOZ, J.-F., 1991. *Méthodologie d'étude des produits phytosanitaires : étude d'un bassin versant viticole : l'Ardières (Beaujolais)*. *Mise au point de méthodes analytiques de pesticides*. Thèse de doctorat de l'Université Claude Bernard - Lyon I, Institut de chimie et biologie moléculaire, Cemagref, Lyon, 175 p.
- PALIS, R.-G., *et al.*, 1990 - a. Soil erosion processes and nutrient loss. I. The interpretation of enrichment ratio and nutrient loss in runoff sediment. *Aust. J. Soil Res.*, n°28, p. 623-639.
- PALIS, R.-G., *et al.*, 1990 - b. Soil erosion processes and nutrient loss. II. The effect of surface contact cover and erosion processes on enrichment ratio and nitrogen loss in eroded sediment. *Aust. J. Soil Res.*, n°28, p. 641-658.
- Partenaires ISMAP Français, (CGEaux, LHF, Ciba Geigy, Grande Paroisse, Rhône Poulenc, ITCF, Cemagref). 1997 - a. Rapport final du groupe de travail sites tests : site de l'Ardières, 58 p.
- Partenaires ISMAP Français, (CGEaux, LHF, Ciba Geigy, Grande Paroisse, Rhône Poulenc, ITCF, Cemagref). 1997 - b. Rapport final du groupe de travail sites tests : site du Ruiné, 45 p.
- ROGIER, P., 1993. *De la modélisation des produits phytosanitaires dans le Grand Morin*, Rapport de DEA Sciences et Techniques de l'Environnement. Engref, 44 p.
- USDA, 1972. *National engineering handbook : section 4, Hydrology*. Washington DC, US Department of Agriculture, Soil Conservation Service, 548 p.
- WAUCHOPE, R.-D., 1978. The pesticide content of surface water draining from agricultural fields - A review. *J. Environ. Qual.*, vol 7, n°4, p. 459-471.
- WISCHMEIER, W.-H., SMITH, D.-D., 1978. Predicting rainfall erosion losses - *A guide to Conservation Planning Agr. Handbook*, n° 537, U.S. Dept. of Agr., Sci. and Education Administration, 58 p.