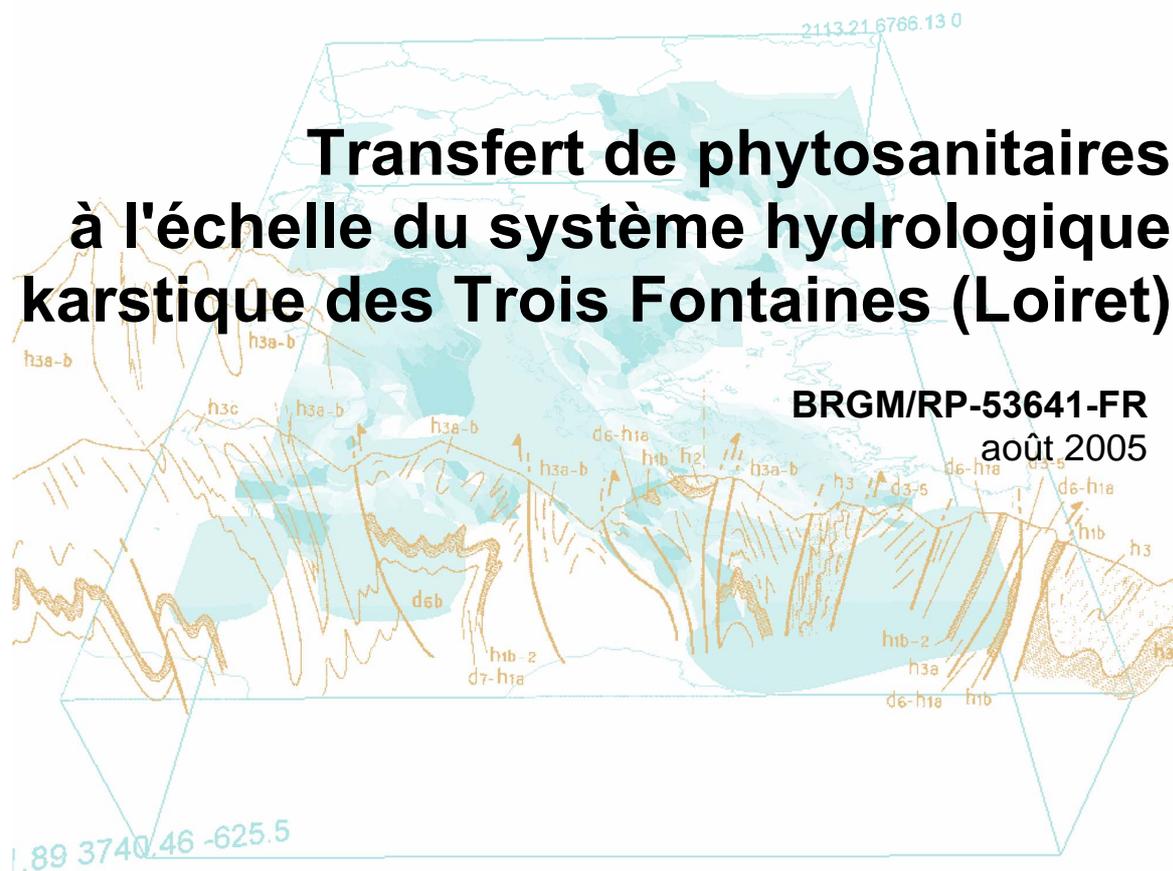




Transfert de phytosanitaires à l'échelle du système hydrologique karstique des Trois Fontaines (Loiret)



Transfert de phytosanitaires à l'échelle du système hydrologique karstique des Trois Fontaines (Loiret)

Rapport final

BRGM/RP-53641-FR
août 2005

Étude réalisée dans le cadre du soutien aux programmes de la convention
« Recherche » du protocole de collaboration Région Centre - BRGM

C. Mouvet, N. Baran, M. Normand, W. Fialkiewicz, A. Gutierrez

Vérificateur :

Nom : D. Poitrinal

Date : août 2005

Signature :

Approbateur :

Nom : D. Poitrinal

Date : août 2005

Signature :

Le système de management de la qualité du BRGM est certifié AFAQ ISO 9001:2000.



Mots clés : Phytosanitaires, Modélisation, Hydrodynamique, Transport, Source des Trois Fontaines, Loiret.

En bibliographie, ce rapport sera cité de la façon suivante :

Mouvet C., Baran, N., Normand M., Fialkiewicz W., Gutierrez A. (2005) - Transfert de phytosanitaires à l'échelle du système hydrologique karstique des Trois Fontaines (Loiret). BRGM/RP-53641-FR, 66 p., 38 ill.

Synthèse

Dans le cadre de la convention de recherche liant la région Centre et le BRGM, le projet de recherche « Pollutions diffuses » a bénéficié d'un appui financier qui a permis la réalisation de travaux de terrain et de modélisation sur le système hydrologique karstique des Trois Fontaines. Ce rapport présente l'essentiel des résultats obtenus sur la durée totale de la convention 2001-2003.

Situé dans l'Est du département du Loiret, le système hydrologique karstique des Trois Fontaines a une superficie d'environ 50 km². Développé dans la craie séno-turonienne, il présente un intérêt régional et national, d'autres systèmes de ce type ayant été décrits dans l'Est du Loiret et en Normandie. Le système des Trois Fontaines se trouve dans une zone à forte vocation agricole orientée vers la polyculture ; les céréales occupent un peu plus de 50 % des surfaces cultivées, le maïs, le colza, le tournesol et la jachère occupent environ 10 % chacun. Cette forte pression anthropique entraîne la présence, dans l'eau de la source utilisée pour l'alimentation en eau potable, de phytosanitaires à des concentrations dépassant la directive européenne de 0,1 µg/L par molécule. Les objectifs des travaux menés dans le projet « Pollutions diffuses » ont été d'une part de faire avancer les connaissances sur l'évolution de cette contamination en fonction du temps (travaux de terrain), et d'autre part de procéder à des essais de modélisation hydrodynamique du transport des phytosanitaires depuis le sol jusque dans l'eau souterraine.

Une partie des travaux de terrain a consisté en l'aménagement de la partie aval du système afin de permettre l'acquisition de données sur les débits à l'exutoire. En effet, le seuil en bois, initialement installé par la DIREN Centre en 1988, était fortement endommagé. Les travaux d'aménagement effectués garantissent un nouvel équipement à longue durée de vie (structure en béton et seuil en acier). L'aide financière du Conseil régional a permis en plus l'entretien de l'ouvrage et le recueil, lors de missions régulières de terrain, des données de débits stockées dans une station d'acquisition automatique.

En ce qui concerne la qualité de la nappe, des recherches de phytosanitaires ont été effectuées au BRGM sur des échantillons d'eau prélevés tous les 10 jours par l'exploitant de la source des Trois Fontaines (SAUR). Deux phytosanitaires sont détectés presque systématiquement : l'atrazine (0,05 à 0,10 µg/L) et son principal produit de dégradation, la déséthylatrazine (0,1 à 0,3 µg/L). Une troisième molécule n'apparaît par contre que sporadiquement, l'isoproturon (0,05-0,15 µg/L).

Les travaux de modélisation se sont focalisés sur l'hydrodynamique du système et sur le transport de l'atrazine et l'isoproturon, depuis la surface du sol jusque dans la nappe. Le faible volume de données géologiques -géométrie du système notamment- et hydrogéologiques a constitué une des contraintes importantes lors de la réalisation de l'étude. Si la modélisation de l'hydrodynamique a permis de bien restituer les données observées pour les débits et assez bien les niveaux dans certains puits, les résultats

de la modélisation du transport des phytosanitaires ne peuvent être considérés comme définitifs. Certaines valeurs des paramètres d'adsorption et de dégradation, couplées à des hypothèses sur les zones où sont appliquées les matières actives par les agriculteurs, permettent de simuler l'ordre de grandeur des concentrations observées ; ce résultat est novateur et prometteur dans la perspective d'une gestion optimisée de la ressource en eau souterraine et de l'étude des effets éventuels de modifications des pratiques agricoles. Il doit toutefois être tempéré par le fait que la modélisation donne certains résultats (augmentation régulière du bruit de fond en atrazine, pics de concentrations en atrazine et isoproturon générés chaque année) qui ne correspondent pas aux observations.

Un grand nombre de données est disponible sur le site pilote des Trois Fontaines. Par ailleurs, le contaminant phytosanitaire principal de cette source, l'atrazine, a vu son emploi officiellement interdit depuis avril 2003 ; cette situation offre à l'avenir une occasion unique de suivre et de modéliser, en grandeur réelle, l'effet de cette interdiction sur l'amélioration de la qualité de l'eau de la source, non seulement pour l'atrazine, produit parent, mais aussi son métabolite, la déséthylatrazine.

Sommaire

1. Introduction	11
2. Mesures des débits	13
2.1. INSTALLATION D'UN SEUIL	13
2.2. LES JAUGEAGES AU MOULINET	15
2.3. LES MESURES TOPOGRAPHIQUES	16
2.4. ÉLABORATION DE LA COURBE D'ÉTALONNAGE.....	17
2.5. DONNÉES SUR LES DEBITS PRÉLEVÉS POUR L'ALIMENTATION EN EAU POTABLE.....	19
2.6. RECONSTITUTION DES DÉBITS NATURELS	21
3. Piézométrie	23
3.1. CAMPAGNE DE MESURES PIEZOMETRIQUES	23
4. Transfert des phytosanitaires	27
4.1. PRELEVEMENTS ET DOSAGES	27
4.2. LES CHRONIQUES DE CONCENTRATIONS EN PHYTOSANITAIRES À LA SOURCE	28
4.3. LES CHRONIQUES DE CHIMIE MINERALE	32
5. Modélisation distribuée des transferts d'eau et de phytosanitaires	35
5.1. LE MODÈLE DISTRIBUÉ MARTHE ET LA CONSTRUCTION DU MODÈLE PHYSIQUE	35
5.2. MODÉLISATION DES TRANSFERTS D'EAU DANS LE BASSIN	36
5.2.1. Rappel des travaux réalisés en 2001 et 2002	36
5.2.2. Travaux réalisés en 2003 et 2004	37
5.3. MODÉLISATION DES TRANSFERTS DE PESTICIDES DEPUIS LA SURFACE DES SOLS JUSQUE DANS LA NAPPE.....	44

5.3.1. Occupation du sol, périodes et doses d'application, dispersivité, coefficient d'adsorption, dégradation	44
5.3.2. Simulation du transport de l'atrazine depuis la surface du sol jusque dans la nappe	46
5.3.3. Simulation du transport de l'isoproturon depuis la surface du sol jusque dans la nappe.....	50
5.3.4. Influence de la prise en compte d'une dégradation variable selon la profondeur et de nouvelles valeurs pour la sorption	53
5.3.5. Influence de la localisation des zones où sont supposées se produire les applications d'atrazine.....	57
5.3.6. Synthèse critique des résultats de la modélisation en 3D du transfert de phytosanitaires depuis la surface du sol jusque dans la nappe.....	57
6. Conclusions et perspectives.....	59
7. Bibliographie	63

Liste des illustrations

Illustration 1 - Schéma de localisation de la nouvelle station hydrométrique.	14
Illustration 2 - Le canal Venturi et le seuil vus de l'aval.	14
Illustration 3 - Réalisation d'un jaugeage au micromoulinet.	15
Illustration 4 - Mesures topographiques pour l'établissement d'un profil en travers et le calage du repère de mesure par rapport à la crête du seuil.	16
Illustration 5 - Courbe de tarage complète de la station hydrométrique des sources des Trois Fontaines.....	18
Illustration 6 - Courbe de tarage de basses eaux de la station hydrométrique des sources des Trois Fontaines.	18
Illustration 7 - Débits mensuels et annuels prélevés par la SAUR entre janvier 1995 et octobre 2003.....	20
Illustration 8 - Évolution des débits moyens journaliers pompés dans la source des Trois Fontaines (janvier 1995 à septembre 2003).	20
Illustration 9 - Débits mensuels (10^3 m^3) naturels des sources des Trois Fontaines entre décembre 2000 et novembre 2003, reconstitués à partir des débits influencés et des débits pompés.	21
Illustration 10a - Hydrogramme des débits décennaux reconstitués des sources des Trois Fontaines.....	22

Illustration 10b - Hydrogramme des débits naturels décennaux reconstitués de la source des Trois Fontaines limités à la gamme de mesures non influencées par la Cléry.....	22
Illustration 11 - Évolution du niveau piézométrique au captage de la Bissaugerie.....	23
Illustration 12 - Carte piézométrique établie grâce aux mesures de mars 2003.....	24
Illustration 13 - Différences de niveaux piézométriques (valeurs en mètres données sur la légende à droite de la figure) observées entre mars 2003 et septembre 1990.....	25
Illustration 14 - Teneurs en atrazine, déséthylatrazine et isoproturon aux sources des Trois Fontaines (janvier 2001 à décembre 2003).....	28
Illustration 15 - Évolution des concentrations en chlorure et isoproturon aux sources des Trois Fontaines (septembre 2001 à juillet 2002).....	32
Illustration 16 - Évolution des concentrations en nitrate aux sources des Trois Fontaines (janvier 2001 à décembre 2003).....	33
Illustration 17 - Comparaison des débits observés (obs) et simulés (sim) au niveau des sources des Trois Fontaines entre 1993 et 1998.....	36
Illustration 18 - Comparaison des niveaux observés (obs., axe de gauche) et des niveaux simulés (sim, axe de droite) pour le puits des Grands Buissons.....	37
Illustration 19 - Nouvelle géométrie des zones de perméabilité de la craie dans le modèle 2D utilisé en 2003 (chaque couleur correspond à une zone différente).....	38
Illustration 20 - Comparaison entre débits modélisés (ligne continue) et débits mesurés (points) à la source des Trois Fontaines sur la période 1986-2003 par l'approche 3D telle qu'optimisée à la fin des travaux de 2003.....	40
Illustration 21 - Comparaison entre niveaux piézométriques modélisés (ligne continue) et mesurés (points) au puits de la Bissaugerie sur la période 1986-2003 par l'approche 3D telle qu'optimisée à la fin des travaux de 2003.....	40
Illustration 22 - Comparaison entre niveaux piézométriques modélisés (ligne continue) et mesurés (points) au puits des Grands Buissons sur la période 1986-2003 par l'approche 3D telle qu'optimisée à la fin des travaux de 2003.....	41
Illustration 23 - Valeurs finales prises en compte pour les paramètres hydrodynamiques après les derniers calages manuels du modèle hydrodynamique en 3 dimensions.....	42
Illustration 24 - Comparaison à la source des Trois Fontaines sur la période 1986-2003 entre les débits mesurés (points) et les débits modélisés (lignes continues) par l'approche 3D, soit avec les paramètres hydrodynamiques les mieux calés à la fin des travaux de 2004, soit avec d'autres valeurs précédentes de ces paramètres hydrodynamiques.....	43
Illustration 25 - Comparaison au puits de la Bissaugerie sur la période 1986-2003 entre les niveaux mesurés (points) et les niveaux modélisés (lignes continues) par l'approche 3D, soit avec les paramètres hydrodynamiques les mieux calés à la fin des travaux de 2004, soit avec d'autres valeurs précédentes de ces paramètres hydrodynamiques.....	43

Illustration 26 -	Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en ne prenant en compte que l'adsorption ($pK_d = 1,29$) et uniquement dans les trois premières couches du modèle, soit 1,6 m d'épaisseur.	46
Illustration 27 -	Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en ne prenant en compte que la dégradation ($DT_{50} = 60$ j) et uniquement dans les 3 premières couches du modèle, soit 1,6 m d'épaisseur	47
Illustration 28 -	Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en prenant en compte l'adsorption ($pK_d = 1,29$) et la dégradation ($DT_{50} = 60$ j) uniquement dans les trois premières couches du modèle, soit 1,6 m d'épaisseur.....	47
Illustration 29 -	Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en prenant en compte l'adsorption ($pK_d = 0,7$) et la dégradation ($DT_{50} = 90$ j) dans toutes les couches du modèle et en considérant que l'atrazine n'est appliquée que dans la zone aval (correspondant à 10% de la SAU) mais y compris dans 3 mailles contiguës à la source qui est localisée dans la maille noire	48
Illustration 30 -	Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en prenant en compte l'adsorption ($pK_d = 0,7$) et la dégradation ($DT_{50} = 90$ j) dans toutes les couches du modèle et en considérant que l'atrazine n'est appliquée que dans la zone aval (correspondant à 10% de la SAU) mais avec une seule maille contiguë à la source, cette dernière étant localisée dans la maille noire.....	49
Illustration 31 -	Comparaison entre les concentrations en IPU observées (symboles) et celles modélisées en prenant en compte l'adsorption ($pK_d = 1,13$) et la dégradation ($DT_{50} = 20$ j) dans toutes les couches du modèle physique.....	51
Illustration 32 -	Comparaison entre les concentrations en IPU observées (symboles) et celles modélisées en ne prenant en compte l'adsorption ($pK_d = 1,13$) et la dégradation ($DT_{50} = 20$ j) que jusqu'à 1,6 m de profondeur, soit dans les 3 premières couches du modèle physique.....	51
Illustration 33 -	Comparaison entre les concentrations en IPU observées (symboles) et celles modélisées en prenant en compte la sorption ($pK_d = 0,7$) et la dégradation ($DT_{50} = 32$ j) sur une épaisseur de terrain limitée à 1,6 m de profondeur et en considérant que l'IPU n'est appliqué que dans la zone aval (correspondant à 50 % de la SAU) mais dans toutes les mailles contiguës à la source.	52
Illustration 34 -	Comparaison entre les concentrations en IPU observées (symboles) et celles modélisées en prenant en compte la sorption ($pK_d = 0,7$) et la dégradation ($DT_{50} = 32$ j) sur une épaisseur de terrain limitée à 1,6 m de profondeur et en considérant que l'IPU n'est appliqué que dans la zone aval (correspondant à 50 % de la SAU) mais dans une seule maille contiguë à la source.	52

Illustration 35 - Valeurs de Kd et DT50 de l'isoproturon et l'atrazine à différentes profondeurs obtenues par différentes approches et utilisées pour tester l'influence de la prise en compte de la variation de ces paramètres en fonction de la profondeur.	54
Illustration 36 - Influence, sur les concentrations en atrazine modélisées à la source, du mode de prise en compte de l'évolution de la dégradation selon la profondeur.....	55
Illustration 37 - Influence, sur les concentrations en isoproturon modélisées à la source, du mode de prise en compte de l'évolution de la dégradation selon la profondeur.....	56
Illustration 38 - Influence de la localisation de la zone d'application de l'atrazine (a) sur les concentrations simulées à la source (b), l'évolution de la dégradation en fonction de la profondeur suivant l'approche MACRO_DB.	58

1. Introduction

La contamination des eaux souterraines par les produits phytosanitaires (Ifen, 2003) est devenue une réelle préoccupation des consommateurs, à laquelle les gestionnaires de cette ressource, les acteurs du monde agricole, les décideurs politiques et les scientifiques s'attachent à répondre.

Plusieurs échelles spatiales peuvent être utilisées pour l'étude des transferts de phytosanitaires. Pour les recherches de type fondamental, des systèmes expérimentaux de laboratoire (réacteurs agités, colonnes de sols remaniés) permettent une certaine déglobalisation des paramètres (Dousset *et al.*, 1994, 1995, 1997 ; Frick *et al.*, 1998 ; Gao *et al.*, 1998 ; Moreau-Kervevan et Mouvet, 1998 ; Moreau et Mouvet, 1997 ; Nelson *et al.*, 1998), au détriment bien sûr de la prise en compte de paramètres tels que la variabilité spatiale et les phénomènes hydrodynamiques. Une échelle intermédiaire consiste à prendre en compte, avec plus ou moins de simplification, des phénomènes susceptibles de se rencontrer dans la réalité du terrain (colonnes de sols non remaniés, lysimètres : Dousset *et al.*, 1995 ; Kauffman *et al.*, 1998 ; Klotz *et al.*, 1997). Une autre approche, très intégratrice mais très gourmande en ressources et à l'interprétation mécanistique délicate, est celle des études de terrain à l'échelle des systèmes hydrologiques (Fournol, 1998 ; Welté et Montiel, 1995 ; Baran, 1999). C'est cette dernière approche qui a fait l'objet de recherches sur le transfert de phytosanitaires à l'échelle du système hydrologique karstique des Trois Fontaines, dont les résultats présentés ici reposent sur les fonds de recherche du BRGM et une aide financière de la région Centre dans sa politique d'appui aux programmes de recherche.

Les caractéristiques principales du système hydrogéologique des Trois Fontaines ont été décrites dans divers documents (Lasne, 1992 ; Baran, 1996), y compris ceux remis par le BRGM au service de recherche du Conseil régional Centre (Mouvet *et al.*, 2002 ; Guigues *et al.*, 2004). Pour éviter des redites inutiles, le présent rapport se focalisera donc sur les travaux menés entre début 2000 et début 2004 dans la thématique « Pollutions diffuses ». Ces travaux visaient quatre objectifs principaux qui feront chacun l'objet d'une partie spécifique du rapport.

Le premier objectif est purement hydrologique. Il a permis d'une part, d'améliorer les conditions d'acquisition des données de débit à la source, et d'autre part, de reprendre entièrement l'interprétation des données acquises sur cette source depuis 1995.

Le deuxième objectif est hydrogéologique. Les travaux ont consisté en une campagne piézométrique réalisée à partir de 201 puits dont les niveaux d'eau ont été mesurés dans une période où le niveau moyen était nettement plus élevé que celui des campagnes piézométriques précédentes (Lasne, 1992). Ceci a permis de confirmer les limites hydrogéologiques du bassin et le caractère karstique de l'écoulement des eaux souterraines dans certaines zones.

Le troisième objectif consiste en l'examen détaillé de la contamination par les phytosanitaires de l'eau à la source des Trois Fontaines. Les données obtenues complètent la chronique entamée en 1993 (Baran, 1996) et confirment d'une part, la présence systématique de l'atrazine, herbicide du maïs, accompagnée de la déséthylatrazine, son principal produit de dégradation, et d'autre part, la présence très sporadique de l'isoproturon, herbicide du blé.

Le quatrième objectif est la modélisation des transferts de phytosanitaires depuis le sol jusqu'à la nappe. Une première étape a été la modélisation hydrodynamique en 2, puis 3 dimensions, en partant des données de pluies et des connaissances disponibles sur la géologie et l'hydrogéologie du système. La seconde étape a été l'addition des paramètres liés spécifiquement au transfert des phytosanitaires et elle a abouti à des séries chronologiques de concentrations modélisées qui peuvent être comparées aux valeurs mesurées.

2. Mesures des débits

2.1. INSTALLATION D'UN SEUIL

Les sources des Trois Fontaines constituent l'exutoire principal du système des Trois Fontaines, tel qu'il a été défini par Lasne (1992). En 1988, un seuil avait été installé par la DIREN Centre, afin de permettre la mesure des débits au niveau de ce groupe de sources. À la fin de l'année 1999, de fortes crues ont endommagé de façon importante ce seuil, rendant les mesures non fiables. La restauration de cet ancien seuil en bois, qui avait été installé dans une optique de suivi de seulement quelques années, s'est avérée impossible.

Afin de garantir sur le long terme la qualité des mesures de débit, des travaux d'aménagement ont donc été réalisés avec la mise en place d'une structure en béton et d'un seuil en acier (ill. 1 et 2). Une attention particulière a été apportée au rétablissement de l'aspect bucolique du secteur, avec notamment la replantation d'arbustes selon les desiderata des acteurs locaux (e.g. mairie de Saint-Loup-de-Gonois). L'aide financière du Conseil régional a permis l'entretien de l'ouvrage et le recueil des données de la station d'acquisition automatique lors de missions régulières de terrain.

Un canal Venturi de 15 m de long a été installé de manière à garantir un écoulement laminaire de l'eau, nécessaire à une mesure de bonne qualité. Le seuil jaugeur est de type Neyrpic (Hydrologic type 1241B/C) ; il a été équipé d'une centrale d'acquisition automatique qui est relevée en moyenne tous les mois. Les hauteurs d'eau enregistrées sont, après corrections, transformées en débits instantanés par l'intermédiaire de la courbe d'étalonnage théorique fournie par le constructeur.

La station a été installée par la Société COMA en septembre 2000. La mise en service a eu lieu le 12 novembre 2000.

D'après le certificat de contrôle HYDREKA n° HYD1489-00 du 10/07/2000, le capteur de pression utilisé est du type transmetteur de pression (PDCR1830) avec une gamme d'entrée 0-150 mbar et une gamme de sortie 0-50 mV linéaire. L'erreur maximale est de 0,2 % de l'étendue de mesure (1,50 m d'eau), ce qui correspond à ± 3 mm sur la mesure de la hauteur de charge. Cette précision est faible, mais elle est satisfaisante au regard des amplitudes mesurées sur le terrain. Le pas de scrutation est de 10 s et le pas d'enregistrement de 5 mn.

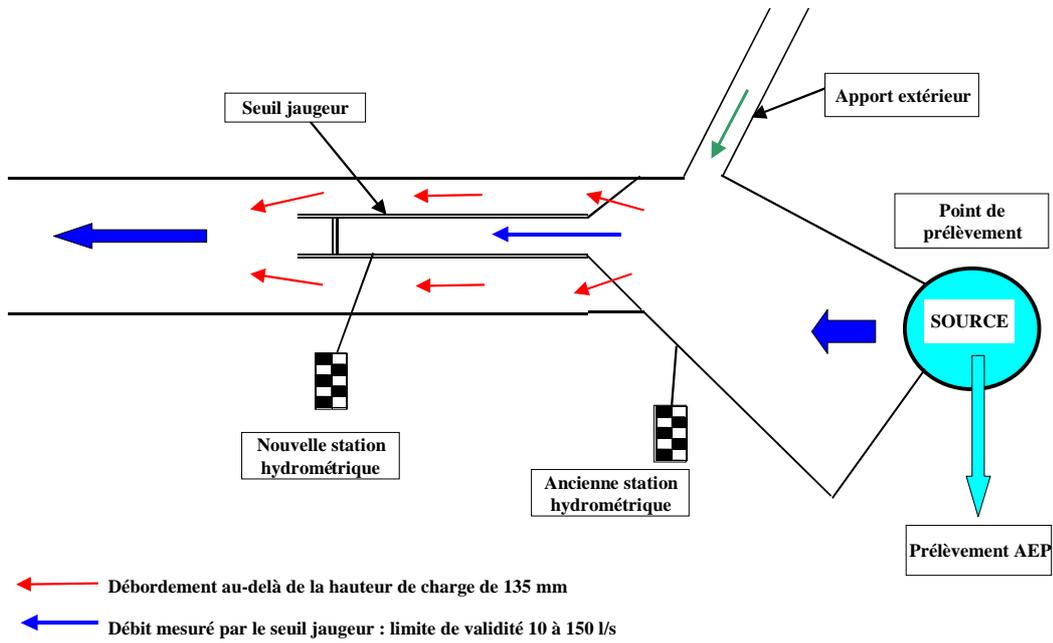


Illustration 1 - Schéma de localisation de la nouvelle station hydrométrique.



Illustration 2 - Le canal Venturi et le seuil vus de l'aval.

2.2. LES JAUGEAGES AU MOULINET

Pour s'assurer que la formule théorique, fournie par le constructeur, reliant la hauteur d'eau et le débit, est correcte et applicable sur ce site, des jaugeages de contrôle sont effectués.

Le matériel de jaugeage utilisé est le suivant :

- micromoulinet OTT type C2 n° 73198 ;
- microperche coulissante OTT, graduée en centimètres ;
- hélice n° 1 – 128219 autocomposante ;
- compteur d'impulsion OTT type Z200.

Des jaugeages au micromoulinet ont été effectués dans le canal d'amenée au seuil jaugeur, dans une section de mesure située à 7,6 m en amont de la crête du seuil. Les jaugeages ont comporté au moins 9 verticales de mesures et 47 mesures ponctuelles de vitesse (ill. 3). Les dépouillements des mesures ont été effectués avec le logiciel DEPJAU (Normand, 1985).



Illustration 3 - Réalisation d'un jaugeage au micromoulinet.

2.3. LES MESURES TOPOGRAPHIQUES

Pour optimiser la qualité des mesures, il est nécessaire de connaître parfaitement la géométrie du site. Les mesures topographiques réalisées avaient pour objectif de vérifier les caractéristiques dimensionnelles de la station hydrométrique. Deux profils ont ainsi été réalisés : un profil en long de la ligne d'eau avec mesure des principales caractéristiques du seuil jaugeur, et un profil en travers à 1 m en aval de la crête du seuil jaugeur.

La station hydrométrique est composée d'un canal bétonné de section rectangulaire de 16,1 m de longueur, 1,31 m de largeur et d'environ 0,33 m de hauteur (plus un rebord arrondi en bois d'environ 0,05 m de hauteur). Ce canal bétonné, situé à 3,90 m en aval de la passerelle métallique de l'ancienne station hydrométrique du SRAE, est partiellement enterré (0,15 m environ) dans le fond naturel du cours d'eau. La crête du seuil de type Neyrpic est située à 13,35 m en aval de la tête amont du canal. Il s'agit d'un seuil jaugeur métallique de marque Hydrologic (type 1241 B/C), avec une hauteur de pelle de 0,12 m. La hauteur de charge est mesurée à 1,10 m en amont de la crête, soit manuellement avec un régleur métallique gradué en millimètres de 0 à 21,7 cm, soit avec un capteur de pression placé au droit du régleur et fixé sur le bord du canal. Ce capteur est relié à une centrale d'acquisition Octopus de marque Hydreka, installée en rive gauche dans un boîtier métallique fixé sur un pilier métallique. Le pas d'acquisition des données est de 5 mn.

Les mesures topographiques (ill. 4) réalisées sur la crête du déversoir montrent qu'elle peut être considérée comme horizontale.



Illustration 4 - Mesures topographiques pour l'établissement d'un profil en travers et le calage du repère de mesure par rapport à la crête du seuil.

2.4. ÉLABORATION DE LA COURBE D'ÉTALONNAGE

La courbe d'étalonnage comprend deux parties :

- celle relative au seuil Neyrpic ;
- l'extrapolation au-delà de la cote maximale de validité du seuil.

La courbe d'étalonnage du seuil Neyrpic a été établie à partir de la formule empirique du constructeur Hydrologic, pour laquelle la valeur du coefficient de débit C a été ajustée d'après les résultats des deux jaugeages d'étalonnage au micromoulinet :

$$Q = \text{Largeur} \times C \times \text{Charge}^\alpha$$

avec :

- Q : débit (en l/s),
- L : largeur de la crête du seuil (ici 1,31 m),
- C : coefficient de débit ajusté à 0,038565 (au lieu de 0,04208, valeur fournie par le constructeur),
- α ; coefficient déterminé par le constructeur, soit 1,615.

Cette formule s'applique entre les hauteurs de charge de 25 et 168 mm, ce qui correspond à une gamme de débits compris entre 9,2 et 199 l/s. Toutefois, les travaux d'aménagement avaient laissé un contournement en amont du canal pour des hauteurs de charge supérieures à 158 mm ; ce contournement a été colmaté lors de la mission sur site du 24 novembre 2003. Pour les cotes supérieures à 158 mm, il n'existe pas de mesures directes des débits. Les mesures topographiques (profil en long et en travers), effectuées lors de la mission du 10 janvier 2003, ont été exploitées pour extrapoler la courbe au-delà de cette valeur de 158 mm. Une courbe d'étalonnage théorique a été établie en utilisant la formule de Manning-Strickler (Carlier, 1972 ; Chow *et al.*, 1998 ; Lencastre, 1969), avec les hypothèses suivantes :

- pente hydraulique moyenne : 0,004 ;
- coefficient maximal de Manning-Strickler égal à 30, pour un rayon hydraulique supérieur à 3 m. Dans la gamme des rayons hydrauliques concernés, le coefficient varie ainsi entre 8 et 16 ;
- la courbe d'étalonnage théorique a été limitée à la cote maximale de 600 mm (correspondant à 3,8 m³/s) d'une part, car les données topographiques au-delà de cette cote ne sont pas disponibles, et d'autre part, car les cotes supérieures à 600 mm traduisent des épisodes de débordement de la Cléry située juste en aval, débordements qui enlèvent toute signification à la mesure de charge ainsi influencée.

Le calage complet de cette courbe d'étalonnage (ill. 5 et 6) nécessitera quelques jaugeages supplémentaires au moulinet.

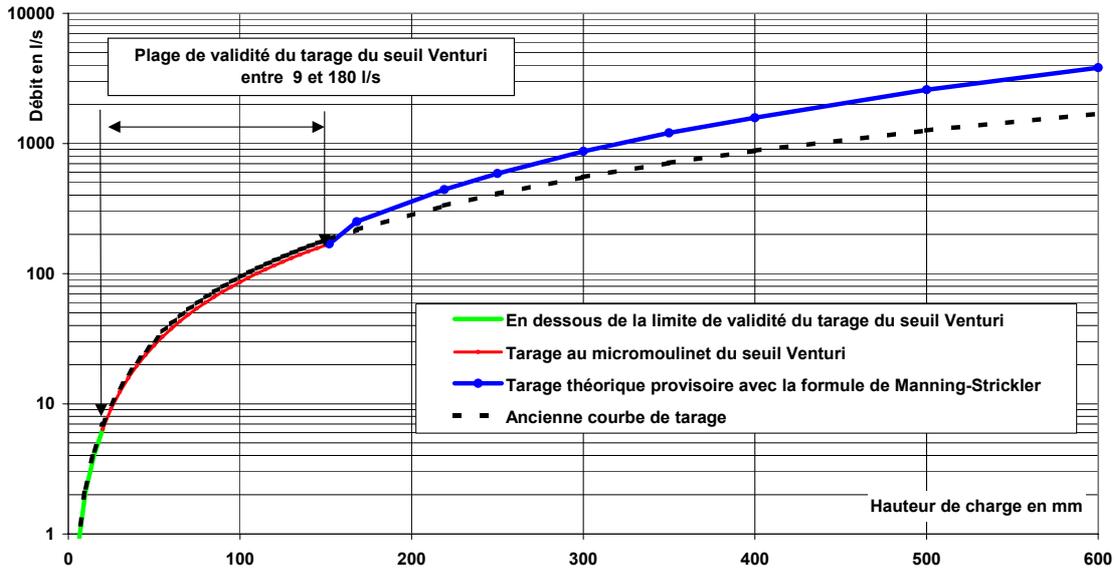


Illustration 5 - Courbe de tarage complète de la station hydrométrique des sources des Trois Fontaines.

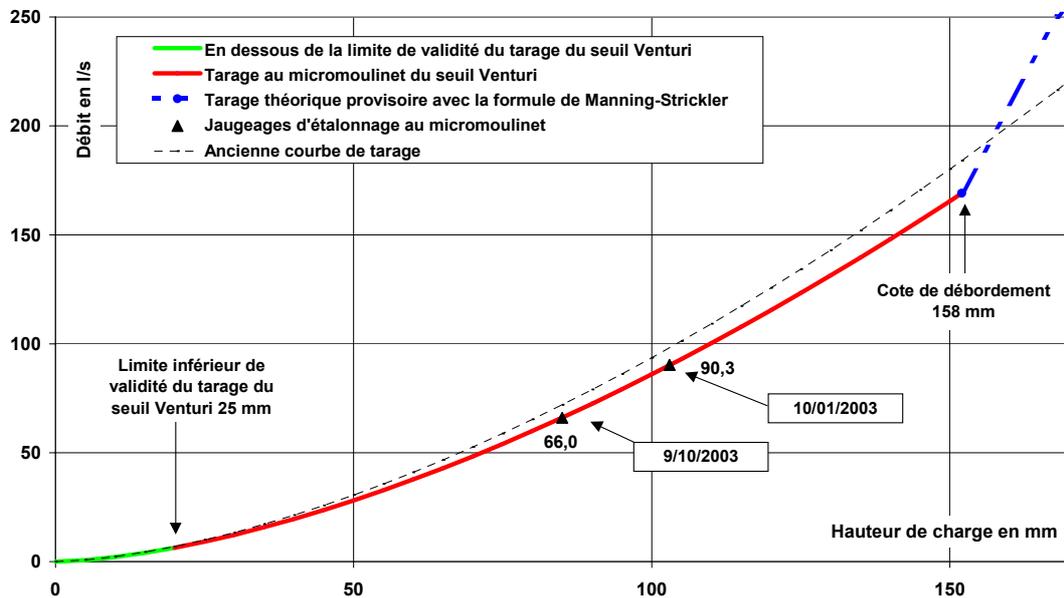


Illustration 6 - Courbe de tarage de basses eaux de la station hydrométrique des sources des Trois Fontaines.

2.5. DONNÉES SUR LES DEBITS PRÉLEVÉS POUR L'ALIMENTATION EN EAU POTABLE

À partir de la date d'installation de la nouvelle station de pompage (mars 1994), les prélèvements d'eau dans les griffons de la source principale (cf. ill. 1) ont augmenté, non pas parce que la demande croissait, mais parce que la nouvelle station de traitement fonctionne sur filtre biologique, ce qui nécessite une mise en eau permanente du filtre. L'eau pompée et non distribuée est rejetée en aval de la station hydrométrique. Ce captage est exploité par la SAUR pour le compte du syndicat de la vallée de la Cléry.

Dans un premier temps, le débit pompé a été estimé à 20 l/s au dire de l'exploitant. Pour valider cette estimation et s'assurer qu'elle reste valable quelques années après la mise en service de la station de traitement, un travail sur les volumes pompés a été effectué sur la base des relevés de l'exploitant.

Les données sur les pompages relatifs à la période allant du 31 décembre 1994 au 29 septembre 2003 ont été transmises par le syndicat de la vallée de la Cléry sur la base des relevés de la SAUR. Il s'agit de mesures faites au compteur volumétrique approximativement tous les 10 jours. Jusqu'au 16 février 1999, les volumes prélevés correspondaient à la somme de trois prélèvements contrôlés chacun par un compteur volumétrique et appelés respectivement eau dérivée, réacteur 1 et réacteur 2. À partir du 16 février 1999, la somme des débits prélevés est mesurée globalement par un compteur volumétrique unique. Aucune information sur la précision de ces mesures volumétriques n'est disponible.

L'analyse des données montre des valeurs aberrantes le 7 novembre 1995, avec les index des compteurs « eau dérivée », « réacteur 1 » et « réacteur 2 » du 7 novembre inférieurs à ceux du 6 novembre, d'où des volumes calculés négatifs, évidemment erronés. Le syndicat n'a pas donné d'explication à cette anomalie. Après les relevés du 6 novembre, les index des trois compteurs ont vraisemblablement été changés le 7 novembre.

L'examen de ces relevés permet de considérer, en première approximation, que les prélèvements journaliers sont constants entre deux relevés consécutifs. L'hypothèse est également faite que les prélèvements sont effectués à 12 h. Ces hypothèses ne sont sûrement pas tout à fait valides, car il est notamment vraisemblable que les prélèvements sont légèrement supérieurs pendant les week-end (nombreuses résidences secondaires sur le bassin) à ce qu'ils sont pendant la semaine. En l'absence d'éléments pour prendre en compte ce type de modulation hebdomadaire, nous avons considéré que ces prélèvements étaient à débit constant entre deux mesures consécutives. En conséquence, nous avons divisé les volumes pompés entre deux dates par le nombre de jours correspondant. Ces débits moyens journaliers de pompage ont ensuite été utilisés pour calculer les débits moyens décennaux et mensuels pompés (ill. 7).

Année	Janv	Févr	Mars	Avr	Mai	Juin	Juil	Août	Sept	Oct	Nov	Déc	Module annuel l/s
1995	13,09	19,48	23,15	23,99	35,29	20,85	51,61	45,13	35,43	23,63	13,72	20,36	27,25
1996	27,89	40,99	28,59	40,25	49,25	51,77	51,97	42,82	32,44	22,06	21,00	20,88	35,79
1997	22,73	22,06	23,82	43,61	50,71	47,16	46,03	45,44	30,09	24,60	21,49	21,21	33,31
1998	20,84	21,89	22,08	37,14	43,63	35,75	48,77	35,24	25,00	23,62	22,11	21,92	29,90
1999	27,65	19,80	22,09	36,68	29,93	32,33	40,52	35,13	29,68	21,57	21,44	20,29	28,14
2000	24,94	23,26	24,64	34,66	30,27	34,10	31,42	32,71	28,55	21,32	21,97	22,08	27,49
2001	20,56	24,94	22,64	25,10	29,75	41,31	33,60	36,51	27,31	24,79	24,77	27,16	28,21
2002	26,62	27,24	28,28	36,92	33,53	38,67	41,25	38,31	29,46	33,98	27,76	24,93	32,28
2003	28,60	27,28	28,04	37,41	32,04	38,67	42,69	48,70	34,50				
Moyenne 95-02	23,04	24,96	24,41	34,79	37,80	37,74	43,15	38,91	29,75	24,45	21,78	22,35	30,30

Illustration 7 - Débits mensuels et annuels prélevés par la SAUR entre janvier 1995 et octobre 2003.

L'illustration 8 montre l'évolution des débits moyens journaliers pompés entre le 31 décembre 1994 et le 29 septembre 2003. On constate une modulation saisonnière des débits pompés avec un maximum en juillet et un minimum en novembre, et une tendance à la hausse des débits pompés entre 2000 et 2003. Le débit moyen annuel pompé passe de 27,49 l/s en 2000 à 32,28 l/s en 2002. Le débit mensuel de pointe en juillet est passé de 31,42 à 42,69 l/s entre 2000 et 2003. Le syndicat a d'ailleurs indiqué que la pose d'une pompe supplémentaire est programmée.

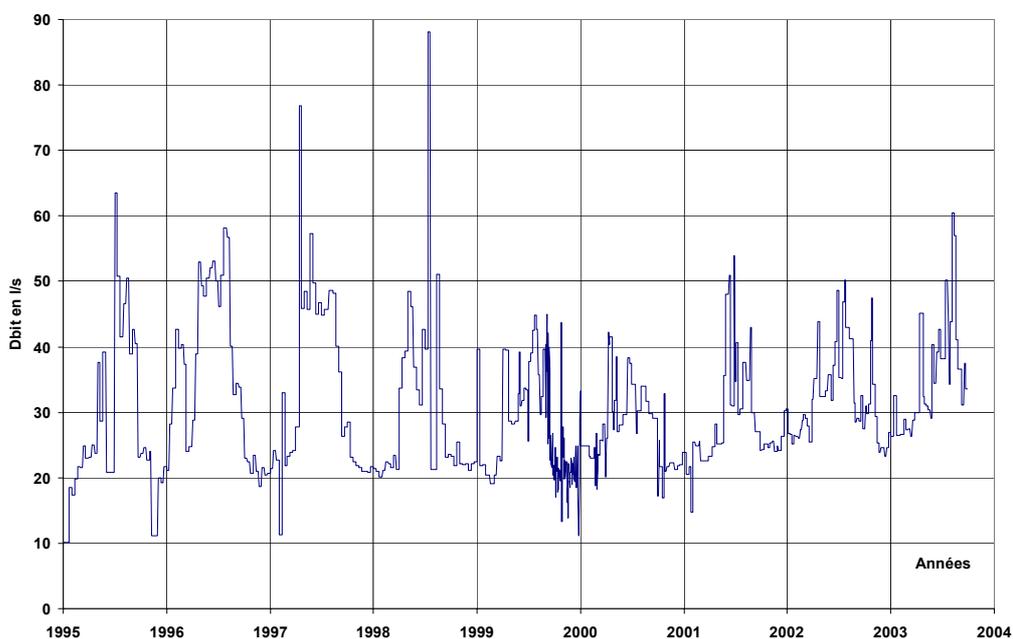


Illustration 8 - Évolution des débits moyens journaliers pompés dans la source des Trois Fontaines (janvier 1995 à septembre 2003).

2.6. RECONSTITUTION DES DÉBITS NATURELS

Deux traitements de données ont été nécessaires pour reconstituer les débits naturels les plus exacts possibles. D'une part, les débits (influencés par les pompages) mesurés au niveau de la station hydrométrique ont été corrigés en fonction de la nouvelle courbe de tarage ; d'autre part, les débits pompés ont été estimés, via les relevés décennaires de l'exploitant. Le débit total au niveau des sources des Trois Fontaines peut être considéré comme le résultat de la somme de ces deux grandeurs (débits influencés et débits pompés).

L'illustration 9 récapitule les débits mensuels correspondant à la période pour laquelle ces deux types de données sont disponibles.

Année	janv	févr	mars	avr	mai	juin	juil	août	sept	oct	nov	déc
2000	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	236
2001	170	124	416	133	281	119	117	104	98,7	-	-	-
2002	140	-	153	117	113	128	169	113	103	95,5	116	123
2003	281	309	110	130	124	94,7	101	88,2	87,7	56,9	-	-

- : Capteur de la station hydrométrique en panne du 17/10 au 19/11/00, du 29 au 31/12/00 et le 21/02/02

Illustration 9 - Débits mensuels ($10^3 m^3$) naturels des sources des Trois Fontaines entre décembre 2000 et novembre 2003, reconstitués à partir des débits influencés et des débits pompés.

L'illustration 10a présente l'hydrogramme des débits décennaires obtenus aux sources des Trois Fontaines, en prenant en compte les débits influencés et les débits pompés par la SAUR. L'ensemble des valeurs est présenté, mais il convient de rappeler que au-delà de 150 l/s les mesures ne sont plus fiables, car elles correspondent à des hauteurs d'eau qui sortent de la gamme de validité du seuil et qui, de plus, traduisent en général une crue de la Cléry qui perturbe les écoulements en aval du seuil, mais aussi contribue à des apports d'eau, via des fossés, jusqu'au seuil. La hauteur d'eau mesurée au-dessus de 152 mm résulte donc de trois paramètres : débit de la source, augmentation du niveau dans le seuil liée à un blocage des écoulements vers l'aval, et arrivée d'eau pouvant être massive depuis la Cléry. L'illustration 10b présente ce même hydrogramme, mais limité à la gamme de mesures non influencées par la Cléry.

Des fluctuations de l'ordre de 50 % sont observées entre les débits faibles et les valeurs élevées. Les débits d'étiage ne se sont stabilisés que pendant l'été 2001. Pour chaque année du suivi 2001-2003, des pics sont observés entre mars et mai, et en juillet. Une baisse des débits particulièrement nette est observée dans le second semestre de 2003.

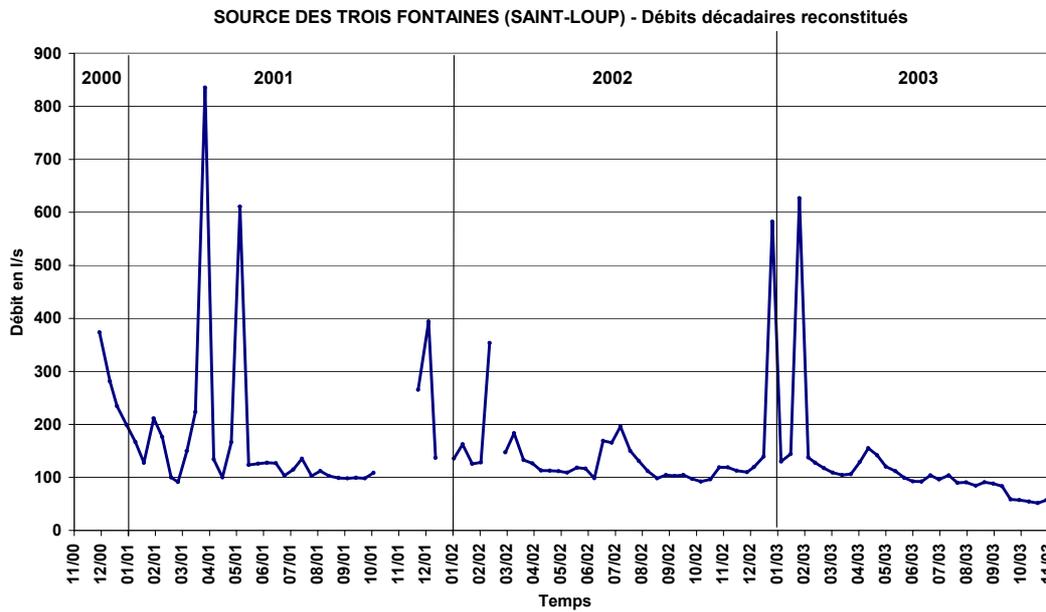


Illustration 10a - Hydrogramme des débits décennaux reconstitués des sources des Trois Fontaines.

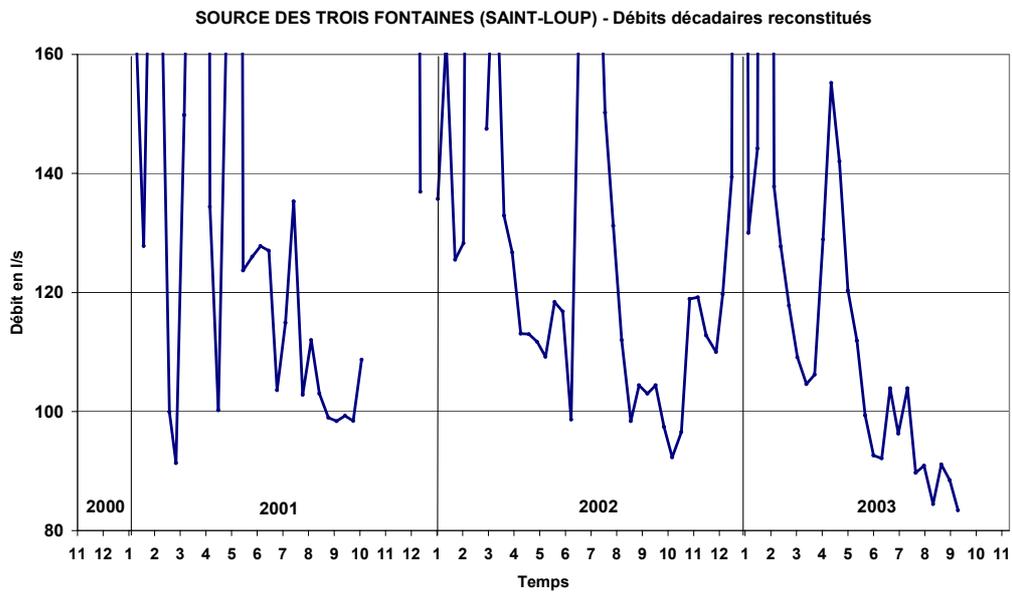


Illustration 10b - Hydrogramme des débits naturels décennaux reconstitués de la source des Trois Fontaines limitée à la gamme de mesures non influencées par la Cléry.

3. Piézométrie

3.1. CAMPAGNE DE MESURES PIEZOMETRIQUES

Le suivi des niveaux piézométriques (ill. 11), au niveau du forage de la Bissaugerie, situé dans la partie amont du bassin hydrogéologique, a permis de montrer que le contexte avait fortement évolué depuis la réalisation de la carte piézométrique du bassin en septembre 1990 (Lasne, 1992). Entre la première campagne piézométrique réalisée sur l'ensemble du bassin en septembre 1990 et l'époque à laquelle ont été réalisés les travaux faisant l'objet du présent rapport, le niveau piézométrique est supérieur de plus de 10 m. Cette remontée globale du niveau est liée à un retour à une situation pluviométrique plus conforme à la normale, les années 1988 à 1992 ayant été fortement déficitaires en pluie. Ce phénomène est d'ailleurs assez général dans la région.

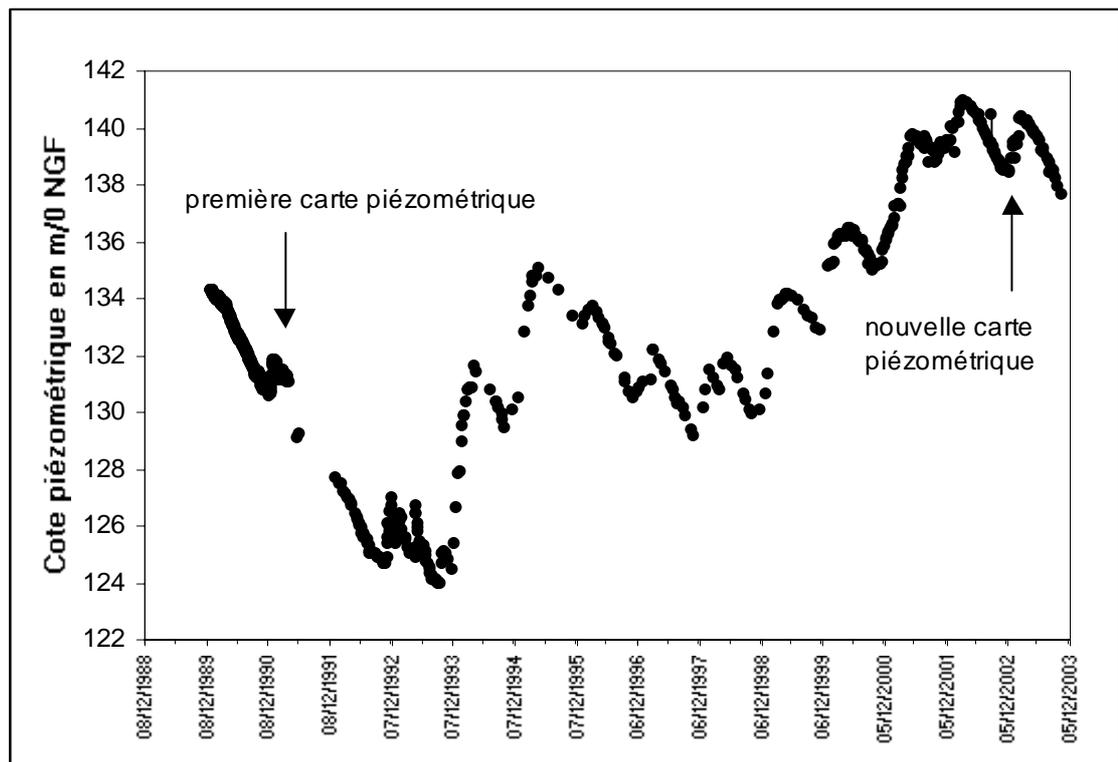


Illustration 11 - Évolution du niveau piézométrique au captage de la Bissaugerie.

Cette augmentation du niveau observé à la Bissaugerie suggérant des changements dans la piézométrie détaillée du bassin, une campagne piézométrique complète a donc été réalisée en mars 2003, avec 201 points de mesure répartis dans le système

hydrogéologique et à sa périphérie. Ce grand nombre de points permet d'obtenir une densité satisfaisante de mesures.

Dans l'illustration 12, les points bleus correspondent aux 201 points de mesure, l'étoile rouge en amont correspond au forage de la Bissaugerie dont le niveau piézométrique est suivi de façon hebdomadaire (cf. ill. 11), et l'étoile rouge en aval correspond au groupe des sources des Trois Fontaines. Les limites du système hydrogéologique, établies par Lasne (1992), sont représentées par les traits rouges.

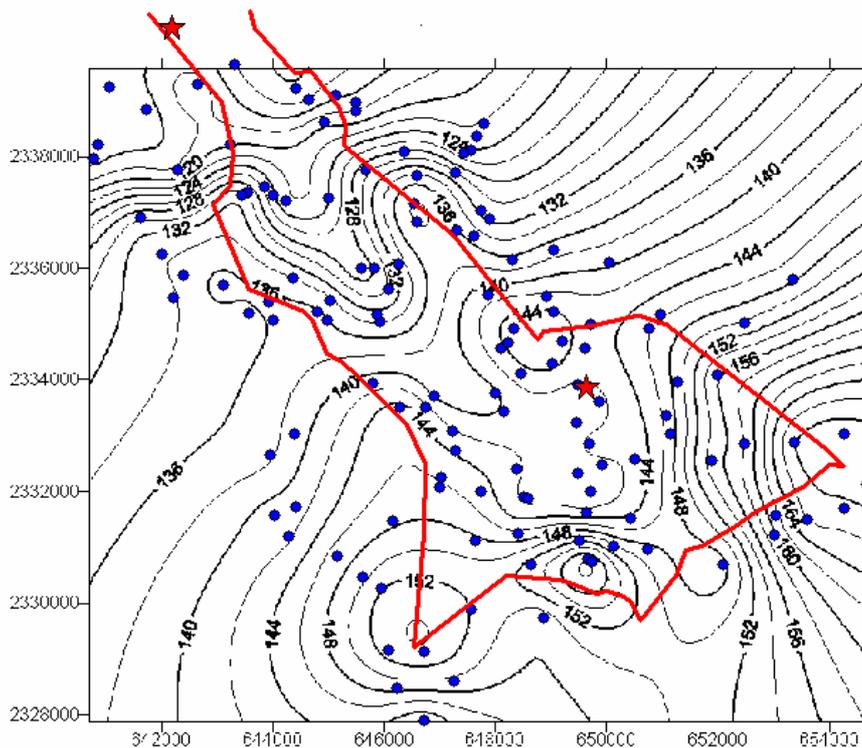


Illustration 12 - Carte piézométrique établie grâce aux mesures de mars 2003.

À partir de ces mesures dont chacune ne donne qu'une indication spatiale ponctuelle, une interpolation a été effectuée, via le logiciel Surfer, de manière à tracer des isopièzes représentés en noir sur l'illustration 13. Quelques secteurs sur cette carte auraient mérité d'être précisés (Sud-Est du bassin, proximité de la source), mais n'ont pu l'être en l'absence de puits accessibles.

Un axe de drainage d'orientation sud-est nord-ouest apparaît, correspondant à un secteur où le gradient hydraulique est faible. Ce secteur correspond à une zone de forte perméabilité résultant très probablement de l'altération et/ou de la dissolution (karstification) de la craie. Cet axe permet une connexion hydraulique préférentielle entre le secteur du forage de la Bissaugerie et les sources des Trois Fontaines. Cette relation a d'ailleurs été confirmée lors de traçages préalables (Lasne, 1992), grâce

auxquels des vitesses de plusieurs mètres par jour ont été estimées dans la zone saturée.

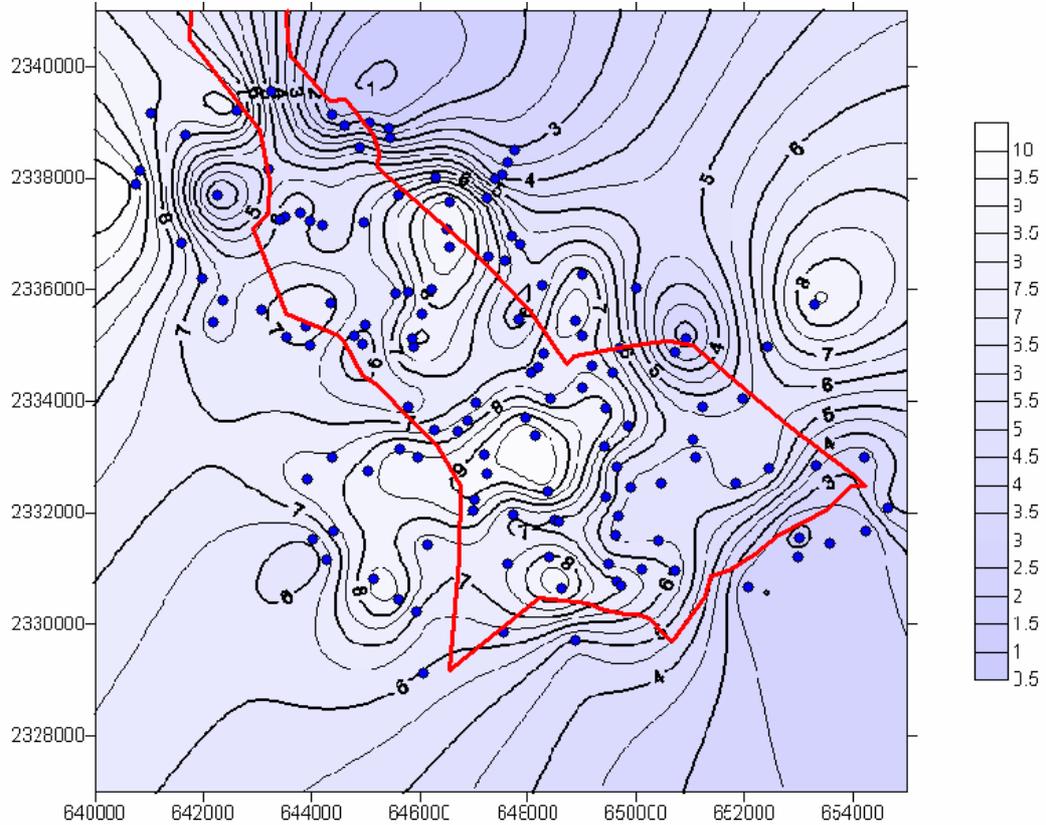


Illustration 13 - Différences de niveaux piézométriques (valeurs en mètres données sur la légende à droite de la figure) observées entre septembre 1990 et mars 2003.

Les dômes piézométriques correspondent en revanche à des secteurs où la perméabilité de la craie est moindre. Ils constituent les limites du système hydrogéologique.

Cette nouvelle carte piézométrique a permis de préciser plusieurs points. Premièrement, elle confirme les limites du système hydrogéologique qui apparaissent stables dans le temps et elle démontre que le système reste isolé hydrauliquement au cours du temps. En effet, les limites précédemment définies par Lasne (1992) représentées en rouge correspondent toujours aux dômes piézométriques mis en évidence lors de la nouvelle campagne. Il s'agit donc bien d'une unité hydrogéologique sur laquelle il est possible de maîtriser les fonctions d'entrée et de sortie. Le deuxième point notable est la confirmation de l'existence d'un secteur karstifié qui prend la forme d'un axe de drainage orienté sud-est nord-ouest.

L'illustration 13, qui correspond à la différence de niveaux piézométriques observés entre la campagne de septembre 1990 et mars 2003, montre que les niveaux de mars 2003 sont tous supérieurs à ceux de 1990, de 50 cm à une dizaine de mètres suivant

la localisation dans le bassin, les points de mesure étant identiques lors des deux campagnes. D'une manière générale, les plus faibles remontées sont observées en limites du bassin dans des secteurs où la perméabilité est sans doute assez faible. À l'inverse dans des secteurs à plus forte perméabilité, plus ou moins karstifiés, les niveaux ont fluctué de manière plus importante.

Bien que cette nouvelle carte piézométrique confirme un certain nombre d'observations préalables (indépendance hydraulique du système, stabilité des limites dans le temps, existence d'un axe de drainage), il est possible que la remontée importante des niveaux piézométriques ait une incidence en terme de fonctionnement hydraulique. En effet, du fait de cette remontée des niveaux piézométriques, des conduits (ou des zones de fracturation importantes), autres que ceux actifs à l'époque de niveaux plus bas, peuvent participer au transfert rapide d'eau et de solutés.

4. Transfert des phytosanitaires

4.1. PRÉLÈVEMENTS ET DOSAGES

Des échantillons d'eau sont prélevés environ tous les 10 jours par l'exploitant de la source des Trois Fontaines (SAUR) qui conserve les échantillons dans un réfrigérateur avant envoi mensuel au BRGM. L'envoi se fait par glacière et chronopost pour garantir des conditions optimales de conservation lors du transport. Les flacons, fournis par le BRGM, sont des flacons en verre fumé, certifiés quant à leur absence de contamination par les phytosanitaires.

Des travaux antérieurs ont montré que pour des eaux souterraines et des molécules comme les triazines et les urées substituées, un stockage de quatre semaines ne modifiait pas les concentrations initialement présentes dans l'échantillon (Mouvet *et al.*, 1997). Les molécules phytosanitaires, ainsi que quelques-uns de leurs produits de dégradation, sont analysés par chromatographie en phase liquide après extraction, de type liquide-liquide (AFNOR, 1991) ou solide/liquide (AFNOR, 1995).

L'extraction liquide/liquide met en œuvre 1 000 ml d'échantillon soumis à trois extractions successives par 50 ml de dichlorométhane, décantation, évaporation à 1 ml et reprise dans 5 ml de méthanol. L'extraction liquide/solide met en œuvre 250 ml d'échantillon amenés à pH 7 par du KOH et percolés au travers d'une cartouche contenant 0,5 g de phase C18 (Supelclean ENVI™ 18 SPE, Supelco) conditionnée au préalable avec 5 ml de méthanol, puis 5 ml d'eau (pH 7) à un débit d'environ 5 ml/mn. La cartouche est ensuite séchée sous vide, puis éluée avec 4 ml de méthanol ramenés ensuite à 200 µl par évaporation sous azote. La limite de détection de la méthode est de 0,05 µg/L pour une précision de 15 %.

Les molécules recherchées sont l'atrazine (AT) et deux de ses principaux produits de dégradation, la déséthylatrazine (DEA) et la déisopropylatrazine (DIA), ainsi que l'isoproturon (IPU) et ses deux principaux dérivés, le monométhylisoproturon et le didesméthylisoproturon. L'atrazine et ses dérivés sont recherchés, car les études antérieures ont montré une contamination persistante de la source par ces molécules (Baran, 1999).

Le problème de la contamination des eaux souterraines par l'atrazine et la déséthylatrazine n'est pas spécifique à ce site. En effet, le bilan effectué en France par l'IFEN (2003), à partir des 8 161 analyses de 2001 provenant de 3 739 sites d'observation différents, montre la détection d'atrazine dans 43 % des cas et de DEA dans 50 %.

L'isoproturon, qui appartient à une famille de phytosanitaires -urées substituées- différente de la famille des triazines à laquelle appartiennent l'AT et la DEA, est la substance la plus largement appliquée sur le bassin, puisqu'il s'agit d'un herbicide

sélectif utilisé sur céréales, cultures qui occupent plus de la moitié de la surface agricole utile du bassin.

4.2. LES CHRONIQUES DE CONCENTRATIONS EN PHYTOSANITAIRES À LA SOURCE

Les dérivés de l'isoproturon (monométhylisoproturon et didesméthylisoproturon) n'ont jamais été détectés dans les eaux de la source, entre janvier 2001 et décembre 2003.

En revanche, l'AT et la DEA sont détectées quasi systématiquement (ill. 14). La désisopropylatrazine a été détectée à des teneurs non quantifiables (donc inférieures à 0,05 µg/L) les 2 et 10 mars 2003, ainsi que le 6 et 10 octobre 2003. L'isoproturon apparaît de manière épisodique (ill. 14). Cette molécule a été quantifiée le 26 décembre 2000, le 13 mars 2001 et du 20 février au 02 avril 2002, et a été détectée en avril et mai 2001, ainsi que le 15 mai 2002. Les périodes de présence d'isoproturon dans l'eau de la source sont toujours un peu postérieures aux périodes d'application de cette molécule par les agriculteurs (novembre-décembre et/ou février-mars suivant les conditions climatiques).

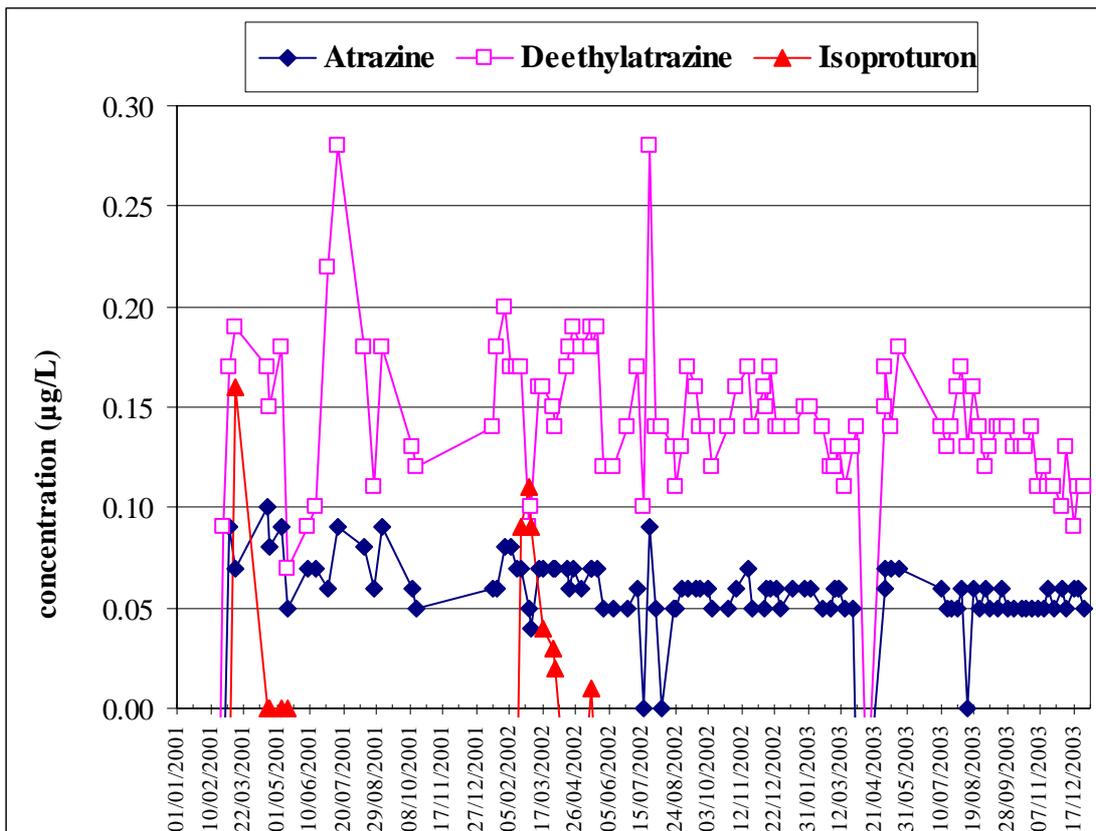


Illustration 14 - Teneurs en atrazine, déséthylatrazine et isoproturon aux sources des Trois Fontaines (janvier 2001 à décembre 2003).

À l'inverse, les périodes d'application ne s'accompagnent pas toutes de la détection d'isoproturon à la source ; c'est le cas des hivers 2001 et 2002, et du printemps 2003. Bien que nous n'ayons pas d'information détaillée sur les pratiques culturales à l'échelle du bassin versant, il est raisonnable de penser que les quantités d'isoproturon appliquées sur le bassin sont similaires durant ces trois années. En effet, il n'y a pas eu de mesure réglementaire ou de changements notables dans la politique agricole commune qui auraient pu avoir de fortes influences sur la surface cultivée en céréales et donc de manière indirecte sur la quantité d'isoproturon appliquée. Dans les années à venir en revanche, la quantité d'IPU appliquée sur le bassin devrait diminuer, puisque la réglementation applicable au 1^{er} janvier 2004 fixe une dose maximale de 1 200 g/ha d'isoproturon (contre 1 800 g/ha antérieurement) pour l'application sur céréales.

L'apparition d'isoproturon à la source n'est donc pas liée au seul critère d'application agricole précédant de peu l'analyse à la source, mais dépend d'un ou plusieurs autres facteurs. Un de ces facteurs peut être la position dans le bassin des parcelles traitées en IPU, position qui peut changer d'une année à l'autre pour des itinéraires culturaux évitant la succession blé-blé. La plus ou moins grande proximité des parcelles traitées par rapport à la source, aux pertes de ruissellement identifiées sur le bassin ou à l'axe de drainage, est un facteur déterminant dans les transferts possibles d'IPU. En l'absence d'informations précises sur les assolements au cours de ces trois années (janvier 2001 à décembre 2003), il est impossible de tester cette hypothèse. Un autre facteur qui pourrait être prépondérant concerne les précipitations.

En effet, l'isoproturon ne reste mobilisable par l'eau d'infiltration que pendant une courte période après son application (Perrin-Ganier, 1995 ; Baran, 1996) ; un facteur prépondérant dans le transfert de l'IPU est donc le délai entre son application et la (les) première(s) pluie(s) suffisante(s) pour engendrer un épisode d'infiltration rapide. Si le délai est suffisamment court et que les conditions climatiques sont réunies, une partie de l'isoproturon peut être mobilisée et transportée rapidement jusqu'à la source engendrant ces pics de contamination. Ces pics d'isoproturon seront d'autant plus marqués que la quantité d'isoproturon mobilisable est forte (c'est-à-dire que le délai entre l'application et la pluie est court) et que le volume d'eau arrivant à la source sous forme d'infiltration rapide transportant les solutés est grand comparativement au volume d'eau résultant d'une infiltration plus lente qui donne naissance au débit de base de la source. Des pics de concentration en phytosanitaires ont été observés dans d'autres karsts en relation avec des phénomènes de crues (Libra *et al.*, 1987). Ces auteurs concluent que ces pics correspondent à de l'eau de ruissellement qui s'infiltrerait rapidement à la faveur de conduits karstiques.

En ce qui concerne l'atrazine, les teneurs ont peu fluctué entre janvier 2001 et décembre 2003, généralement entre 0,05 et 0,1 µg/L, et elle n'a pas été détectée dans sept échantillons (22 février 2001, 26 février 2001, 16 juillet 2002, 08 août 2002, 1^{er} avril 2003, 11 avril et 11 août 2003). Sur la période d'étude, il n'y a pas de pics de concentrations fortement marqués en relation avec les périodes d'application (fin avril-début mai), contrairement à ce qui a été précédemment décrit pour l'IPU. Cette absence d'apparition de pics, pendant ou juste après les périodes d'application, résulte probablement du fait que l'AT est détectée quasi systématiquement au cours du temps et qu'un apport via des circulations rapides se marque peut-être moins que dans le cas

de l'IPU. De plus, les quantités appliquées à l'échelle du bassin sont très probablement beaucoup plus faibles que dans le cas de l'isoproturon. Elles ne sont donc peut-être pas suffisantes pour engendrer un signal clairement perceptible si le flux (volume et concentration) lié à l'infiltration rapide est très faible par rapport au flux lié au débit de base.

La DEA est détectée de manière presque systématique et toujours avec des concentrations supérieures à celles de l'atrazine. Les teneurs fluctuent globalement de 0,07 à 0,27 µg/L ; seuls deux échantillons n'ont pas révélé la présence de DEA (22 février 2001 et 11 avril 2003 ; ce sont des échantillons où l'AT n'a pas été détectée non plus). Les fluctuations entre deux échantillons prélevés à seulement une dizaine de jours d'écart peuvent être importantes. Par exemple, la concentration a presque triplé entre le 16 (0,1 µg/L) et le 24 juillet 2002 (0,28 µg/L) pour redescendre à 0,14 µg/L le 1^{er} août 2002. Ces variations importantes (très largement supérieures à l'incertitude analytique), sur une aussi courte période, justifient qu'un pas de temps d'échantillonnage court soit conservé si on veut observer l'ensemble des variations. Les plus fortes teneurs ont été observées en juillet 2001 et 2002, environ deux mois après la période probable d'application de l'AT. Cela suggère que la DEA formée après l'application est mobilisable rapidement jusqu'à la source. L'absence de pic marqué pendant l'été 2003 pourrait être liée à un déficit pluviométrique du printemps et de l'été 2003 ; les données de Météo France de 2003, nécessaires pour vérifier cette hypothèse, n'ont toutefois pas pu être acquises au cours des travaux présentés dans ce rapport.

Au vu des changements réglementaires sur les doses d'application (réduction pour l'IPU à partir de janvier 2004, et interdiction d'application de l'AT depuis septembre 2003), il serait très intéressant de continuer à suivre l'évolution de la qualité de la nappe. En effet, les apports sur le bassin des molécules, posant le plus gros problème de contamination de la nappe (atrazine et déséthylatrazine), vont notablement baisser, et seul le maintien d'un suivi à cadence rapprochée permettra de savoir quand les effets positifs de cette nouvelle réglementation seront perceptibles.

En ce qui concerne l'IPU, molécule mobilisable seulement sur une courte durée et dont la dose d'application va être réduite, on peut imaginer que les pics de contamination vont tendre à diminuer en intensité, même si des conditions propices à leur apparition (pluies importantes juste après de nombreuses applications) continuent à se produire. Pour l'AT, deux mécanismes de transfert ont été identifiés : l'infiltration immédiate en rapport avec les applications, et une infiltration plus lente donnant naissance au bruit de fond observé (présence quasi systématique de faibles concentrations). En l'absence d'application, les pics estivaux liés au premier mécanisme devraient disparaître. Par contre, le signal plus continu résultant du deuxième mécanisme devrait perdurer. Les rares études disponibles montrent en effet que l'arrêt de l'utilisation de l'AT ne s'accompagne pas rapidement d'une baisse de la contamination (Baran *et al.*, 2002 ; Baran et Mouvet, 2002 ; Tappe *et al.*, 2002).

Il est probable que cette persistance de l'atrazine soit liée à l'existence d'un stock présent dans le sol et/ou au sein de la zone non saturée, cette dernière pouvant avoir une épaisseur de plusieurs dizaines de mètres sur le site des Trois Fontaines. Ce

stock alimenterait un relargage régulier d'AT et de DEA. La méconnaissance de ce stock, tant sa localisation (sol – zone non saturée) que sa quantité, rend actuellement impossible une prédiction scientifiquement fondée quant à la durée nécessaire au retour de l'eau de la source à un niveau de qualité respectant les directives européennes pour l'eau potable. Un autre facteur, pouvant expliquer la persistance des molécules malgré l'arrêt de leur application, est le temps de renouvellement de la nappe qui peut être long du fait de la grande inertie de ce karst (Lasne, 1992) qui pourrait présenter de la craie compacte dans certains secteurs.

Les chroniques d'évolution de l'AT et de l'IPU sont assez différentes : l'IPU n'est détecté que ponctuellement alors que l'AT l'est presque systématiquement. Or, les quantités appliquées d'IPU sont probablement très supérieures à celles de l'AT : les céréales traitées avec de l'IPU représentent plus de 50 % de la surface du bassin, alors que le maïs traité par l'AT occupe environ 15 %, et les doses homologuées d'application de l'IPU ont été, ces dernières années, supérieures à celles d'AT. La différence de comportement est liée aux différences de propriétés physico-chimiques des deux molécules. L'AT est plus persistante que l'IPU. La base de données gérée par l'Inra (Agritox) donne une gamme de temps de demi-vie allant de 38 à 170 j pour l'AT contre 12 à 33 j pour l'IPU.

De plus, l'IPU est potentiellement plus fortement adsorbé que l'AT (les Koc observés varient de 38 à 170 l/kg pour l'AT et de 36 à 241 pour l'IPU (Agritox, 2003). Ces deux paramètres vont dans le sens d'une plus forte mobilité de l'AT par rapport à l'IPU. Pasquarell et Boyer (1996) suggèrent également que la différence entre molécules du lessivage potentiel, qui dépend des propriétés spécifiques de chaque molécule, a un impact très fort sur le type de chronique observée. En travaillant sur un karst de Virginie, ces auteurs ont distingué cinq groupes. Le premier groupe est constitué de l'AT -et ses métabolites-, avec une distinction entre l'AT issue de périodes de « stockage » et l'AT transitant rapidement depuis le sol. Le deuxième groupe comprend des molécules comme le métolachlore ou la simazine qui sont détectées dans plus de 10 % des cas et dont la détection présente un caractère saisonnier. Les catégories 3 et 4 (cyanazine, prométrine, prométon) sont constituées de molécules détectées moins fréquemment. Enfin, la catégorie 5 (alachlore, métribuzine...) correspond aux molécules qui n'ont été détectées dans aucun des cinq sites suivis.

La forte variabilité temporelle des concentrations observées aux Trois Fontaines, mais aussi dans d'autres sites (Pasquarell et Boyer, 1996), justifie et souligne la nécessité de réaliser des mesures à une fréquence élevée, comme le soulignent d'ailleurs Ryan et Meiman (1996).

L'arrêt de l'utilisation de l'AT pose clairement le problème de l'emploi d'une matière active de substitution. En effet, pour conserver une productivité satisfaisante, les agriculteurs ne pourront pas laisser leurs parcelles sans désherbage. D'autres molécules seront donc appliquées en remplacement de l'AT et la question de leur devenir se pose. Il serait donc judicieux d'étendre la liste des molécules à rechercher à la source des Trois Fontaines, d'une part parce que l'apparition à la source de molécules nouvellement appliquées donnerait des informations précieuses sur le

fonctionnement du système et les temps de transfert, mais aussi parce que ces molécules peuvent constituer un nouveau risque de contamination.

4.3. LES CHRONIQUES DE CHIMIE MINÉRALE

Parallèlement à l'analyse des produits phytosanitaires, des ions majeurs sont analysés dans les échantillons d'eau de la source. Outre l'intérêt particulier qui peut être porté aux nitrates pour les problèmes de potabilité qu'ils peuvent représenter, les ions minéraux peuvent aider à la compréhension des transferts de l'eau et des solutés. Martin et Dean (2001) par exemple utilisent largement les données de chimie minérale pour caractériser les échanges entre l'eau des conduits et l'eau de la matrice. Il se confirme que dans le bassin hydrogéologique des Trois Fontaines, aussi, les chlorures, sulfates et nitrates sont de bons indicateurs de la reprise de la recharge et d'épisodes d'infiltration rapide (Lasne, 1992 ; Baran, 1999)

L'illustration 15 montre le lien qui peut exister entre les concentrations en chlorures et celles en isotroturon. Les deux pics de chlorure observés au cours du premier semestre 2002 suggèrent que deux épisodes de recharge se sont produits. Des pointes de débit sont également mesurées à ces périodes (cf. ill. 10b) ; l'importance relative des pics de débit en mars et avril n'est toutefois pas la même que celle des pics de chlorures. Cette infiltration rapide s'est produite à l'époque des applications agricoles de l'IPU (février-mars) et pendant les 2-3 mois suivants, époques où l'IPU est encore mobilisable.

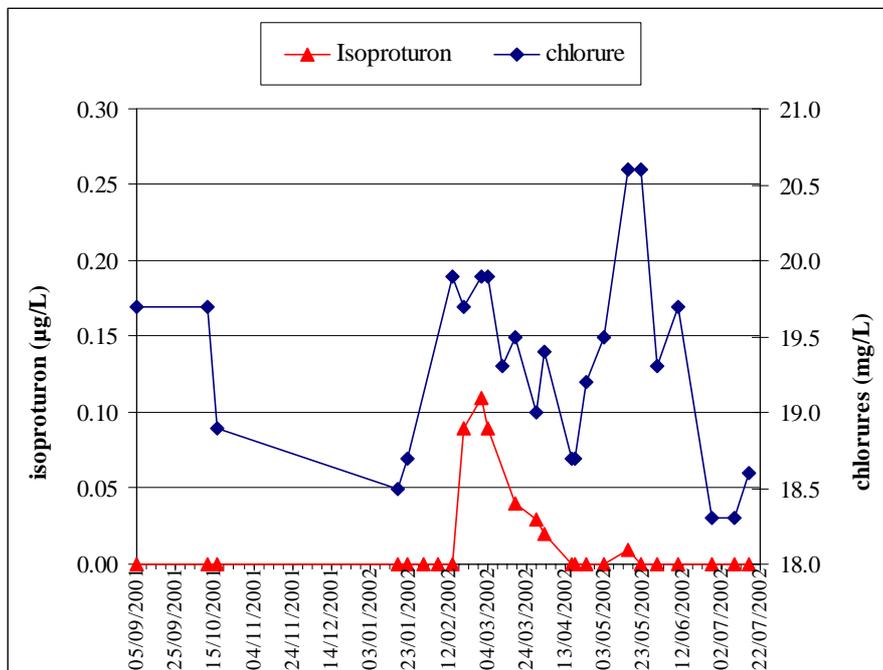


Illustration 15 - Évolution des concentrations en chlorure et isotroturon aux sources des Trois Fontaines (septembre 2001 à juillet 2002).

Dans ces conditions, l'eau d'infiltration rapide a été capable d'entraîner une quantité d'IPU suffisante pour engendrer le pic très marqué de février-avril 2002 et la détection d'IPU en mai 2002 (les valeurs reportées comme égales à zéro sont en fait inférieures à la limite de détection ; par rapport aux limites de détection de 0,05 µg/L données au chapitre 4.1, les valeurs peuvent être plus faibles, comme c'est le cas ici où des chromatogrammes particulièrement propres permettent une détection à des niveaux particulièrement bas, même si l'incertitude augmente très fortement à d'aussi bas niveaux).

Bien que les nitrates ne soient pas l'objectif majeur des travaux présentés ici, l'illustration 16 présente à titre indicatif l'évolution des teneurs en nitrates au cours du temps. Les valeurs sont toujours supérieures à 50 mg/L ; après une tendance à l'augmentation des teneurs en 2001, les valeurs semblent s'être stabilisées en 2002 et tendent à décroître légèrement en 2003. Tout au long de cette période, des pics se surimposent à la tendance générale et pourraient résulter d'épisodes d'infiltration rapide. Les variations relatives des concentrations sont toutefois très faibles, de l'ordre de 15 %, et dépassent à peine l'incertitude analytique pour cette gamme de concentration, estimée à 7-10 %.

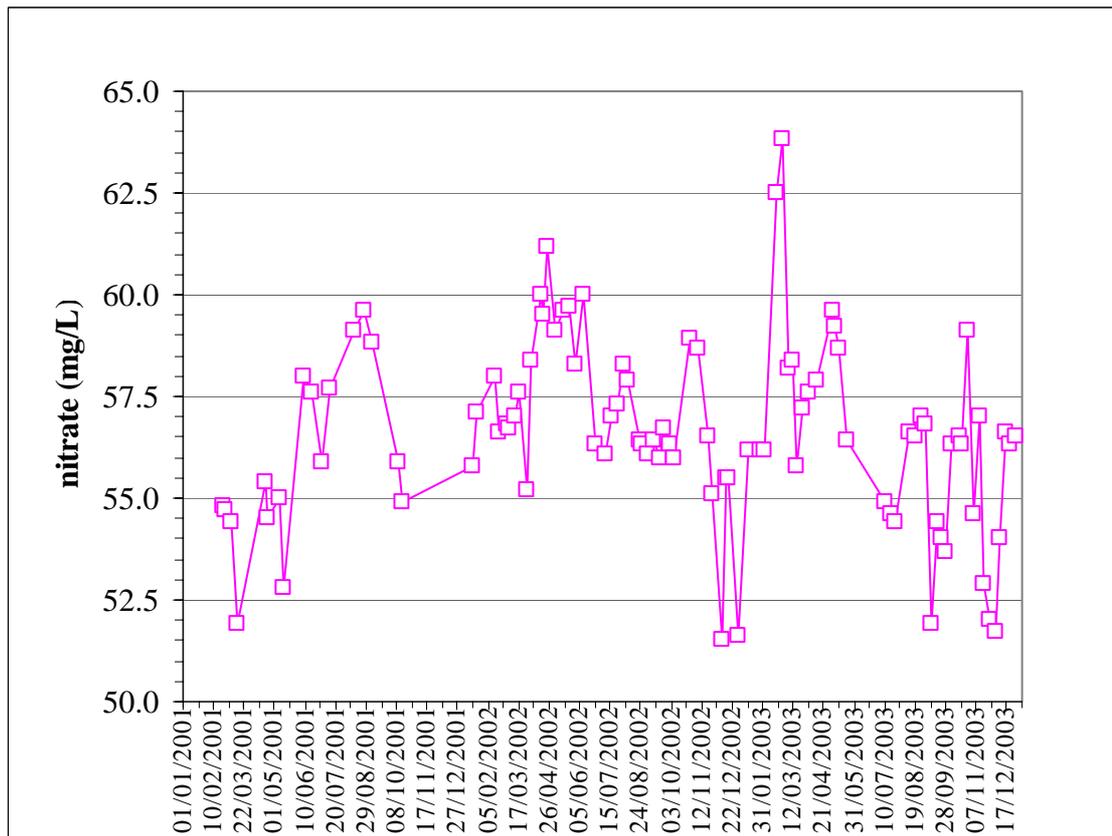


Illustration 16 - Évolution des concentrations en nitrate aux source des Trois Fontaines (janvier 2001 à décembre 2003).

5. Modélisation distribuée des transferts d'eau et de phytosanitaires

5.1. LE MODÈLE DISTRIBUÉ MARTHE ET LA CONSTRUCTION DU MODÈLE PHYSIQUE

Les caractéristiques du logiciel utilisé (MARTHE version 6.2 de juin 2002, développé au BRGM) et la construction du modèle physique représentant le système hydrologique des Trois Fontaines ayant été décrites en détail dans un rapport antérieur (Mouvet *et al.*, 2002), seuls quelques rappels sont donnés ici.

MARTHE est un logiciel de modélisation hydrodynamique utilisant la technique des différences finies et pouvant traiter de nombreuses configurations d'écoulements, en 2D (plan ou coupe verticale), en 3D ou en multicouches, en zone saturée et/ou en zone non saturée, en régime d'écoulement permanent ou transitoire. MARTHE permet également de simuler le transfert de produits non réactifs (du type bromure), ainsi que celui de produits interagissant avec la matrice, comme le font les pesticides, par une prise en compte dans le modèle des phénomènes de dégradation et de sorption.

Le modèle physique représentant le système hydrologique des Trois Fontaines a été construit à partir de la carte géologique de la zone (Pomerol, 1988), de données de forages référencés à la Banque des données du Sous-Sol (BSS). Le modèle des Trois Fontaines peut être décomposé en trois grands niveaux superposés dont les propriétés influençant l'hydrodynamique et le devenir des pesticides sont très contrastées :

- recouvrement de surface (limons lessivés ou limons dégradés ou colluvions) d'une épaisseur variant entre 0,3 et 3 m ;
- complexe argilo-sableux à silex d'une épaisseur variant de 0 à 25 m environ ; faute d'information complémentaire (l'épaisseur de ce niveau est très difficile à déduire et semble avoir une grande variabilité spatiale, Lasne, 1992), on utilise dans le modèle une épaisseur constante de 8 m (sauf dans les vallées sèches où cette couche disparaît) ;
- craie.

La définition du pourtour du domaine repose sur les cartes piézométriques établies à différentes dates (septembre 1990, février 1988, mars 2003), qui montrent des limites du système hydrogéologique stables, limites qui ont été retenues pour délimiter l'extension du modèle.

Afin de conserver un nombre de mailles raisonnable tout en appréhendant la variabilité topographique et pédologique du bassin, la résolution horizontale correspond à un découpage en mailles de 250 m de côté. Pour la résolution verticale, la cote

topographique utilisée est la cote moyenne sur les mailles de 250 m du MNT IGN à 50 m de résolution.

Le domaine modélisé a été divisé en six couches dont l'épaisseur respective est de 30 cm, 30 cm, 1 m (ces trois couches correspondent aux trois principaux horizons de sol), 8 m (complexe argilo-sableux à silex), 16 m (partie supérieure de la craie), et complément (partie inférieure de la craie) jusqu'au substratum, dont la cote est fixée à 90 m sur l'ensemble du domaine.

5.2. MODÉLISATION DES TRANSFERTS D'EAU DANS LE BASSIN

5.2.1. Rappel des travaux réalisés en 2001 et 2002

Ces travaux ont pris en compte des paramètres (propriétés hydrodynamiques de chaque couche du modèle physique, précipitations et évapotranspiration potentielle, conditions limites et conditions initiales) avec des valeurs associées qui ont également été définies dans le rapport précédent (Mouvet *et al.*, 2002).

Avec cet ensemble de conditions, les valeurs absolues du débit à la source et les tendances d'évolution intra- et inter-annuelles sont bien restituées par le modèle pour la période 1993-1998 (ill. 17). La simulation des niveaux piézométriques observés dans un puits situé dans la partie amont non karstifiée du bassin montre que les niveaux simulés sont 8 m au-dessus du niveau observé (ill. 18), une différence qui peut avoir comme origine le niveau pris constant pour le substratum, une des nombreuses hypothèses faites sur la géométrie du système. Par contre, l'amplitude de variation du niveau ainsi que les fluctuations intra- et interannuelles sont correctement simulées.

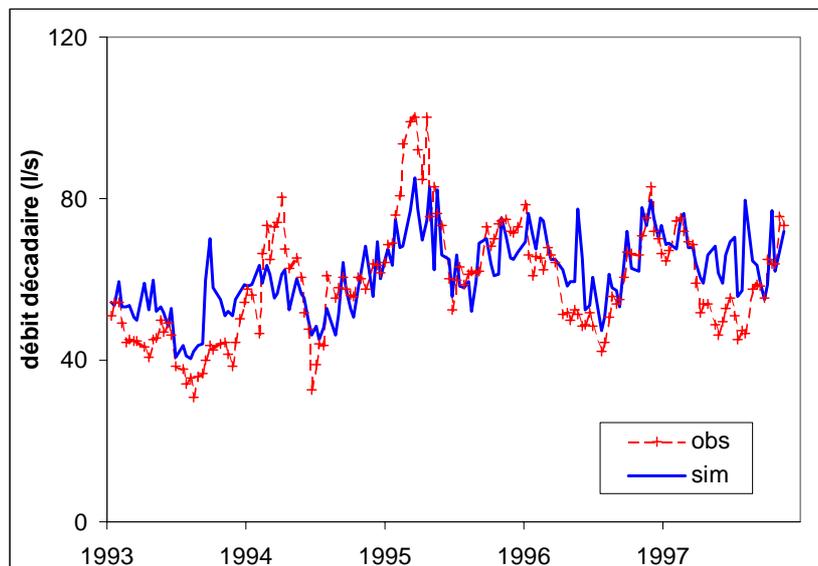


Illustration 17 - Comparaison des débits observés (obs) et simulés (sim) au niveau des sources des Trois Fontaines entre 1993 et 1998.

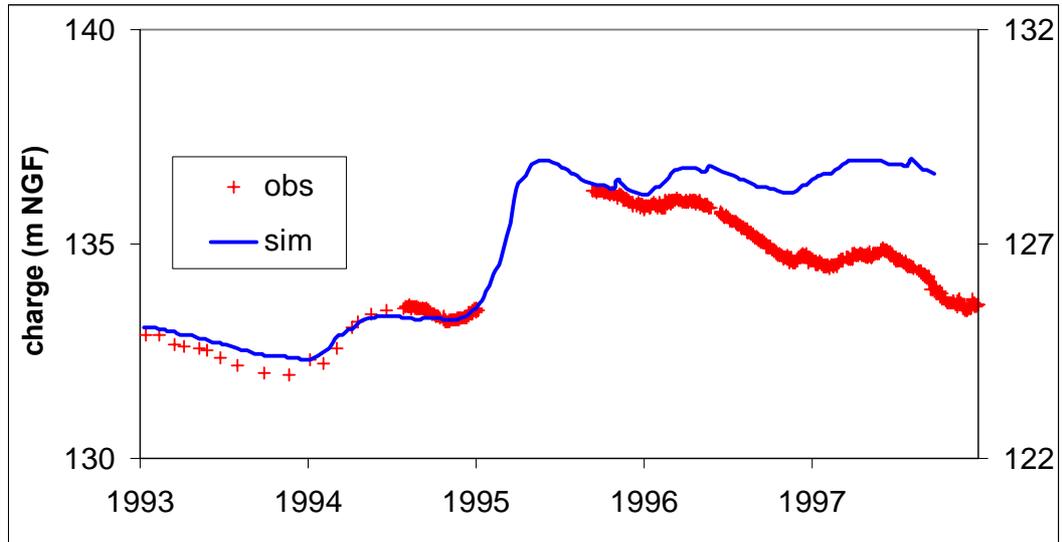


Illustration 18 - Comparaison des niveaux observés (obs., axe de gauche) et des niveaux simulés (sim, axe de droite) pour le puits des Grands Buissons.

Cet ensemble de travaux a été repris en 2003 et 2004, grâce à l'attribution par le STUDIUM d'un poste de chercheur associé, le Dr. Wieslaw Fialkiewicz. Les objectifs étaient de progresser dans la modélisation 2D, d'étendre la période simulée en utilisant notamment les nouvelles données acquises sur les débits et les niveaux piézométriques, et d'aborder la modélisation 3D aussi bien pour l'hydrodynamique que pour le transport de phytosanitaires.

5.2.2. Travaux réalisés en 2003 et 2004

a) Modélisation hydrodynamique en 2 dimensions (2 D)

Les travaux complémentaires réalisés sur le modèle 2D ont consisté à :

- corriger la topographie de la source ;
- modifier la distribution par classe des zones de perméabilité de la craie. Cette modification aboutit à 27 zones continues : 10 pour le drain lui-même et 17 pour la craie non karstifiée. La forme du drain est respectée, mais il y a quelques différences aux extrémités afin de mieux représenter les puits ;
- simplifier par zone les perméabilités ainsi obtenues ; cette optimisation aboutit à cinq zones pour le drain et dix pour la matrice (ill. 19), avec un critère d'erreur en fin de calage de 0,69 %.

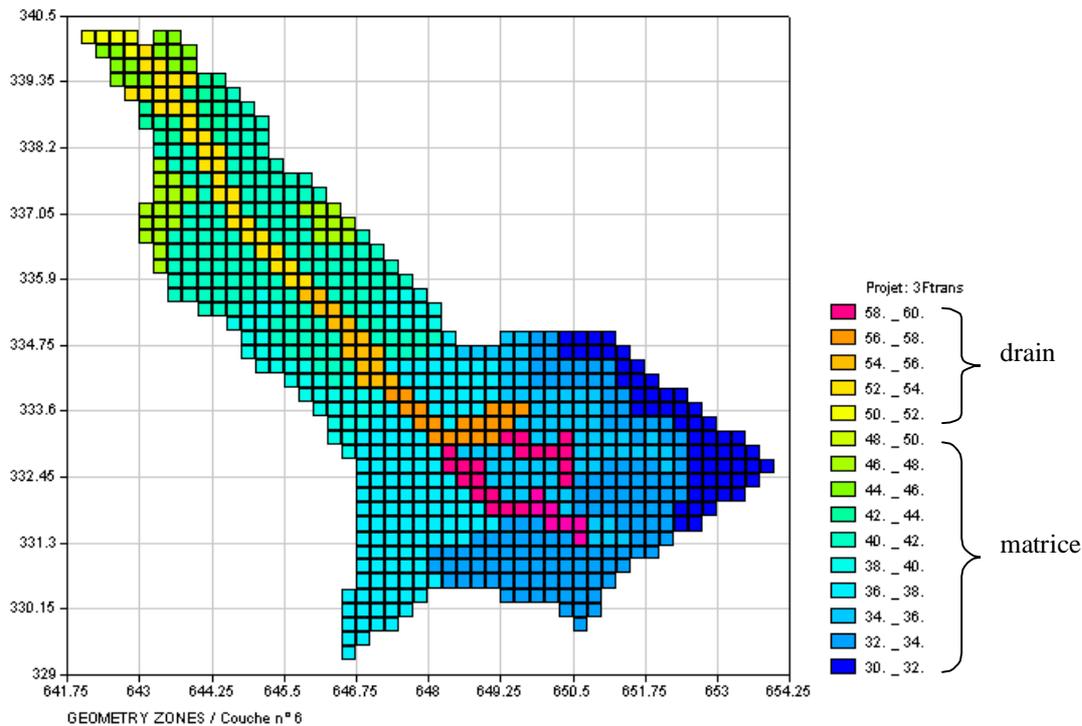


Illustration 19 - Nouvelle géométrie des zones de perméabilité de la craie dans le modèle 2D utilisé en 2003 (chaque couleur correspond à une zone différente).

b) Modèle hydrodynamique en 3D

• Loi de rétention

Les valeurs des paramètres de la zone non saturée ont été modifiées par rapport aux valeurs antérieures (Mouvet *et al.*, 2002), à partir des données et informations fournies par N. Baran (communications personnelles, et Baran, 1996, p. 63 et 65) et après ajustement d'une loi de rétention à ces données. Les meilleurs ajustements obtenus avec le modèle d'ajustement RETC (Van Genuchten, 1991) ont été retenus.

Les données de sols retenues pour caractériser les limons sont celles des sols des Noirault à la profondeur de 20 cm et des sols des Carrés à la profondeur de 20 cm. Pour la caractérisation des argiles, ce sont les sols de Carrés à la profondeur de 80 cm qui sont utilisés. Cette prise en compte des nouvelles données induit essentiellement une réduction de l'emmagasinement des argiles (la teneur en eau à saturation, Θ_{Sat} , passe de 38 à 33 % et la teneur en eau résiduelle, $\Theta_{Rés}$, passe de 7 à 18 %).

• Loi de perméabilité

Sur la base d'informations publiées dans la thèse de N. Baran (Baran, 1996), une modification majeure a été apportée à la perméabilité à saturation des argiles à silex, qui passe de 10^{-7} à 10^{-4} m/s. Les argiles se retrouvent plus perméables que la craie (10^{-6} m/s), la loi de perméabilité restant celle dérivée de Mualem-Van Genuchten. Il faut reconnaître que la formation dite des argiles à silex n'est pas toujours une formation faiblement perméable (il existe de nombreux cas en région Centre où les argiles à silex ne constituent pas une protection efficace de la nappe de la craie). Une telle valeur de perméabilité à saturation paraît surprenante, mais elle n'est pas forcément choquante.

• Convergence du modèle et temps d'initialisation

Avec les nouveaux paramètres introduits, la convergence est très correcte. Il n'y a pas d'oscillations contrairement aux simulations précédentes. En partant de conditions initiales saturées à 100 %, avec une infiltration constante, l'équilibre est atteint en 6 ou 7 ans (contre 48 ans dans des simulations précédentes). Le gain de temps est appréciable, mais la simulation nécessite tout de même plusieurs heures.

• Premières tentatives de calage

Les résultats de la simulation la plus satisfaisante avec les conditions décrites ci-dessus sont présentés dans l'illustration 20. Elles correspondent à un état initial résultant d'un calcul en régime pseudo-permanent (c'est-à-dire transitoire avec une infiltration constante), un emmagasinement ($\Theta_{\text{Sat}} - \Theta_{\text{Rés}}$) des argiles maximisé par l'abaissement de 18 à 0 % des teneurs en eau résiduelle, et une diminution de la perméabilité à saturation dans la zone proche de l'exutoire (zone 51 : 4 mailles, ill. 19).

Dans la gamme où les valeurs de débits mesurés sont fiables (jusqu'à 160-180 l/s, cf. ill. 5 et 6), les valeurs simulées diffèrent en valeur relative d'environ 15 % par rapport aux valeurs mesurées, avec une bonne reconstitution des cycles annuels, dont l'intensité des épisodes d'étiage est toutefois surestimée par la modélisation en 1990 et dans les années 1996 à 1998.

Les niveaux piézométriques observés dans les deux puits situés dans la partie amont non karstifiée du bassin sont 8-10 m au-dessus du niveau simulé (ill. 21 et 22). Cette différence peut avoir comme origine le niveau pris constant pour le substratum, une des nombreuses hypothèses faites sur la géométrie du système. Par contre, l'amplitude de variation ainsi que les fluctuations intra- et inter-annuelles sont correctement simulées, et ceci sur une période de 15 ans alors que les résultats précédents, en 2D (cf. ill. 18), ne concernaient que 4 ans.

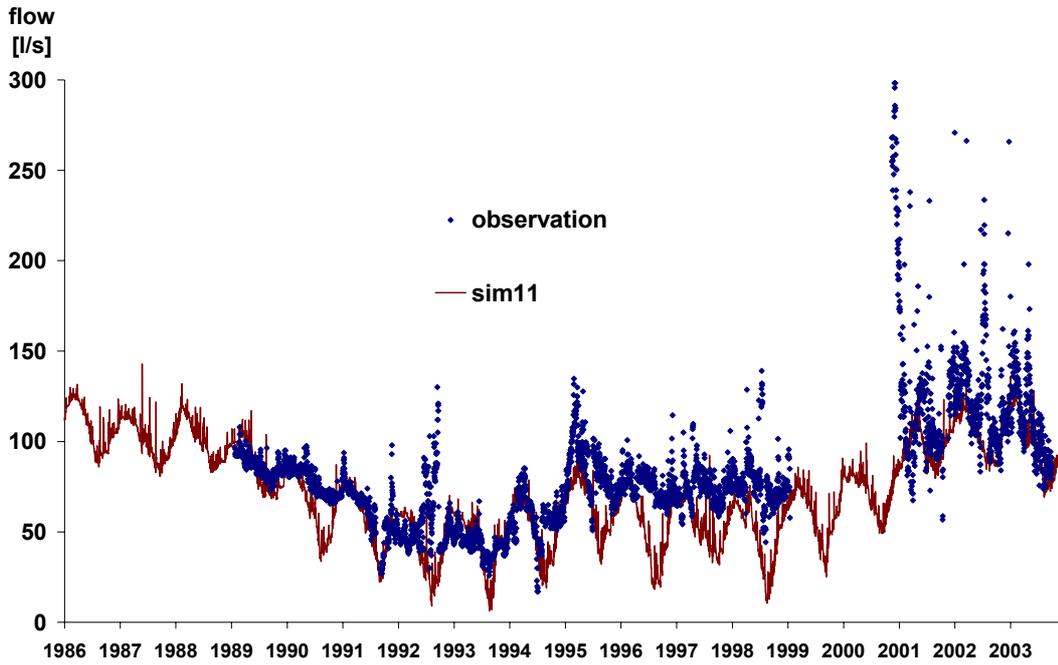


Illustration 20 - Comparaison entre débits modélisés (ligne continue) et débits mesurés (points) à la source des Trois Fontaines sur la période 1986-2003 par l'approche 3D telle qu'optimisée à la fin des travaux de 2003.

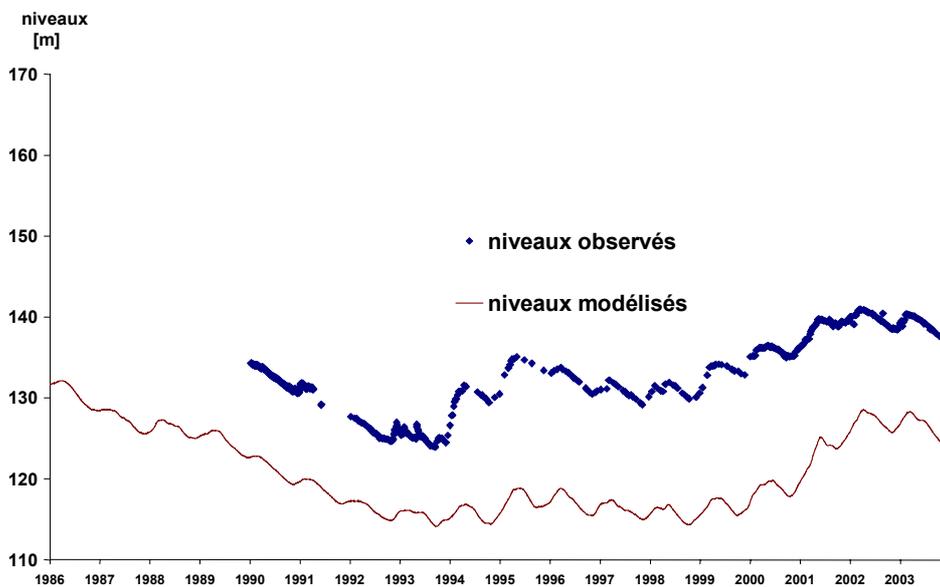


Illustration 21 - Comparaison entre niveaux piézométriques modélisés (ligne continue) et mesurés (points) au puits de la Bissaugerie sur la période 1986-2003 par l'approche 3D telle qu'optimisée à la fin des travaux de 2003.

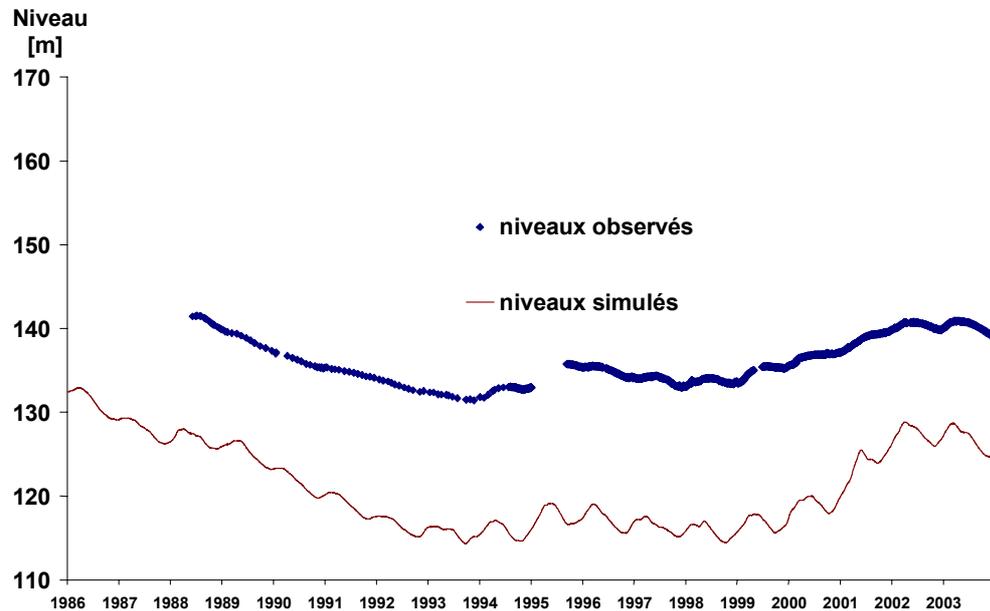


Illustration 22 - Comparaison entre niveaux piézométriques modélisés (ligne continue) et mesurés (points) au puits des Grands Buissons sur la période 1986-2003 par l'approche 3D telle qu'optimisée à la fin des travaux de 2003.

• Calage final du modèle

Les derniers travaux de modélisation purement hydrodynamique, menés en 2004, ont consisté en des calages manuels visant à améliorer encore l'ajustement des valeurs modélisées par rapport aux observations. Dans ce but, on a diminué la capacité de rétention en eau de toutes les couches du modèle, augmenté la conductivité hydraulique à saturation des limons dégradés, limons lessivés et argile à silex, et diminué la conductivité hydraulique à saturation dans certaines zones de la craie (ill. 23). Par ailleurs, la période d'initialisation du modèle a été étendue de trois ans, avec des conditions initiales résultant d'une simulation en régime pseudo-permanent avec une infiltration 1,5 fois supérieure à ce qu'elle avait été considérée auparavant.

Tant pour les débits simulés à la source (ill. 24) que pour les niveaux au puits de la Bissaugerie (ill. 25), les résultats des simulations sont globalement un peu meilleurs que ceux obtenus avec les paramètres hydrodynamiques obtenus à la fin des travaux de 2003. Les deux principales modifications, diminution de la capacité de rétention en eau de la matrice crayeuse et augmentation de la conductivité hydraulique à saturation du niveau argileux, engendrent une réponse hydrodynamique plus rapide du système suite aux épisodes d'infiltration.

Couche du modèle	Code MARTHE de la zone	θ_{sat} %	θ_{res} %	h_t m	b_t -	K_{sat} m/s
Limon dégradé	1, 12	29,85	10	11,126	0,554	$1,16 \cdot 10^{-4}$
Limon lessivé	11	20,78	6	11,356	0,467	$3,47 \cdot 10^{-4}$
Colluvions	13	20,78	6	11,356	0,467	$3,47 \cdot 10^{-4}$
Argile à silex	2, 20	33,3	0	2,928	0,868	$1,16 \cdot 10^{-4}$
Craie, matrice	30	10,9	10	0,50	0,714	$1,0 \cdot 10^{-5}$
	31	10,9	10	0,50	0,714	$2,9 \cdot 10^{-6}$
	32	10,9	10	0,50	0,714	$1,97 \cdot 10^{-6}$
	33, 34	10,9	10	0,50	0,714	$9,41 \cdot 10^{-6}$
	35, 36	10,9	10	0,50	0,714	$2,87 \cdot 10^{-5}$
	37	10,9	10	0,50	0,714	$1,45 \cdot 10^{-5}$
	38	10,9	10	0,50	0,714	$2,05 \cdot 10^{-5}$
	39	10,9	10	0,50	0,714	$6,24 \cdot 10^{-6}$
	40	10,9	10	0,50	0,714	$8,08 \cdot 10^{-6}$
	41	10,9	10	0,50	0,714	$7,79 \cdot 10^{-6}$
	42	10,9	10	0,50	0,714	$8,99 \cdot 10^{-6}$
	43	10,9	10	0,50	0,714	$1,9 \cdot 10^{-4}$
	44	10,9	10	0,50	0,714	$4,08 \cdot 10^{-6}$
	45	10,9	10	0,50	0,714	$3,17 \cdot 10^{-5}$
46	10,9	10	0,50	0,714	$4,28 \cdot 10^{-6}$	
47	10,9	10	0,50	0,714	$2,87 \cdot 10^{-5}$	
Craie, axe de drainage	51	19	10	0,50	0,714	$4,03 \cdot 10^{-3}$
	52	19	10	0,50	0,714	$6,46 \cdot 10^{-3}$
	53	19	10	0,50	0,714	$1,21 \cdot 10^{-2}$
	54	19	10	0,50	0,714	$1,39 \cdot 10^{-3}$
	55	19	10	0,50	0,714	$6,77 \cdot 10^{-3}$
	56	19	10	0,50	0,714	$6,22 \cdot 10^{-3}$
	57	19	10	0,50	0,714	$1,39 \cdot 10^{-3}$
	58	19	10	0,50	0,714	$1,24 \cdot 10^{-3}$
	59	19	10	0,50	0,714	$1,72 \cdot 10^{-3}$
60	19	10	0,50	0,714	$6,9 \cdot 10^{-4}$	

Illustration 23 - Valeurs finales prises en compte pour les paramètres hydrodynamiques après les derniers calages manuels du modèle hydrodynamique en 3 dimensions.

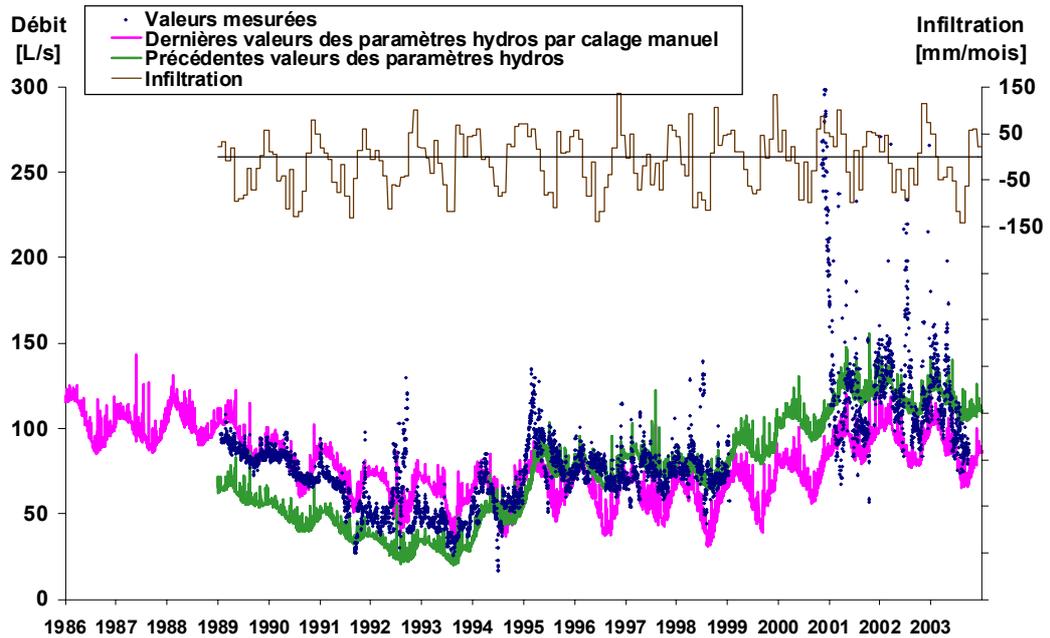


Illustration 24 - Comparaison à la source des Trois Fontaines sur la période 1986-2003 entre les débits mesurés (points) et les débits modélisés (lignes continues) par l'approche 3D, soit avec les paramètres hydrodynamiques les mieux calés à la fin des travaux de 2004, soit avec d'autres valeurs précédentes de ces paramètres hydrodynamiques.

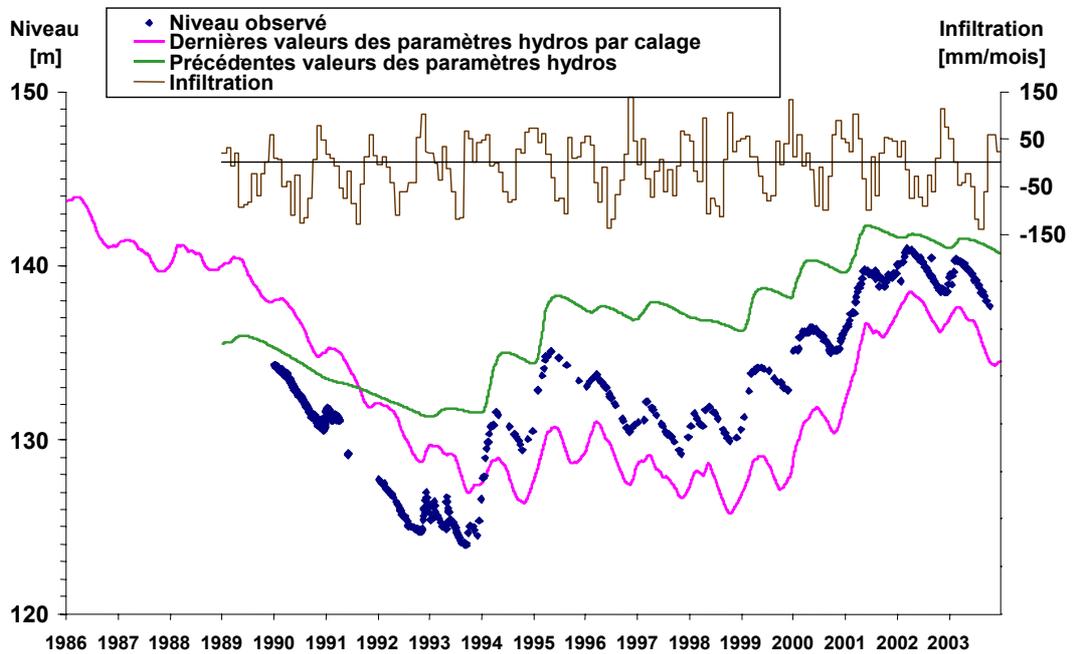


Illustration 25 - Comparaison au puits de la Bissaugerie sur la période 1986-2003 entre les niveaux mesurés (points) et les niveaux modélisés (lignes continues) par l'approche 3D, soit avec les paramètres hydrodynamiques les mieux calés à la fin des travaux de 2004, soit avec d'autres valeurs précédentes de ces paramètres hydrodynamiques.

• Conclusion

Dans le cadre des objectifs et des moyens disponibles pour les travaux présentés ici, les résultats des simulations en régime transitoire et en 3 dimensions peuvent être considérés comme encourageants, notamment par rapport à la complexité du système étudié. La difficulté de ce type de modélisation est d'ailleurs attestée par le très faible nombre d'articles scientifiques où les niveaux piézométriques ou les débits modélisés correspondent bien aux observations (Brouyère *et al.*, 2004).

Il faut par ailleurs rappeler que le manque d'information géologique (géométrie des réservoirs et distribution des faciès lithologiques) constitue une contrainte majeure pour le calage du modèle. Le manque de données sur l'épaisseur et la continuité des couches prises en compte dans le modèle constitue une limitation majeure à l'atteinte d'une solution modélisée unique, optimale et dont on puisse garantir qu'elle corresponde entièrement à la réalité naturelle du site.

5.3. MODÉLISATION DES TRANSFERTS DE PESTICIDES DEPUIS LA SURFACE DES SOLS JUSQUE DANS LA NAPPE

5.3.1. Occupation du sol, périodes et doses d'application, dispersivité, coefficient d'adsorption, dégradation

Le bassin d'alimentation des Trois Fontaines est occupé par l'agriculture (80 %), des forêts (12 %) et des habitations, routes et autres surfaces imperméabilisées (8 %). Pour les années culturales 1992-1993, 1993-1994 et 1994-1995, le blé a été cultivé sur 53, 49 et 46 % de la Surface Agricole Utile (SAU), et le maïs sur 10, 8 et 9 % de la SAU (Baran, 1999). Les deux pesticides pris en compte dans la modélisation sont ceux les plus utilisés sur le bassin, l'atrazine (AT), herbicide du maïs, et l'isoproturon (IPU), herbicide appliqué sur le blé.

L'application de l'atrazine a lieu en général à la fin avril-début mai, avec, dans les années 1997-2003, une dose moyenne de 1 000 g/ha. Avant 1997 par contre, la dose d'application atteignait ou dépassait 2 000 g/ha. Pour l'isoproturon, les applications peuvent avoir lieu fin novembre-début décembre, mais également vers la mi-mars, selon les conditions climatiques. La dose homologuée est de 1 800 g/ha.

Par rapport à la modélisation des transferts d'eau, la modélisation du transport des pesticides nécessite la prise en compte d'une variable supplémentaire, la dispersivité, dont la valeur dépend de l'échelle d'étude. La zone des Carrés, située vers le centre du bassin, est la seule pour laquelle sont disponibles des données détaillées sur les propriétés hydrodynamiques des sols (Baran, 1999) et sur leur capacité de fixer l'IPU étudiées en laboratoire (données BRGM non publiées).

La distance moyenne entre la zone des Carrés et le groupe de sources de Saint-Loup-de-Gonois où sont effectuées les mesures de débit et de concentrations en phytosanitaires est d'environ 10 km. Pour la modélisation dans la zone saturée, la dispersivité a été prise égale à 10 % de cette distance (Gelhar *et al.*, 1992), donnant

une dispersivité longitudinale α_L de 1 000 m. La dispersivité transversale, α_T , est classiquement prise comme 10 % de la dispersivité longitudinale (Gelhar *et al.*, 1992) et est donc fixée à 100 m. Pour la Zone Non Saturée (ZNS), c'est l'épaisseur cumulée des quatre premières couches non saturées du modèle (3 couches de sol + 1 couche d'argile) qui a été prise en compte pour déterminer la dispersivité. Cette épaisseur de 11,6 m correspond à la différence de niveau entre la cote topographique et le début du niveau crayeux. Dans la ZNS, α_L sera donc égal à 1,16 m et α_T égal à 0,116 m. Dans la partie amont du bassin, la partie supérieure de la craie n'est pas saturée et l'épaisseur de ZNS à prendre en compte devrait donc être supérieure à 11,6 m ; toutefois, en l'absence de données spatialisées fiables sur la profondeur à laquelle se trouve le niveau crayeux, la valeur moyenne choisie, 11,6 m, est appliquée sur tout le bassin.

La fraction de carbone organique (f_{oc}) des sols des Carrés varie de 1,1 % pour la profondeur 0-35 cm à 0,1 % pour la profondeur 150-200 cm (Baran, 1999). Pour le calcul, à partir de valeurs de K_{oc} de la littérature, des coefficients d'adsorption des pesticides K_d utilisés dans MARTHE, une valeur de $f_{oc} = 0,5$ % constante sur tout le profil a été choisie en toute première approche. La densité du sol, ρ , a été prise égale à $1,75 \text{ g/cm}^3$ sur tout le profil.

Pour l'atrazine, c'est la valeur de K_{oc} tirée de la base de données de l'USDA, $K_{oc} = 147 \text{ ml/g}$, qui a été prise pour calculer le paramètre ρK_d utilisé par MARTHE pour la sorption :

$$\rho K_d = \rho \cdot f_{oc} \cdot K_{oc} = 1,75 \cdot 0,5 \cdot 10^{-2} \cdot 147 = 1,29 \text{ [vol/vol]}$$

Pour l'isoproturon, c'est au départ une valeur de K_{oc} à dire d'expert, 130 ml/g , qui a été prise pour calculer ρK_d :

$$\rho K_d = \rho \cdot f_{oc} \cdot K_{oc} = 1,75 \cdot 0,5 \cdot 10^{-2} \cdot 130 = 1,13 \text{ [vol/vol]}$$

Des données spécifiques venant d'études de laboratoire sur la sorption de l'IPU avec les sols des Carrés génèrent une valeur de ρK_d de 2,5 pour l'horizon 0-30 cm, et 0,17 pour l'horizon 35-40 cm (données BRGM non publiées). Prendre en première approche une valeur de $\rho K_d = 1,13$ constante sur les premiers 1,6 m du profil apparaît donc raisonnable.

L'adsorption des pesticides a été considérée comme instantanée et suivant un isotherme linéaire.

Pour les premiers essais de transport, la dégradation a été traitée avec une cinétique d'ordre 1 et indépendante de la teneur en eau ou la température. La demi-vie de l'atrazine (DT50) a été choisie égale à 60 j, au milieu de la gamme de valeurs de la base de données AGRITOX (18-119 j). Pour l'isoproturon, la demi-vie sélectionnée est de 20 j, en accord avec la gamme de valeurs, 12 à 32 j, de la base AGRITOX.

5.3.2. Simulation du transport de l'atrazine depuis la surface du sol jusque dans la nappe

Étant donné que les données sur l'emplacement exact des parcelles traitées en AT depuis 20 ans ne sont pas disponibles, le premier jeu de simulations considérait une application uniforme de l'atrazine sur toute la superficie du bassin versant (excepté la maille du modèle physique contenant la source). La dose d'application a donc été ramenée à 0,01 g/m² (équivalent à l'application de 1 000 g/ha, dose moyenne homologuée entre 1997 et 2002, sur tout le bassin) sur 10 % (proportion plausible du maïs par rapport à la SAU totale entre 1989 et 2002) du bassin versant. La date d'application a été systématiquement fixée au 1^{er} mai, ici aussi l'information spatialisée et temporelle exacte n'étant pas disponible. L'adsorption et la dégradation ne sont considérées que dans les trois premières couches du modèle physique, soit entre 0 et 1,6 m. La valeur de pK_d est de 1,29, et $DT_{50} = 60$ j.

Un premier test de sensibilité a été effectué en isolant chacun des deux principaux paramètres non hydrodynamiques contrôlant le transport des pesticides, à savoir l'adsorption et la dégradation. Le fait de ne prendre en compte que la sorption entraîne une augmentation continue des concentrations en AT qui atteignent, à la fin de la période de simulation, des valeurs 20 fois supérieures à celles observées (ill. 26). Une bonne restitution des gammes de concentrations est obtenue en ne prenant en compte que la dégradation ; hormis les trois dernières années, la période, à laquelle se produisent les pics modélisés, est en assez bon accord avec les observations (ill. 27). Toutefois, la prise en compte simultanée des phénomènes de sorption et de dégradation, avec les valeurs initialement choisies de K_d et DT_{50} , sous-estime largement les concentrations observées à la source (ill. 28).

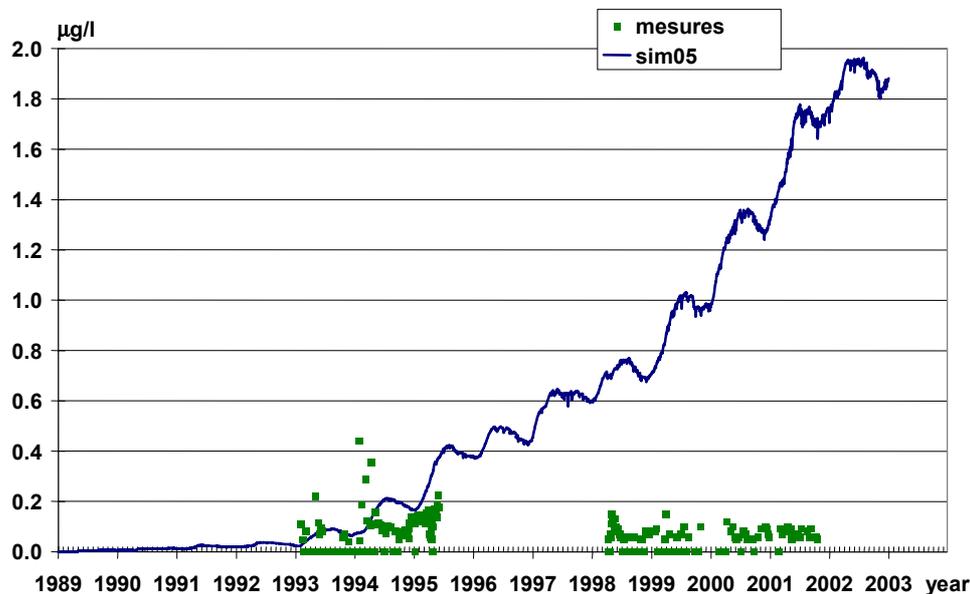


Illustration 26 - Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en ne prenant en compte que l'adsorption ($pK_d = 1,29$) et uniquement dans les trois premières couches du modèle, soit 1,6 m d'épaisseur.

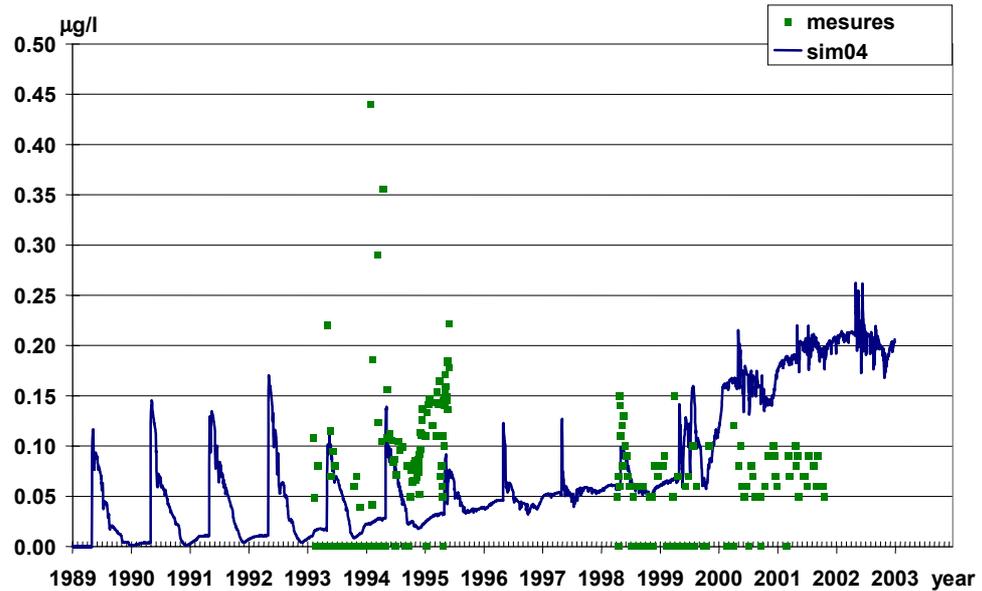


Illustration 27 - Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en ne prenant en compte que la dégradation ($DT50 = 60$ j) et uniquement dans les trois premières couches du modèle, soit 1,6 m d'épaisseur

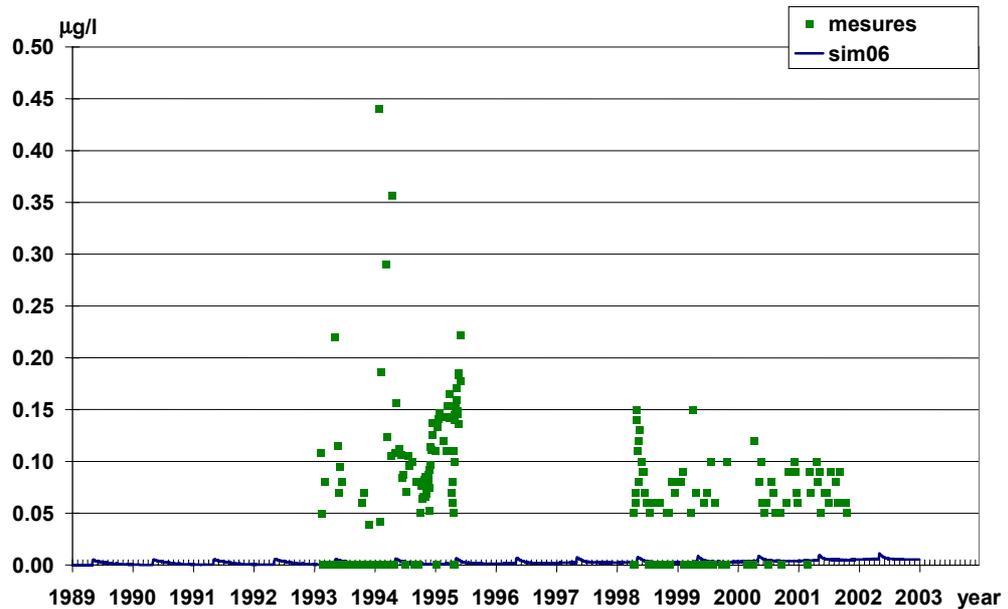


Illustration 28 - Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en prenant en compte l'adsorption ($pKd = 1,29$) et la dégradation ($DT50 = 60$ j) uniquement dans les trois premières couches du modèle, soit 1,6 m d'épaisseur.

On observe que l'effet combiné de l'adsorption et la dégradation, deux phénomènes dont on sait qu'ils doivent en fait être pris en compte simultanément, aboutit à la modélisation de concentrations en AT beaucoup trop faibles à la source.

En raison de ce résultat, un autre scénario a été testé. Il consiste tout d'abord à modifier les valeurs de certains paramètres susceptibles d'augmenter la concentration en AT modélisée dans l'eau de la source. Le paramètre d'adsorption, ρK_d , a été diminué à 0,7 (au lieu de 1,29), la demi-vie, DT50, étant par contre augmentée à 90 j (au lieu de 60) ; une moindre fixation de l'AT et une plus longue durée de vie doivent aboutir à augmenter les concentrations dans la nappe.

Par ailleurs, sorption et dégradation vont être pris en compte sur toute l'épaisseur du système (y compris la zone saturée), mais sans variation en fonction de la profondeur ; il s'agit à nouveau d'une démarche prospective dont la valeur est évidemment limitée par l'absence de données mesurées plus bas que la zone racinaire. Enfin, le nouveau scénario considère que l'AT n'est en fait appliquée que dans la partie aval du bassin, sur 10 % de la superficie totale du bassin (et non sur l'entièreté), avec une dose moyenne de 1 000 g/ha (et non 100 g/ha sur l'ensemble de la SAU, comme c'était le cas dans les premières simulations). La date d'application demeure inchangée.

Quand l'AT est supposée être appliquée dans toute la zone qui entoure la source (ill. 29), les pics de concentrations modélisées augmentent par rapport au scénario d'application sur l'ensemble du bassin versant, mais ils n'atteignent toutefois que le niveau bas des concentrations observées.

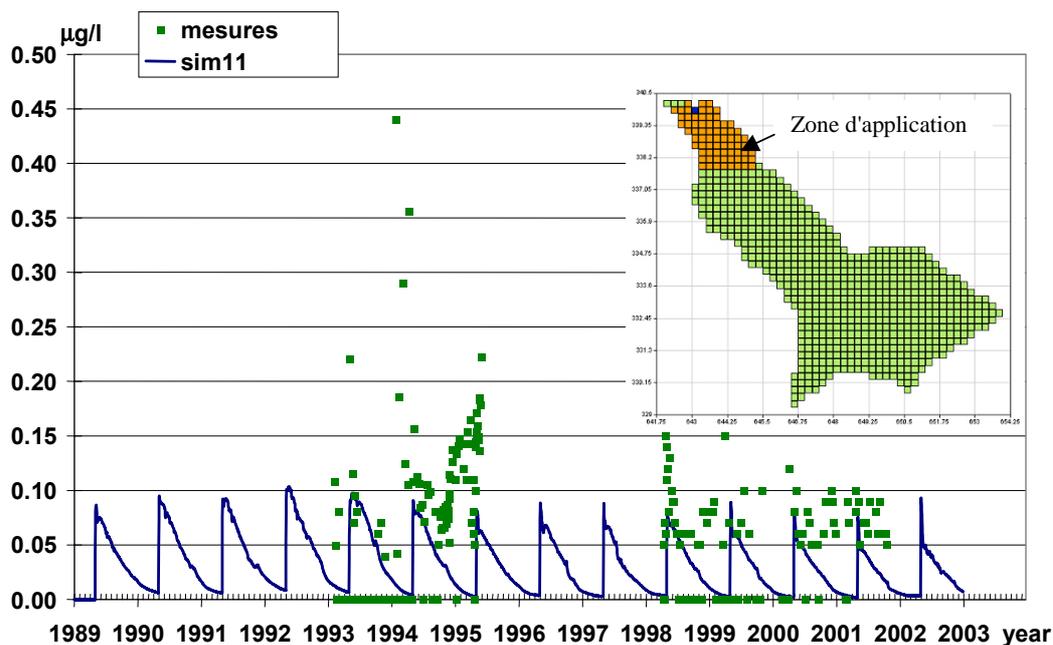


Illustration 29 - Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en prenant en compte l'adsorption ($\rho K_d = 0,7$) et la dégradation ($DT50 = 90$ j) dans toutes les couches du modèle et en considérant que l'atrazine n'est appliquée que dans la zone aval (correspondant à 10 % de la SAU), mais y compris dans trois mailles contiguës à la source qui est localisée dans la maille noire.

Par contre, si la zone d'application est légèrement décalée de manière à ne plus recouvrir qu'une seule maille (correspondant à une hypothétique parcelle de 250 m * 250 m) contiguë à la maille du modèle contenant la source, les concentrations modélisées (ill. 30) sont radicalement réduites.

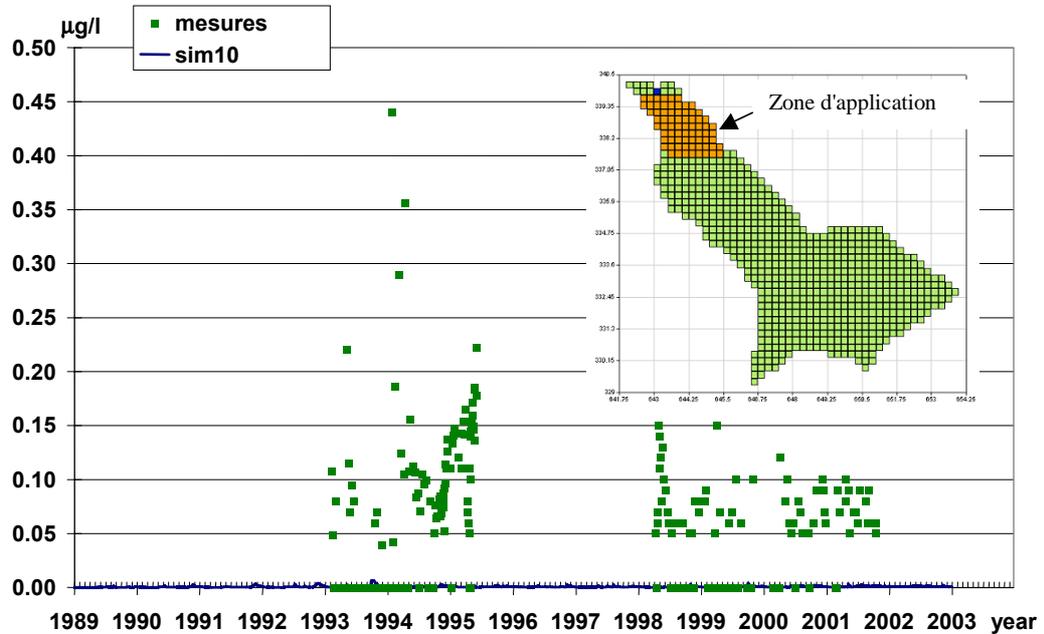


Illustration 30 - Comparaison à la source des Trois Fontaines entre concentrations en atrazine observées (symboles) et modélisées en prenant en compte l'adsorption ($\rho K_d = 0,7$) et la dégradation ($DT50 = 90$ j) dans toutes les couches du modèle et en considérant que l'atrazine n'est appliquée que dans la zone aval (correspondant à 10 % de la SAU) mais avec une seule maille contiguë à la source, cette dernière étant localisée dans la maille noire

Ces deux scénarios montrent que pour une simulation relativement satisfaisante des concentrations dans l'eau de la source, un des paramètres clés est la localisation exacte des parcelles traitées. À l'échelle d'un système hydrogéologique à la SAU très morcelée, comme c'est le cas ici en raison du grand nombre d'agriculteurs, ces données ne sont malheureusement pas disponibles actuellement sur un historique de 14 années.

Par ailleurs, le fait que les coefficients d'adsorption et de dégradation soient pris comme invariants selon la profondeur correspond à une simplification rendue nécessaire au début des travaux par le manque de données plus précises. D'autres simulations effectuées avec différentes approches visant à prendre en compte la diminution de la dégradation de l'atrazine au fur et à mesure que la profondeur augmente ont été effectuées ; elles seront présentées en 5.3.4.

5.3.3. Simulation du transport de l'isoproturon depuis la surface du sol jusque dans la nappe

Faute de données précises sur l'ensemble des parcelles et sur les 14 années de la simulation, la date d'application de l'IPU est fixée chaque année au 1^{er} mars.

Le premier jeu de simulations considère une application uniforme de l'IPU sur tout le bassin versant. La dose d'application est prise égale à 0,09 g/m², ce qui équivaut à l'application de 1 800 g/ha sur 50 % de la surface totale. L'adsorption, avec un $pK_d = 1,13$, et la dégradation, avec une demi-vie de 20 j, sont prises en compte dans toutes les couches du modèle y compris la zone saturée. Avec ces conditions initiales, les pics modélisés d'IPU dans l'eau de la source sont présents chaque année, ce qui n'est pas observé dans la réalité, et sont beaucoup trop faibles par rapport aux valeurs des pics observés (ill. 31).

Une autre simulation, effectuée en considérant que la sorption et la dégradation se produisent seulement dans les trois premières couches du modèle (profondeurs de 0 à 1,6 m), montre des pics qui ont exactement les mêmes concentrations que si sorption et dégradation sont prises en compte sur toute la profondeur (et donc aussi dans la zone saturée, ill. 31), mais génère un début d'augmentation du bruit de fond les deux dernières années (ill. 32). Cette apparition d'un bruit de fond traduit la pénétration progressive en profondeur de l'IPU qui atteint la zone où la sorption et dégradation ne sont plus considérées actives (à partir de 1,6 m), traverse ensuite toute la zone non saturée puis atteint la zone saturée et aboutit à la source.

Le changement de scénario qui consiste à n'appliquer l'IPU que sur 50 % de la superficie totale n'est pas suffisant pour améliorer l'adéquation entre valeurs modélisées et observées.

Une autre série de simulations a donc été effectuée, en diminuant le paramètre d'adsorption qui passe à 0,7 (au lieu de 1,13) et en augmentant la demi-vie qui passe à 32 j (au lieu de 20). Ces nouvelles valeurs restent compatibles avec les données de la base AGRITOX. L'adsorption et la dégradation ne sont prises en compte que jusqu'à 1,6 m de profondeur, ce qui correspond aux trois couches supérieures du modèle. Un autre changement consiste à faire l'hypothèse que l'application n'est pas uniforme sur le bassin versant, mais qu'elle s'effectue en fait à la dose nominale de 1 800 g/ha sur les 50 % aval du bassin d'alimentation.

Avec cet ensemble de modifications, les résultats de la simulation des pics sont meilleurs (ill. 33), bien que les pics simulés, 0,15 µg/L, restent très inférieurs aux valeurs maximales observées, 0,8 µg/L, et apparaissent chaque année, ce qui n'est pas le cas dans la réalité. En éloignant la zone d'application de quelques centaines de mètres (quelques mailles du modèle physique) par rapport à la source (ill. 34), les concentrations à la source sont très amorties, avec l'absence de pics saisonniers significatifs, et montrent une augmentation progressive du bruit de fond (0,1 µg/L) à partir de la 7^e année de modélisation. Cette augmentation confirme que le modèle engendre un transfert de l'IPU au sein de la zone non saturée au fur et à mesure que la période modélisée s'allonge, avec une arrivée progressive dans la zone saturée.

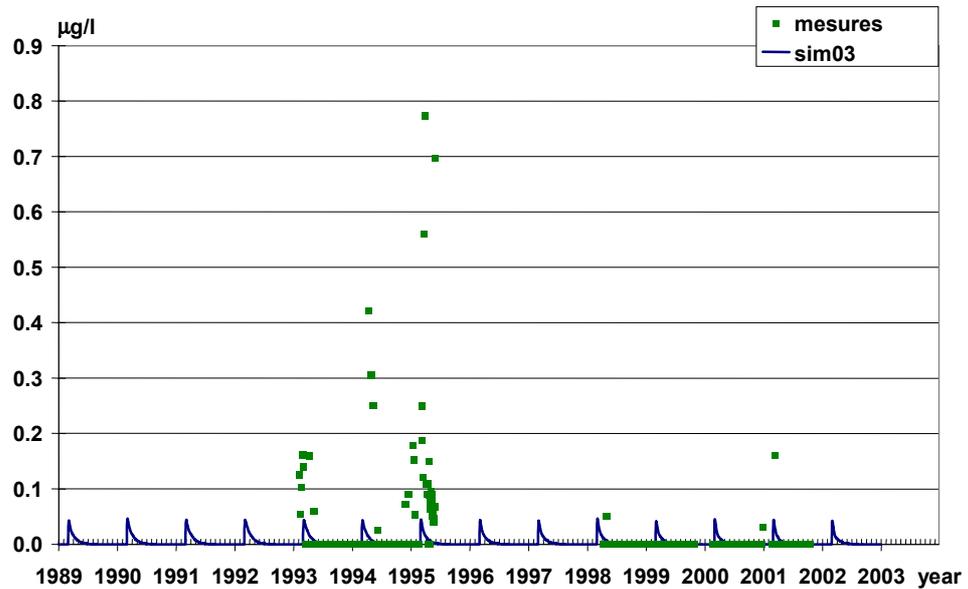


Illustration 31 - Comparaison entre les concentrations en IPU observées (symboles) et celles modélisées en prenant en compte l'adsorption ($\rho Kd = 1,13$) et la dégradation ($DT\ 50 = 20\ j$) dans toutes les couches du modèle physique.

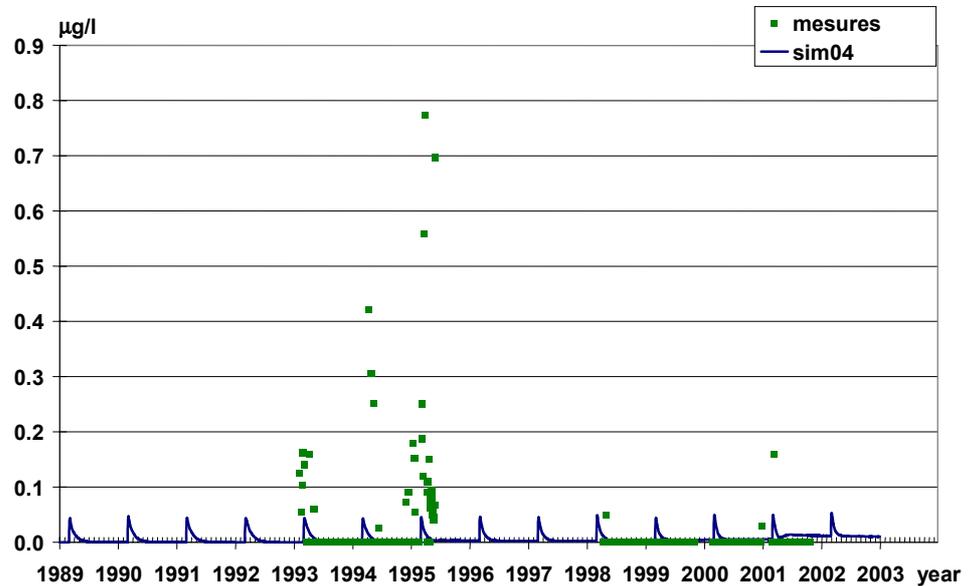


Illustration 32 - Comparaison entre les concentrations en IPU observées (symboles) et celles modélisées en ne prenant en compte l'adsorption ($\rho Kd = 1,13$) et la dégradation ($DT\ 50 = 20\ j$) que jusqu'à 1,6 m de profondeur, soit dans les trois premières couches du modèle physique.

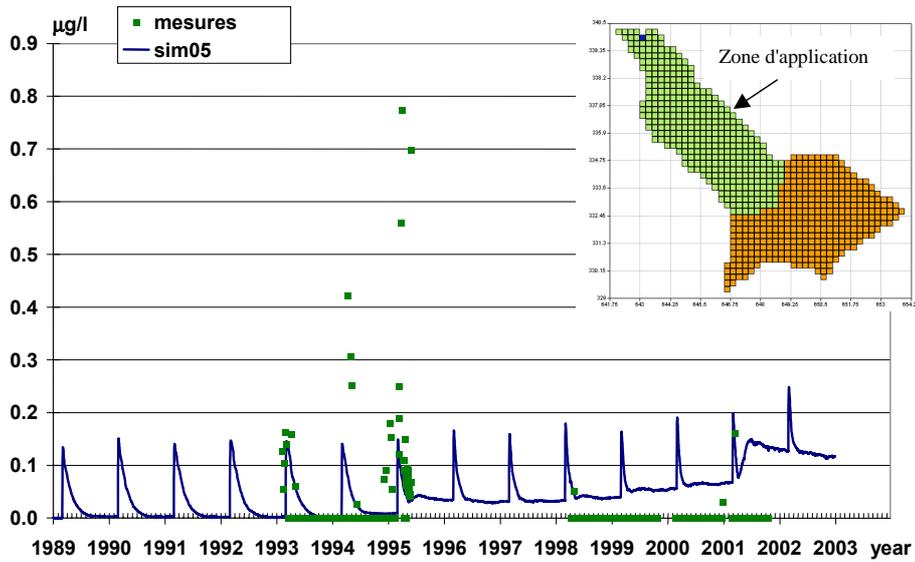


Illustration 33 - Comparaison entre les concentrations en IPU observées (symboles) et celles modélisées en prenant en compte la sorption ($\rho K_d = 0,7$) et la dégradation ($DT_{50} = 32$ j) sur une épaisseur de terrain limitée à 1,6 m de profondeur et en considérant que l'IPU n'est appliqué que dans la zone aval (correspondant à 50 % de la SAU) mais dans toutes les mailles contiguës à la source.

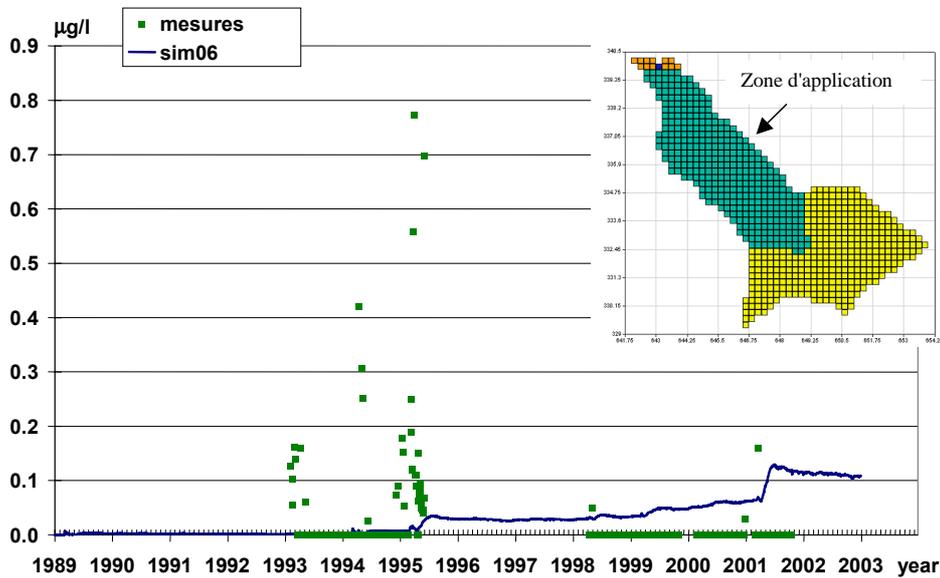


Illustration 34 - Comparaison entre les concentrations en IPU observées (symboles) et celles modélisées en prenant en compte la sorption ($\rho K_d = 0,7$) et la dégradation ($DT_{50} = 32$ j) sur une épaisseur de terrain limitée à 1,6 m de profondeur et en considérant que l'IPU n'est appliqué que dans la zone aval (correspondant à 50 % de la SAU) mais dans une seule maille contiguë à la source.

D'autres simulations effectuées avec différentes approches visant à prendre en compte la diminution de la dégradation de l'IPU au fur et à mesure que la profondeur augmente ont été effectuées ; elles sont présentées ci-dessous.

5.3.4. Influence de la prise en compte d'une dégradation variable selon la profondeur et de nouvelles valeurs pour la sorption

Une des hypothèses, très critiquables dans l'approche de modélisation présentée jusqu'ici, est le fait que la dégradation soit considérée constante sur tout le profil vertical modélisé, y compris dans la zone saturée. Or de nombreux travaux ont montré que dans les sols, la demi-vie des pesticides augmente avec la profondeur (Johnson et Sims, 1993 ; Johnson *et al.*, 2000). Plus bas que la zone racinaire, les choses sont moins claires, mais les rares résultats disponibles (Albrechtsen *et al.*, 2003 ; Mills *et al.*, 2001) suggèrent quand même une activité de dégradation même si elle est en général nettement plus faible que dans les sols.

Trois modes de calcul différents sont recommandés dans la communauté scientifique pour faire varier les constantes de dégradation en fonction de la profondeur. Ces modes de corrections ont été établis après examen de la plupart des travaux publiés, et correspondent, faute de mieux (les données mesurées à différentes profondeurs dans des conditions qui simulent vraiment les milieux naturels sont assez rares au moins pour les zones en dessous de la zone racinaire), à un accord assez général de la communauté scientifique.

L'approche du groupe de travail « *FOCUS Ground water* » (FOCUS, 2000) est de diminuer la vitesse de dégradation en fonction de la profondeur, en multipliant les vitesses de dégradation mesurées sur les sols de surface par les facteurs suivants (qui, au-delà de 30 cm, entraînent donc une augmentation de la valeur de DT50 par rapport à l'horizon de surface) :

- 0 - 30 cm = 1 ;
- 30 - 60 cm = 0,5 ;
- 60 - 100 cm = 0,3 ;
- > 100 cm = pas de dégradation.

Cette correction est facile à mettre en œuvre, mais ne repose pas sur les bases scientifiques les plus solides et correspond plutôt au besoin de fournir une approche simple et harmonisée à des utilisateurs d'horizons très variés. Elle ne sera donc pas testée ici.

L'approche dite « *MACRO_DB* », mise en œuvre notamment dans le modèle MACRO (Jarvis *et al.*, 1997), consiste à diminuer la vitesse de dégradation mesurée dans le sol de surface en prenant en compte aux différentes autres profondeurs considérées l'adsorption, la teneur en carbone organique (C org) et la teneur en eau à la capacité au champ. Ce mode de correction nécessite donc un grand nombre de données, qui ont été réunies à partir de différentes sources pour les sols des Carrés, représentatifs d'une partie des sols du bassin des Trois Fontaines. Ces données ne sont toutefois

disponibles pour aucun échantillon en dessous de 1,6 m. Pour ces horizons profonds non saturés, épais de plusieurs dizaines de mètres, et pour la zone saturée, ce sont des valeurs de la littérature (Mouvet *et al.*, 2004) qui seront prises en compte.

Une dernière approche, « *dégradation proportionnelle à C org* », établie « à dire d'experts », est de multiplier la vitesse de dégradation à la profondeur P (P < au sol de surface) par le rapport (presque toujours < 1) entre la teneur en carbone organique mesurée à cette profondeur et celle mesurée dans le sol de surface. Cette correction revient donc à augmenter la valeur de DT50 en fonction de la profondeur.

Pour les deux pesticides considérés, l'illustration 35 regroupe les différentes valeurs de DT50 ainsi générées, de même que les valeurs de Kd sélectionnées pour ces derniers essais.

Pesticide	Couche	Kd	C org	DT50	DT50 prop.
		(L/kg)	(%)	MACRO_DB (jours)	C org (jours)
Isoproturon	0-30 cm	1,24 ¹	0,93 ¹	20 ²	20 ²
	30-60 cm	0,38 ¹	0,29 ¹	27	64
	60-160 cm	0,13 ²	0,10 ¹	47	186
	argile + craie non saturée (1,6-11,6 m)	0,01 ³	?	494 ⁴	494 ⁴
	zone saturée	0,01 ³	?	494 ⁴	494 ⁴
Atrazine	0-30 cm	0,85 ²	0,93 ¹	60 ²	60 ²
	30-60 cm	0,26 ²	0,29 ¹	87	192
	60-160 cm	0,09 ²	0,10 ¹	166	558
	argile + craie non saturée (1,6-11,6 m)	0,01 ³	?	100 000 ⁴	100 000 ⁴
	zone saturée	0,01 ³	?	100 000 ⁴	100 000 ⁴

¹ mesuré en laboratoire sur une série de sols des Carrés (résultats BRGM non publiés).

² pour DT50, valeurs de la littérature (AGRITOX) pour la couche supérieure ; pour Kd, valeurs calculées à partir de valeurs de Koc de la littérature (pour l'atrazine, AGRITOX) ou mesurées sur des sols représentatifs d'une partie du bassin (isoproturon), corrigée de la teneur mesurée en C organique sur des profils de sols du bassin dans la zone des Carrés.

³ estimation non basée sur des données mesurées.

⁴ valeurs tirées de travaux (Mouvet *et al.*, 2004) menés sur un autre site avec une zone non saturée épaisse constituée de calcaires du Lutétien et une zone saturée constituée de sables cuisiers ; ces valeurs sont donc très estimatives.

Illustration 35 - Valeurs de Kd et DT50 de l'isoproturon et l'atrazine à différentes profondeurs obtenues par différentes approches et utilisées pour tester l'influence de la prise en compte de la variation de ces paramètres en fonction de la profondeur.

À titre de rappel, dans les simulations précédentes, les valeurs de Kd variaient de 0,74 à 0,40 L/kg pour l'AT, sur base de données initiales de l'USDA puis d'ajustements lors de la modélisation, et de 0,65 à 0,40 L/kg pour l'IPU, sur base également de données de la littérature et d'essais préliminaires de calage du modèle. Les valeurs de DT50, identiques sur tout le profil vertical, étaient celles reportées dans l'illustration 32 pour la couche 0-30 cm, et provenaient de la littérature (AGRITOX).

L'examen des résultats obtenus en faisant varier la vitesse de dégradation dans les couches superficielles du système montre très nettement deux éléments nouveaux.

Tout d'abord, le fait que le mode de prise en compte de l'évolution de la dégradation selon la profondeur a un effet net sur les profils modélisés d'AT et d'IPU (ill. 37 et 38). Cette différence d'effet selon la méthode de correction s'amplifie dès la 3^e année de simulation pour l'AT (ill. 36), ce qui traduit la pénétration de plus en plus en profondeur calculée par les dix années de simulation, avec des concentrations calculées avec la correction selon l'approche MACRO-DB systématiquement deux fois plus faibles (pour les pics ou les phases descendantes) que celles résultant de l'application de facteurs de correction basés sur l'approche de proportionnalité avec la teneur en carbone organique (DT50 prop. C org, cf. ill. 35).

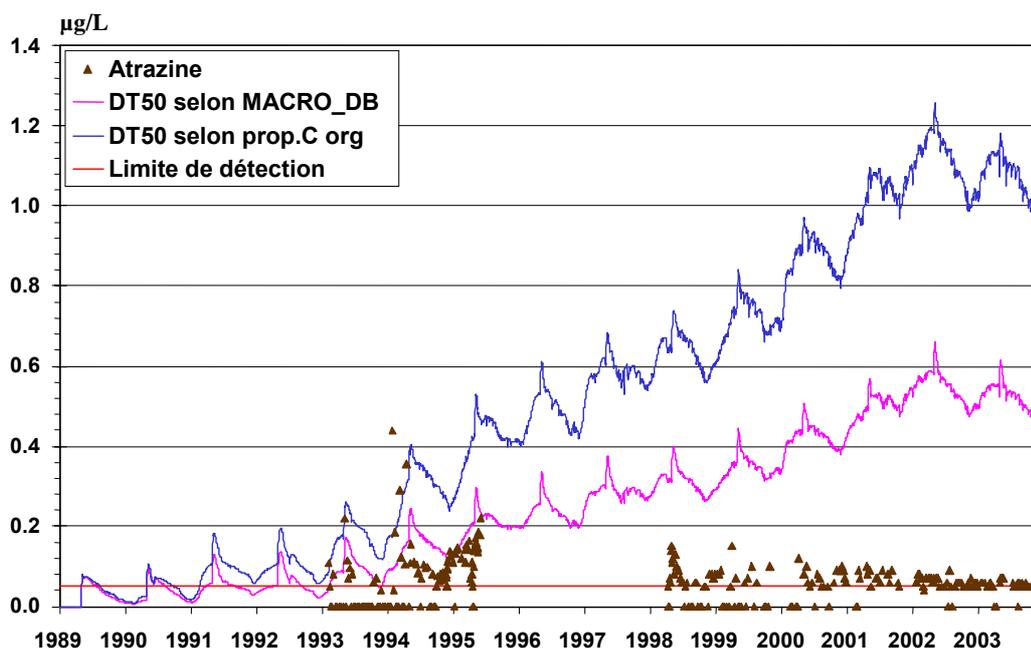


Illustration 36 - Influence, sur les concentrations en atrazine modélisées à la source, du mode de prise en compte de l'évolution de la dégradation selon la profondeur.

Pour l'IPU (ill. 37), l'effet, surtout au niveau des pics de concentrations, devient brutalement plus marqué à la 7^e année de modélisation sans vraiment se stabiliser ensuite ; les valeurs calculées par l'approche MACRO-DB sont entre 1,5 (p. ex. pic de 1996) et 3,3 (p. ex. fin de la phase descendante de 1996) fois plus faibles que celles de l'autre approche. Ces différences très significatives, induites par le simple changement de l'approche utilisée pour traduire la diminution de la dégradation en fonction de la profondeur dans seulement les premiers 1,6 m de profondeur (pour un système dont l'épaisseur totale est considérée égale à 90 m), illustrent l'importance des valeurs prises pour la vitesse de dégradation dans les horizons superficiels même à l'échelle d'un système aquifère entier.

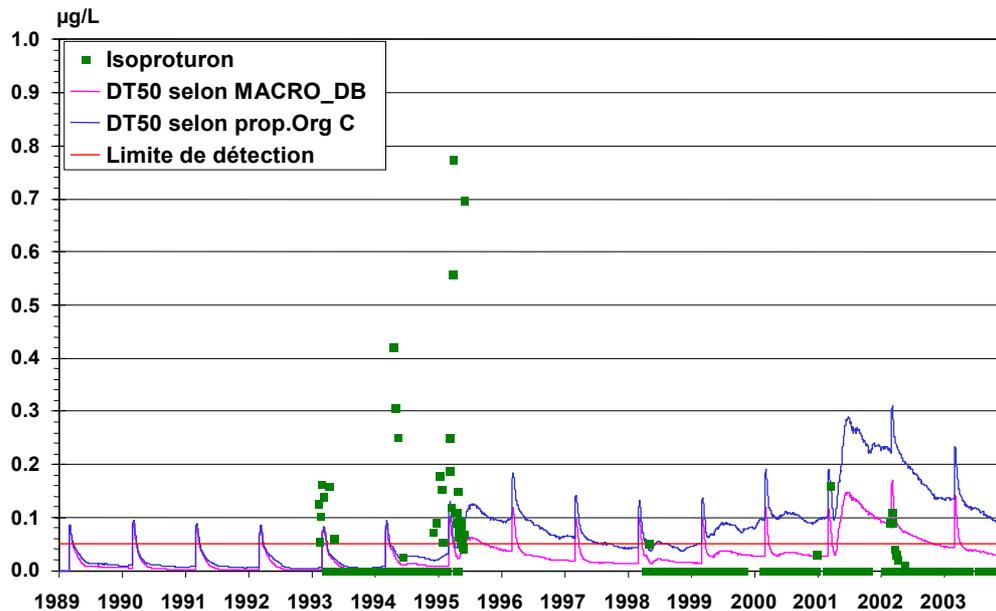


Illustration 37 - Influence, sur les concentrations en isoproturon modélisées à la source, du mode de prise en compte de l'évolution de la dégradation selon la profondeur.

Ensuite, il faut noter que les principales discordances entre valeurs modélisées et observées (concentrations modélisées avec des pics chaque année pour les deux molécules, augmentation importante du bruit de fond modélisé pour l'AT) ne disparaissent pas avec la prise en compte de la dégradation variable selon la profondeur.

L'augmentation modélisée (et non observée) du bruit de fond en AT est probablement liée aux très fortes valeurs de demi-vie prises pour les deux dernières couches du modèle, dont les 10 m d'argile et craie non saturée (ill. 36). L'absence de dégradation dans la zone saturée, traduite par une DT50 de 100 000 j, correspond à des observations faites sur l'absence de dégradation de l'AT dans les eaux souterraines (Mouvet *et al.*, 2004). Par contre, on ne peut exclure que des zones argileuses non saturées réunissent certaines conditions plus propices à la dégradation de l'atrazine. Des essais supplémentaires mériteraient donc d'être réalisés en jouant sur les valeurs de demi-vie prises pour la zone non saturée au-delà de 1,6 m de profondeur.

La seconde discordance concerne les pics modélisés pour les deux molécules chaque année dans les quelques semaines suivant l'application, alors que les mesures ne montrent des pics, particulièrement nets pour l'IUP, que certaines années. Au moins deux explications peuvent être avancées à ce propos. La première serait que les dates réelles d'application aient été à de nombreuses reprises suffisamment différentes de celles prises par défaut (le 1^{er} mars pour l'IUP et 1^{er} mai pour l'AT) pour sur-représenter la combinaison la plus favorable aux entraînements rapides de pesticides en profondeur, à savoir une application sur un sol assez humide suivie peu de temps après de pluies de durée et intensité suffisantes pour entraîner une infiltration rapide jusqu'à la zone saturée.

La seconde repose dans le fait que le modèle mécaniste utilisé ne permet pas de prendre en compte la formation des résidus liés, cette fraction, particulièrement importante pour l'IPU, de molécule qui devient, en quelques semaines ou mois, fixée de manière irréversible, essentiellement par incorporation à la matière organique naturelle des sols (Perrin-Ganier *et al.*, 1996).

5.3.5. Influence de la localisation des zones où sont supposées se produire les applications d'atrazine

Le dernier volet des activités de modélisation a consisté en une analyse de sensibilité sur l'influence de la localisation des zones où sont supposées se produire les applications d'atrazine. Cette analyse a été effectuée avec les valeurs des paramètres hydrodynamiques pris pour les résultats de l'illustration 36, et avec les valeurs des paramètres de sorption et dégradation repris de l'illustration 35, la dégradation étant supposée évoluer en fonction de la profondeur selon l'approche MACRO-DB (cf. 5.3.4).

Tout en n'impliquant chaque fois que 10 % de la surface agricole du bassin, la zone d'application de l'AT est considérée être localisée soit dans les mailles du modèle en amont hydraulique de la source y compris celles touchant la maille de la source (sim 15), soit décalée de 250 m (une maille du modèle) vers l'amont par rapport à la source, aucune maille recevant de l'AT n'étant donc contiguë à la source (sim 16), soit décalée de 8 km vers l'amont par rapport la source (sim 17).

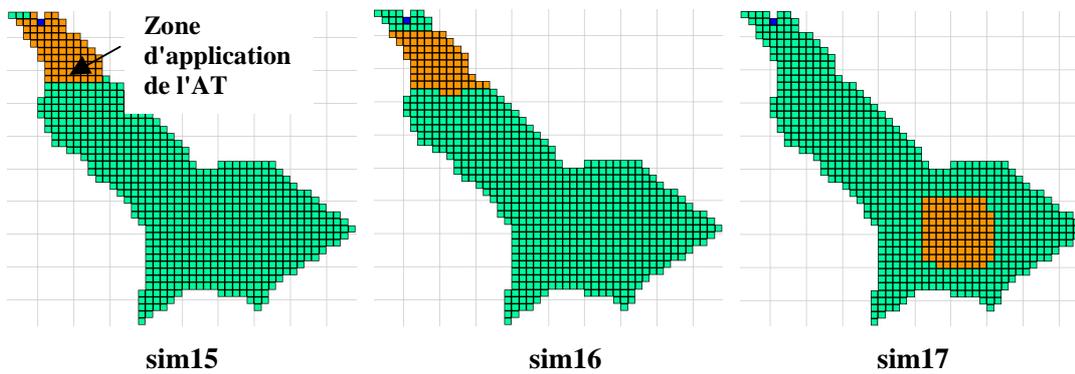
Il apparaît clairement que le signal modélisé est d'autant plus lissé que la zone d'application s'éloigne de la source (ill. 38). Dans le scénario où l'application n'a lieu qu'à au moins 8 km de la source, les concentrations simulées, bien qu'en constante augmentation, restent en dessous de la limite de détection et ne montrent aucun pic. L'augmentation régulière des concentrations est tout aussi évidente dans les deux autres scénarios, qui par contre montrent des pics annuels et d'autant plus marqués que la zone supposée d'application est proche de la source.

5.3.6. Synthèse critique des résultats de la modélisation en 3D du transfert de phytosanitaires depuis la surface du sol jusque dans la nappe

Les résultats des simulations pour l'isoproturon sont relativement prometteurs. En effet, même dans le scénario le plus à risque où l'IPU serait toujours appliqué près de la source, les concentrations modélisées dans l'eau de la source sont, comme les valeurs observées, presque toujours inférieures à la limite de détection. Par ailleurs, les pics de concentrations en IPU modélisés se produisent à des époques qui correspondent bien aux observations. La diminution très rapide des pics modélisés traduit la courte demi-vie de l'IPU. Pour éviter l'apparition systématique de pics modélisés pour l'IPU, alors que les observations ne montrent ces pics que certaines années, d'autres scénarios de données d'entrée pourraient être conçus, en modifiant d'une année à l'autre soit les zones où le modèle considère que l'IPU est appliqué, soit les dates d'application. Une autre voie à poursuivre consisterait à modifier le code numérique utilisé pour qu'il puisse prendre en compte la formation de résidus liés.

Par contre, la modélisation de l'atrazine ne correspond que partiellement à ce qui est observé. Sauf dans un scénario très peu plausible où l'AT ne serait appliquée que dans la partie très amont du bassin (ill. 38b, sim 17), les concentrations modélisées dépassent très rapidement la limite de détection, augmentent de manière systématique en fonction du temps, et atteignent des valeurs bien supérieures aux observations. Des modifications, par calage, des valeurs de demi-vie de l'AT dans différentes couches du modèle seraient donc à tester. La production systématique de pics annuels par la modélisation est une autre discordance qui n'a pu être réglée dans le cadre des travaux présentés ici.

a)



b)

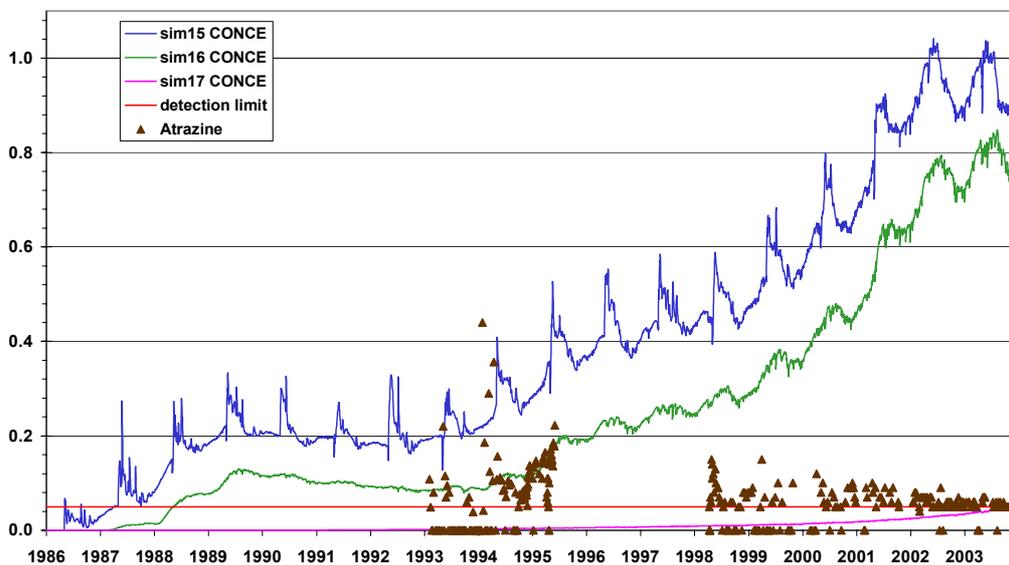


Illustration 38 - Influence de la localisation de la zone d'application de l'atrazine (a) sur les concentrations simulées à la source (b), l'évolution de la dégradation en fonction de la profondeur suivant l'approche MACRO_DB.

6. Conclusions et perspectives

Le système hydrologique des Trois Fontaines constitue une unité hydrologique indépendante des unités voisines et ses exutoires sont bien identifiés ; ces caractéristiques ont été confirmées par la campagne piézométrique extensive réalisée en mars 2003. Moyennant une mobilisation suffisante des moyens techniques et financiers, il est envisageable de déterminer les entrées (pluies, traitements agricoles et autres...) et les sorties (débits, concentrations en produits phytosanitaires...) de ce système.

Une partie des travaux de terrain a consisté en l'aménagement de la partie aval du système, afin de permettre la reprise et l'amélioration de la qualité de l'acquisition de données sur les débits à l'exutoire. En effet, le seuil en bois, initialement installé par la DIREN Centre en 1988, était fortement endommagé. Les travaux d'aménagement effectués garantissent un nouvel équipement à longue durée de vie (structure en béton et seuil en acier). L'aide financière du Conseil régional a permis en plus l'entretien de l'ouvrage et le recueil, lors de missions régulières de terrain, des données de débits stockées dans une station d'acquisition automatique. Enfin, l'interprétation des données acquises sur cette source depuis 1995 a été entièrement reprise. On dispose donc maintenant d'une chronique de débits longue de 8 ans, dont la fiabilité a été optimisée même si, lors des épisodes de très forts débits, les crues de la Cléry entraînent des interférences sur la mesure des débits des sources. Les perspectives d'amélioration à ce niveau concernent la quantification de la contribution de la source principale des Trois Fontaines (sur laquelle sont faites toutes les mesures de qualité, concentrations en phytosanitaires et cations et anions majeurs) au débit total des sources qui représentent l'exutoire complet du système : des jaugeages différentiels seraient à faire dans des conditions hydrologiques contrastées.

Les échantillons d'eau prélevés régulièrement à la source par la SAUR et analysés par le BRGM sur la période 2000-2003 montrent que l'apparition de l'isoproturon à l'exutoire du système (0,05 - 0,15 µg/L) est limitée aux épisodes d'infiltration rapide se produisant peu de temps après des traitements agricoles. Une mobilisation plus différée par rapport aux traitements n'a pas été observée. Le délai entre l'application et l'épisode d'infiltration immédiate est sans doute un des paramètres principaux déterminant la quantité d'isoproturon mobilisée. Par ailleurs, la modélisation suggère que la localisation exacte des parcelles traitées peut jouer un rôle très important au niveau des concentrations maximales susceptibles d'être observées et de leur évolution en fonction du temps à l'échelle mensuelle et annuelle.

En revanche, l'atrazine (0,05 à 0,10 µg/L) et son principal produit de dégradation, la déséthylatrazine (0,1 à 0,3 µg/L), apparaissent comme des molécules plus persistantes pouvant être mobilisées pendant un délai long et donc susceptibles d'atteindre l'exutoire du système lors d'épisodes d'infiltration rapide intervenant longtemps après les traitements. De plus, ces deux molécules sont également véhiculées par une eau circulant plus lentement, modalité d'infiltration qui se concrétise par la présence d'un

signal de base, bruit de fond qui n'est pas observé pour l'isoproturon. L'impossibilité de dater et de quantifier les apports générant ce signal de base en atrazine constitue une incertitude sur la fonction d'entrée du système et rend impossible le calcul d'un bilan de masse. La localisation exacte des parcelles traitées semble, sur base des résultats de la modélisation, jouer, comme pour l'isoproturon, un rôle très important sur les concentrations maximales susceptibles d'être observées et leur évolution en fonction du temps.

Pour ces trois molécules, la forme des signaux observés au niveau des sources apparaît étroitement liée au contexte hydrologique et plus particulièrement au rapport entre les modalités d'infiltration immédiate et d'infiltration plus lente. L'évolution des concentrations à l'exutoire du système résulte de la combinaison entre les modalités de transit de l'eau et des propriétés physico-chimiques des matières actives. Le rôle joué par la localisation exacte des parcelles traitées devrait faire l'objet d'études complémentaires ; un écueil majeur à lever sera la reconstitution d'un historique parcellaire détaillé spatialement et temporellement. Une perspective incontournable est donc de compléter les données disponibles sur les surfaces occupées par les différentes cultures, leur localisation, et les doses de phytosanitaires appliquées au moins depuis 1995, dernière année pour laquelle une enquête assez représentative est disponible.

Les travaux de modélisation se sont focalisés sur l'hydrodynamique du système et sur le transport de l'atrazine et l'isoproturon depuis la surface du sol jusque dans la nappe. La complexité naturelle du système étudié et le manque de données notamment géologiques et hydrogéologiques ont pénalisé la qualité des résultats de la modélisation. Si la modélisation de l'hydrodynamique a permis de bien restituer les données observées pour les débits et assez bien les niveaux piézométriques dans certains puits, la modélisation du transport des phytosanitaires s'est heurtée à plus d'écueils. Certaines valeurs des paramètres d'adsorption et de dégradation, couplées à des hypothèses sur les zones où sont appliquées les matières actives par les agriculteurs, permettent de simuler l'ordre de grandeur des concentrations observées. Ce résultat est novateur et prometteur dans la perspective d'une gestion optimisée de la ressource en eau souterraine et de l'étude des effets éventuels de modifications des pratiques agricoles sur le bassin d'alimentation.

Cette analyse positive des résultats de la modélisation doit toutefois être tempérée par le fait que certaines spécificités observées à plusieurs reprises dans la chronique des concentrations mesurées à la source n'ont pu être valablement reconstituées par le modèle dans sa configuration actuelle. Pour la modélisation également, de nombreuses perspectives se dessinent donc. Le modèle mécaniste spatialisé en 3 dimensions devrait servir à des tests supplémentaires avec des scénarios complémentaires établis à partir d'autres valeurs réalistes des paramètres contrôlant le transport des phytosanitaires et l'écoulement de l'eau depuis la surface du sol jusque dans la nappe. Une autre perspective est l'emploi de techniques de modélisation inverse (Pinault *et al.*, 2001) pour lesquelles le jeu de données disponibles permettrait des premiers essais de calage.

La complexité des mécanismes impliqués dans le transit des substances phytosanitaires vers les eaux souterraines, ainsi que les durées souvent très longues nécessaires à ces transferts, entraînent des difficultés d'évaluation à court et même moyen terme des conséquences d'éventuelles actions de réduction d'intrants. Les actions de suivi et de modélisation des eaux souterraines doivent s'inscrire dans une politique à long terme, incluant plusieurs alternances de déficit hydrique et de recharge (Baran et Lepiller, 1996).

Un grand nombre de données est disponible sur le site pilote des Trois Fontaines. Par ailleurs, le contaminant phytosanitaire principal de cette source, l'atrazine, a vu son emploi officiellement interdit depuis avril 2003 ; ceci offre en perspective une occasion unique de suivre et de modéliser en grandeur réelle l'effet de cette interdiction sur l'amélioration de la qualité de l'eau de la source non seulement pour l'atrazine, produit parent, mais aussi son métabolite, la déséthylatrazine. À l'avenir, le suivi des molécules de substitution de l'atrazine employées par les agriculteurs du bassin (notamment l'alachlore et ses produits de dégradation) doit également être pris en compte comme perspective prioritaire.

7. Bibliographie

Afnor (1991) - Norme T 90-121. Dosage de l'atrazine et de la simazine. Méthode par chromatographie en phase gazeuse après extraction liquide-liquide. 15 p.

Afnor (1995) - Projet de norme T 90-123. Dosage de certains agents de traitement des plantes par chromatographie en phase liquide haute-performance (HPLC) et détection aux UV après extraction solide-liquide. 28 p.

Agritox (2003) - disponible sur : www.inra.fr/agritox

Albrechtsen H.J., Clausen L. & Pedersen P.G. (2003) - Degradation of the herbicides atrazine, isoproturon and MCPP in the subsurface at four European sites. Abstracts of International Symposium Non-Agricultural use of Pesticides. Environmental issues and alternatives. Copenhagen, Denmark, May 7-9, 2003, p. 43-44.

Baran N. (1996) - Transit de l'isoproturon et de l'atrazine dans un système hydrologique karstique de la craie (Gâtinais - France) : de la station pédologique expérimentale à l'échelle du système, thèse de l'université d'Orléans, 320 p.

Baran N., Lepiller M. (1996) - Transit de produits phytosanitaires (atrazine et isoproturon) dans un système hydrologique karstique. Actes du XXVI^e Congrès du Groupement Français des Pesticides et du Séminaire National GIP Hydrosystèmes « Produits phytosanitaires : processus de transfert et modélisation dans les bassins versants », Nancy, 22-23 mai 1996, CEMAGREF Éditions. p. 173-180.

Baran N. (1999) - Transit de l'isoproturon et de l'atrazine dans un système hydrologique karstique de la craie (Gâtinais-France) : de la station pédologique expérimentale à l'échelle du système. *Documents BRGM 284*, Éditions BRGM, 329 p.

Baran N., Mouvet C. (2002) - Source des Brévilles - Montreuil-sur-Epte (95). Bilan des activités jusqu'au 31 décembre 2001 et suivis parcellaires pour l'année culturale 2000. BRGM/RP-51703-FR, 63 p.

Baran N., Mouvet C., Morvan X. (2002) - Source des Brévilles - Montreuil-sur-Epte (95). Bilan des activités jusqu'à novembre 2002 et suivis parcellaires pour l'année culturale 2001. BRGM/RP-51974-FR, 55 p.

Brouyère S., Carabin G., Dassargues A. (2004) - Climate change impacts on groundwater resources: modelled deficits in a chalky aquifer, Geer basin, Belgium. *Hydrogeology Journal*, 12, p. 123-134.

Carlier M. (1972) - Hydraulique générale et appliquée. Éditions Eyrolles, Paris, 565 p.

Chow V.T., Maidment, D. R., Mays L.W. (1988) - Applied hydrology. Mc Graw-Hill Book Company, USA. n° ISBN 0-07-100174-3, 572 p.

Dousset S., Mouvet C., Schiavon M. (1994) - Sorption of terbuthylazine and atrazine in relation to the physico-chemical properties of three soils. *Chemosphere*, 28, 3, p. 467-476.

Dousset S., Mouvet C., Schiavon M. (1995) - Leaching of atrazine and some of its metabolites in undisturbed field lysimeters of three soil types. *Chemosphere*, 30, p. 511-524.

Dousset S., Mouvet C., Schiavon M. (1997) - Degradation of (¹⁴C) terbuthylazine and (¹⁴C) atrazine in laboratory soil microcosms. *Pesticide Science*, 49, p. 9-16.

FOCUS (2000) - FOCUS groundwater scenarios in the EU plant protection product review process. Report of the FOCUS Groundwater Scenarios Workgroup, EC document Sanco/321/2000 rev. 2, 202 p.

Fournol G. (1998) - Transfert des nitrates et des pesticides. Observation d'un exploitant. Colloque « Agriculture et Environnement », Société Hydrotechnique de France, Paris, 18-19 novembre 1998, p. 69-75.

Frick A., Zebarth B.J., Szeto S.Y. (1998) – Behavior of the soil fumigant methyl isothiocyanate in repacked soil columns. *Journal of Environmental Quality*, 27, p. 1158-1169.

Gao J.P., Maguhn J., Spitzauer P. et al. (1998) - Sorption of pesticides in the sediment of the Teufelsweiher pond (southern Germany). II: competitive adsorption, desorption of aged residues and effect of dissolved organic carbon. *Water Research*, 32, p. 2089-2094.

Gelhar, L.W., Welty C., Rehfeldt K.R. (1992) - A critical review of data on field-scale dispersion in aquifers. *Water Resources Research*, 28, p. 1955-1974.

Guigues N., Foucher J.C., Roy S. (2004) - Surveillance de la qualité des eaux souterraines sur un bassin karstique en région Centre : les Trois Fontaines. BRGM/RP-52931-FR, 73 p.

Ifen (2003) – Les pesticides dans les eaux. Cinquième bilan annuel - données 2001. *Études et travaux n° 37*. 27 p.

Jarvis N.J., Nicholls P.H., Hollis J.M. et al. (1997) - MACRO_DB: a decision support tool for assessing pesticide fate and mobility in soils. *Environmental Software*, 12, p. 251-265.

Johnson R.M., Sims J.T. (1993) - Influence of surface and subsoil properties on herbicide sorption by atlantic coastal plain soils. *Soil Science*, 155, p. 339-348.

Johnson A.C., White C., Lal Bhardwaj C.L. (2000) - Potential for isoproturon, atrazine and mecoprop to be degraded within a chalk aquifer system. *Journal of Contaminant Hydrology*, 44, p. 1-18.

Kauffman S.J., Bolster C.H., Hornberger G.M. et al. (1998) - Rate-limited transport of hydroxyatrazine in an unsaturated soil. *Environmental Science and Technology*, 32, p. 3137-3141.

Klotz D., Dörfler U., Scheunert I. (1997) - Transport and transformation of ¹⁴C-terbutylazine in subsurface gravel under saturated and unsaturated water flowing conditions. *Chemosphere*, 35, p. 87-98.

Lasne E. (1992) - Étude du système hydrologique karstique des sources des Trois Fontaines (Saint-Loup-de-Gonois, Loiret). Contribution à la connaissance de la structure, du fonctionnement et de l'évolution de l'aquifère crayeux du Gâtinais (Sud est du bassin de Paris). Thèse de l'université d'Orléans, 453 p.

Lencastre A. (1969) - Manuel d'hydraulique générale. Éditions Eyrolles, Paris.

Libra R.D., Hallberg G.R., Hoyer B.E. (1987) - Impacts of Agricultural Chemicals on Ground Water Quality in Iowa. *In: Ground Water Quality and Agricultural Practises*; Lewis Publisher Chelsea, Michigan: 1987; Chapter 14.

Martin J.B., Dean R.W. (2001) - Exchange between conduits and matrix in the Floridan aquifer. *Chemical Geology*, 179, p. 145-165.

Mills M.S., Hill I., Newcombe A.C. et al. (2001) - Quantification of acetochlor degradation in the unsaturated zone using two novel *in situ* field techniques: comparisons with laboratory-generated data and implications for risk assessments. *Pesticide Management Science*, 57, p. 351-359.

Moreau-Kervevan C., Mouvet C. (1998) - Adsorption and desorption of atrazine, deethylatrazine and hydroxyatrazine by soil components. *Journal of Environmental Quality*, 27, p. 46-53.

Moreau C., Mouvet C. (1997) - Sorption and desorption of atrazine, deethylatrazine and hydroxyatrazine by soil and aquifer solids. *Journal of Environmental Quality*, 26, p. 416-424.

Mouvet C., Albrechtse, H.J., Baran N. et al. (2004) - PEGASE. Pesticides in European Groundwaters : detailed study of representative Aquifers and Simulation of possible Evolution scenarios. Dubus I.G. et C. Mouvet (Editeurs). www.brgm.fr/pegase/report/final_report.htm. Rapport final du projet européen EVK1-CT1990-00028. BRGM/RP-52897-FR, 358 p.

Mouvet C., Golaz C., Baran N. (2002) – Projet « Pollutions diffuses » : transfert de phytosanitaires à l'échelle du système hydrologique karstique des Trois Fontaines (Loiret). BRGM/RP-51901-FR, 42 p.

Mouvet C., Jeannot R., Riolland H. et al. (1997) - Stability of isoproturon, bentazone, terbutylazine and alachlor in natural groundwater, surface water and soil water samples stored under laboratory conditions. *Chemosphere*, 35, p. 1083-1097.

Nelson S.D., Letey J., Farmer W.J. et al. (1998) - Facilitated transport of napropamide by dissolved organic matter in sewage sludge-amended soil. *Journal of Environmental Quality*, 27, p. 1194-1200.

Normand M. (1985) - Programme DEPJAU. Dépouillement de jaugeages au moulinet. Note technique BRGM 85/32, décembre 1985.

Pasquarell G.C., Boyer D.G. (1996) - Herbicides in karst groundwater in southeast West Virginia. *Journal of Environmental Quality*, 25, p. 755-765.

Perrin-Ganier C. (1995) – Dispersion et transformation de l'isoproturon dans le sol et l'eau. Thèse de l'Institut national polytechnique de Lorraine, 157 p.

Perrin-Ganier C., Breuzin C., Portal J.M. et al. (1996) - Availability and persistence of isoproturon under field and laboratory conditions. *Ecotoxicology and Environmental safety*, 35, p.226-230.

Pinault J.L., Plagnes V., Aquilina L. et al. (2001) - Inverse modeling of the hydrological and the hydrochemical behavior of hydrosystems - Characterization of karst system functioning. *Water Resources Research*, 37, 8, p. 2191-2204.

Pomerol B. (1988) – Carte géologique France (1/50 000), feuille Courtenay (366), Orléans BRGM, Notice explicative par Pomerol B. (47 p.).

Ryan M., Meiman J. (1996) - An examination of short-term variations in water quality at a karst spring in Kentucky. *Ground Water*, 34, p. 23-30.

Tappe W., Groeneweg J., Jantsch B. (2002) - Diffuse atrazine pollution in German aquifers. *Biodegradation*, 11, p. 3-10.

Van Genuchten M.T., Leij F.J., Yates S.R. (1991). - The RETC Code for Quantifying the Hydraulic Functions of Unsaturated Soils. Version 1.0. EPA Report 600/2-91/065. U.S. Salinity Laboratory, USDA, ARS, Riverside, California.

Welté B., Montiel A. (1995) - Le bassin du Dragon. Comptes-Rendus du Séminaire sur « La protection des eaux souterraines : élus et techniciens apportent leur témoignage », 29 et 30 novembre 1994, Cercle International de Fontainebleau. p. 52-57.



Centre scientifique et technique
Service eau
3, avenue Claude-Guillemin
BP 6009 – 45060 Orléans Cedex 2 – France – Tél. : 02 38 64 34 34