

Pesticides dans l'air

Bibliographie sur la modélisation



Diffusion : Juillet 2017

Siège social :
3 allée des Sorbiers 69500 BRON
Tel. 09 72 26 48 90
contact@atmo-aura.fr

Conditions de diffusion

Dans le cadre de la réforme des régions introduite par la Nouvelle Organisation Territoriale de la République (loi NOTRe du 16 juillet 2015), les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air de l'Auvergne (ATMO Auvergne) et de Rhône-Alpes (Air Rhône-Alpes) ont fusionné le 1er juillet 2016 pour former Atmo Auvergne-Rhône-Alpes.

Atmo Auvergne-Rhône-Alpes est une association de type « loi 1901 » agréée par le Ministère de l'Ecologie, du Développement Durable et de l'Energie (décret 98-361 du 6 mai 1998) au même titre que l'ensemble des structures chargées de la surveillance de la qualité de l'air, formant le réseau national ATMO.

Ses missions s'exercent dans le cadre de la loi sur l'air du 30 décembre 1996. La structure agit dans l'esprit de la charte de l'environnement de 2004 adossée à la constitution de l'Etat français et de l'article L.220-1 du Code de l'environnement. Elle gère un observatoire environnemental relatif à l'air et à la pollution atmosphérique au sens de l'article L.220-2 du Code de l'Environnement.

Atmo Auvergne-Rhône-Alpes communique publiquement sur les informations issues de ses différents travaux et garantit la transparence de l'information sur le résultat de ses travaux.

A ce titre, les rapports d'études sont librement disponibles sur les sites www.air-rhonealpes.fr et <http://www.atmoauvergne.asso.fr/>

Les données contenues dans ce document restent la propriété intellectuelle d'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes.

Toute utilisation partielle ou totale de ce document (extrait de texte, graphiques, tableaux, ...) doit faire référence à l'observatoire dans les termes suivants : © Atmo Auvergne-Rhône-Alpes (2017) Pesticides dans l'air – Bibliographie sur la modélisation

Les données ne sont pas rediffusées en cas de modification ultérieure.

Par ailleurs, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes n'est en aucune façon responsable des interprétations et travaux intellectuels, publications diverses résultant de ses travaux et pour lesquels aucun accord préalable n'aurait été donné.

En cas de remarques sur les informations ou leurs conditions d'utilisation, prenez contact avec Atmo Auvergne-Rhône-Alpes

- depuis le [formulaire de contact](#)
- par mail : contact@atmo-aura.fr
- par téléphone : 09 72 26 48 90

Financement

Cette étude d'amélioration de connaissances a été rendue possible grâce à l'aide financière particulière des membres suivants :



Toutefois, elle n'aurait pas pu être exploitée sans les données générales de l'observatoire, financé par l'ensemble des membres d'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes

Résumé

La réduction de l'exposition des populations aux pesticides constitue un enjeu majeur de santé publique en France. Or l'atmosphère représente à la fois un vecteur de dissémination des pesticides vers d'autres compartiments de l'environnement (eau, sol) mais également une source directe d'exposition des populations, à la campagne comme en ville. C'est dans ce contexte qu'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes a entrepris d'améliorer les connaissances régionales sur l'exposition des populations aux pesticides.

Les mesures réalisées depuis 2005 ont permis d'évaluer la présence des pesticides dans l'air (une centaine de substances) sur différents secteurs et de faire un état des lieux dans la région. Toutefois, cette surveillance présente des limites, majoritairement liées au coût qu'elle engendre. Afin de compléter cette approche par la mesure, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes a développé un inventaire spatialisé des émissions de pesticides dans l'air. Une fois émis dans l'atmosphère, les pesticides interviennent dans différents phénomènes physico-chimiques à différentes échelles de temps et d'espace. La modélisation du devenir des pesticides dans l'air est un sujet complexe, compte-tenu des spécificités de ces substances par rapport à des polluants atmosphériques plus « classiques ». L'objectif de ce travail est de faire une synthèse des travaux et modèles existants dans le domaine des pesticides afin d'envisager à moyen terme la mise en œuvre de modélisation des concentrations des pesticides dans l'air au sein d'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes.

Dans un premier temps les différents phénomènes intervenant dans l'atmosphère ont été identifiés en les abordant selon leurs contributions comme sources (épandage, volatilisation, érosion,..) ou puits (dépôts, dispersion,..).

La modélisation des sources de pesticides, notamment la volatilisation post-application, a fait l'objet de nombreux travaux de recherche. Dans le processus habituel de modélisation de qualité de l'air, cette partie représente l'estimation des émissions vers l'atmosphère.

Plusieurs types de modèles ont été identifiés pour la modélisation du devenir des pesticides dans l'air : les modèles à compartiment, les modèles lagrangiens, les modèles gaussiens et les modèle eulériens.

La plupart des modèles de dispersion ne sont pas encore applicables à une échelle de quelques kilomètres. En effet, la synthèse bibliographique a montré la complexité de la modélisation des processus, dépendant notamment de la substance concernée.

Par ailleurs, avant de mettre en œuvre la modélisation du devenir des pesticides dans l'air, la question des sources est cruciale.

Compte-tenu de la complexité, la modélisation des concentrations de pesticides dans l'air doit probablement être abordée de manière similaire à celle des pollens. Concernant ces derniers, la modélisation mise en œuvre par Atmo Auvergne-Rhône-Alpes ne concerne que l'ambrosie (1 seule saison) sur une saison (1 période réduite). Un cadrage plus précis des besoins en modélisation doit encore être effectué, notamment en se rapprochant des acteurs de la santé.

De nombreux travaux restent également nécessaires avant une mise en œuvre opérationnelle, qui dépassent le cadre du seul territoire Auvergne-Rhône-Alpes.



Sommaire

1. Contexte et objectifs.....	6
2. Devenir des pesticides : les différents phénomènes impliqués	9
3. Modélisation des sources de pesticides dans l'atmosphère	11
3.1. Les émissions de gouttelettes pendant l'application	11
3.2. La volatilisation (post application).....	11
3.3. L'érosion par le vent	11
4. Modélisation du devenir des pesticides de l'atmosphère	12
4.1. Transferts dans le sol et entre les hydrosystèmes	12
4.2. Dépôts sec et humide au sol	12
4.3. Décomposition / photolyse / photodécomposition.....	14
4.4. La dispersion aérienne	15
4.4.1. Les modèles à compartiments « fugacity approach »	15
4.4.2. Les modèles gaussiens	17
4.4.3. Les modèles lagrangiens	18
4.4.4. Les modèles eulériens.....	21
5. Conclusions de l'étude bibliographique et perspectives de mise en œuvre	22



Illustrations

Figure 1 Carte des sites de mesures en Rhône-Alpes depuis 2007	6
Figure 2 Cartographie des émissions estimées vers l'atmosphère des 86 substances actives pesticides à l'échelle de la petite région agricole.....	7
Figure 3 Schéma du voyage des pesticides, source : CG66 : http://www.ledepartement66.fr/64-pesticides.htm	10
Figure 4: Schématisation des dépôts secs et humides (source : www6.versailles-grignon.inra.fr/ecosys/.../1/.../BL_Cours_III_Dépôt.pdf).....	13
Figure 5: Synthèse des connaissances sur le transfert des pesticides vers l'atmosphère par volatilisation depuis les plantes Nebila Lichiheb, Carole Bedos, Erwan Personne et Enrique Barriuso, 2015 Pollution atmosphérique - 2015 - N° 224, Janvier-mars 2015 - Articles.....	30

1. Contexte et objectifs

La France est le 1^{er} consommateur de pesticides en Europe, en lien notamment avec des surfaces de cultures importantes. Les études épidémiologiques ont permis d'identifier des relations entre la survenue de certaines maladies et l'exposition aux pesticides. La réduction de l'exposition des populations à ces substances constitue donc un enjeu majeur de santé publique. Si l'exposition des populations aux pesticides par voie alimentaire est aujourd'hui bien connue et réglementée, il n'en est pas de même pour l'exposition par voie aérienne. Or l'atmosphère représente à la fois un vecteur de dissémination des pesticides vers d'autres compartiments de l'environnement (eau, sol) mais également une source directe d'exposition des populations, à la campagne comme en ville.

C'est dans ce contexte qu'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes a entrepris **d'améliorer les connaissances régionales sur l'exposition des populations aux pesticides** autour de 4 axes combinant campagnes de mesures, estimation des émissions et communication.

La **surveillance des pesticides dans l'air** dans la région a débuté en 2005 en Auvergne et en 2007 en Rhône-Alpes dans le cadre du Plan Régional Santé Environnement.

Des mesures ont régulièrement été réalisées dans différents secteurs de culture (cf. rapports sur www.atmo-auvergnerhonealpes.fr)

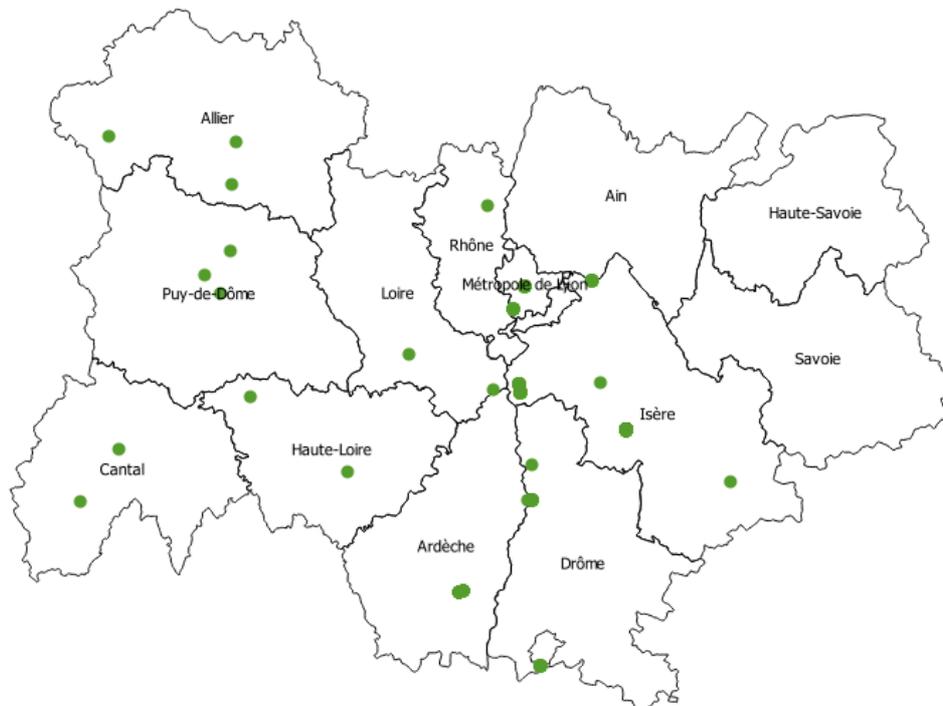


Figure 1 Emplacement des sites de mesures en Auvergne-Rhône-Alpes depuis 2005

Les mesures ont permis d'évaluer la présence des pesticides dans l'air (une centaine de substances) sur différents secteurs et de faire un état des lieux dans la région. Toutefois, cette surveillance présente des limites, majoritairement liées au coût qu'elle engendre :

- La majorité des sites de mesures ont été sondés une seule année.
- La représentativité spatiale du point est difficile à déterminer, compte-tenu du manque de connaissances sur la variabilité spatiale des pesticides dans l'air.
- Les mesures fournissent un résultat hebdomadaire (concentration moyenne issue d'un prélèvement d'une durée d'une semaine).
- Certaines substances ne sont pas mesurables (prélèvement, faisabilité analytique) compte-tenu des technologies actuelles.

Afin de compléter cette approche par la mesure, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes a développé en 2013 un premier inventaire spatialisé des émissions de pesticides dans l'air en Rhône-Alpes (Air Rhône-Alpes, 2014). Ce travail a été amélioré en 2016 en intégrant le territoire auvergnat et des données plus précises concernant l'utilisation des pesticides dans la région (Atmo-Auvergne-Rhône-Alpes, 2017).

L'inventaire spatialisé permet d'estimer les émissions annuelles de 86 substances sélectionnées. Le résultat sous format cartographique est agrégé à l'échelle de la petite région agricole est présenté ci-dessous.

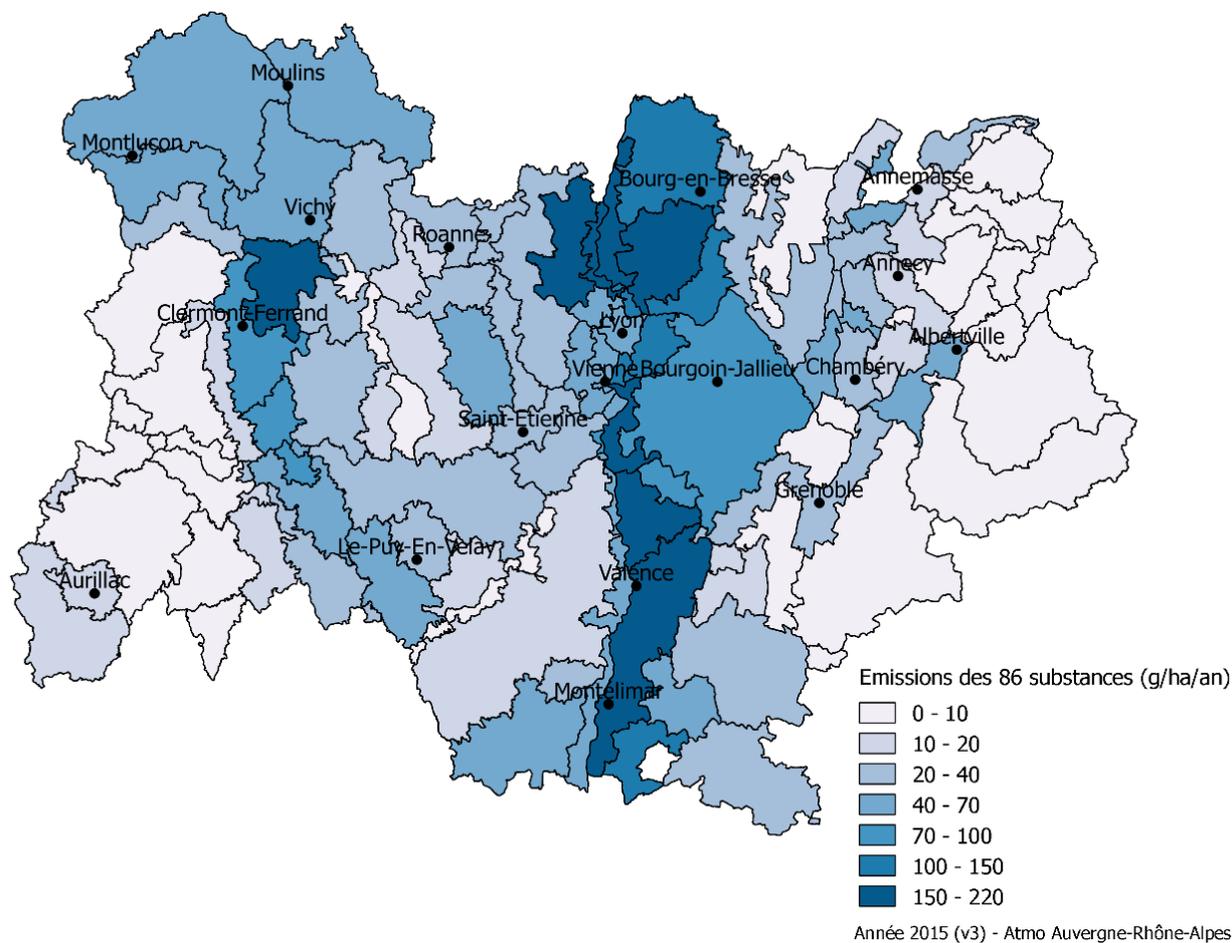


Figure 2 Cartographie des émissions estimées vers l'atmosphère des 86 substances actives pesticides à l'échelle de la petite région agricole

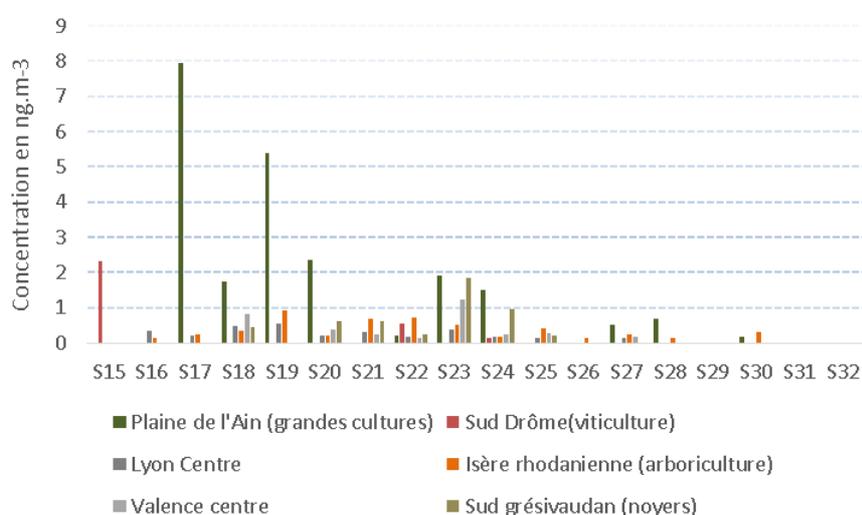
Ce travail d'inventaire spatialisé permet de compléter les mesures en fournissant une information d'émission en tout point du territoire, toutefois cette information ne représente pas l'exposition de la population. C'est pourquoi on s'intéresse à la question du devenir de ces substances dans l'air par le biais de la modélisation numérique qui permet d'obtenir des concentrations de polluants en tout point du territoire.

Chiffres clés sur l'utilisation des pesticides en Auvergne-Rhône-Alpes

La thématique des pesticides est complexe de par sa grande variabilité dans tous les domaines : espace, temps, nombre de substances.

En 2015, **383** substances différentes ont été vendues sur l'ensemble du territoire Auvergne-Rhône-Alpes. Les mesures réalisées depuis 2005 ont montré que la présence des substances sur le territoire est très hétérogène, sur dix secteurs évalués depuis 2007 **seulement 2 substances ont été quantifiées sur tous les territoires.**

La présence des substances dans l'air est plutôt bien corrélée à leur utilisation, ainsi contrairement à un polluant « classique » comme les oxydes d'azote ou les PM10, une substance particulière peut être quantifiée sur quelques semaines uniquement.



Exemple du s-métolachlore, une des substances les plus présentes en fréquence de quantification et spatialement – Evolution des concentrations sur différents sites en fonction du numéro de semaine

Une fois émis dans l'atmosphère, les pesticides interviennent dans différents phénomènes physico-chimiques à différentes échelles de temps et d'espace.

La modélisation de leur devenir dépend de ces échelles et phénomènes.

La modélisation des pesticides est un sujet complexe, compte-tenu des spécificités de ces substances par rapport à des polluants atmosphériques plus « classiques ». Ces points seront approfondis dans les paragraphes suivants, toutefois en voici un premier aperçu :

- Comme évoqué ci-dessus, le nombre de substances actives différentes est de plusieurs centaines.
- Ces substances sont mélangées à des adjuvants ou autres co-formulants qui peuvent modifier leurs caractéristiques – Les effets restent méconnus.
- Les substances peuvent être appliquées selon différentes modalités : pulvérisation, traitement de semences (incorporation dans le sol)
- L'émission de pesticides est très limitée dans le temps, en lien avec les pratiques agricoles.

Globalement, **quatre objectifs de modélisation se dégagent** :

1. Evaluer l'exposition de la population de la région Auvergne-Rhône-Alpes aux pesticides pour en dégager les risques chroniques et/ou aigus
2. Apporter des informations / recommandations pour optimiser les épandages
3. Evaluer des actions préventives

4. Fournir une couche de données complémentaires dans les travaux de croisement de données environnementales (concernant actuellement l'air et le bruit)

L'objectif de ce travail est de faire une synthèse des travaux et modèles existants dans le domaine des pesticides afin d'envisager à moyen terme la mise en œuvre de modélisation des concentrations des pesticides dans l'air au sein d'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes.

Dans un premier temps, un paragraphe sera consacré à la description des phénomènes mis en jeu, puis les modélisations de ces différents phénomènes seront présentées. Enfin, le dernier paragraphe s'attachera à faire une synthèse par rapport aux besoins et aux moyens d'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes

2. Devenir des pesticides : les différents phénomènes impliqués

Avant d'aborder la question de la modélisation, il importe de bien comprendre les différents phénomènes qui peuvent être impliqués ainsi que les spécificités des pesticides par rapport à d'autres polluants atmosphériques.

Comme le décrivent par exemple les publications de C. Dupuy *et al.* (2000), Brunet *et al.* (2013), le devenir des pesticides est de nos jours assez connu et catégorisé en termes qualitatif. Il dépend notamment du mode d'application.

Les phénomènes sont généralement étudiés séparément en ce qui concerne :

- Les phénomènes qui ont lieu **pendant l'application**
- Les phénomènes qui ont lieu **après l'application**

Comme cela est souligné dans la synthèse conduite par l'INRA (Guiral *et al.*, 2016) pour le compte de l'ADEME, « peu de modèles intègrent à la fois ces deux sources d'émissions ».

Comme illustré sur le schéma Figure 3, les pesticides sont présents dans les sols, l'eau et l'atmosphère. Ils sont le plus souvent pulvérisés sous forme liquide sur les plantes et le sol mais certains agriculteurs les incorporent directement au sol ou les déposent sous forme de granulés. Les matières actives atteignent donc les plantes, le sol, l'atmosphère puis sont dégradées. Le type de dégradation, son importance et sa durée dépendent de la matière active. Cette dernière peut se **volatiliser**, **ruisseler** ou être **lessivée** et ainsi atteindre les eaux de surface ou souterraines. Elle peut aussi être **absorbée** par des plantes et des organismes du sol. Les phénomènes de volatilisation et d'érosion éolienne sont à l'origine des transferts des pesticides dans l'atmosphère. Le vent provoque également de la **dérive** de substances et leur **transport à courte ou longue distance** dans l'air. Dans l'atmosphère, les **dépôts secs** (par sédimentation) et **humides** (via les précipitations) font redescendre les pesticides depuis l'atmosphère vers la surface (terre ou eaux).

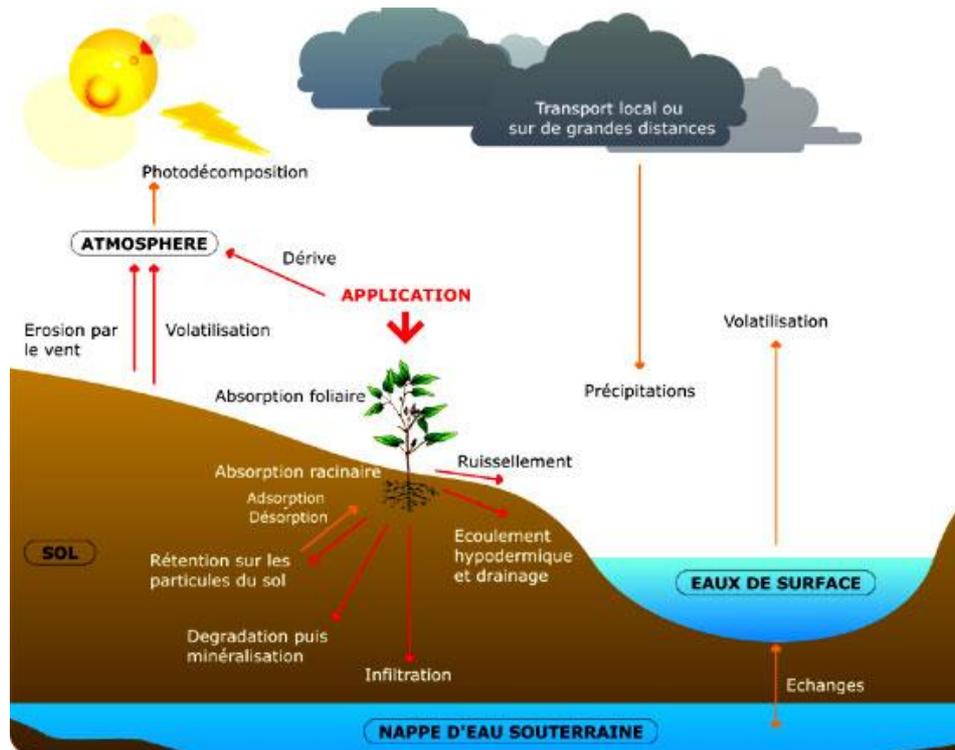


Figure 3 Schéma du voyage des pesticides, source : CG66 : <http://www.ledepartement66.fr/64-pesticides.htm>

Dans l'atmosphère, les pesticides se retrouvent donc sous phase gazeuse, aqueuse ou particulaire pour un même composé, dans l'air, la pluie et les brouillards. Leur devenir dans l'environnement est très influencé par cette distribution vapeur/particule dirigée par la constante de Henry et les conditions météorologiques.

Nous allons nous intéresser dans ce document qu'aux **phénomènes intervenant dans l'atmosphère** en les abordant selon leurs contributions comme source ou puits de pesticides pour l'atmosphère :

- Sources :
 - o L'épandage par pulvérisation
 - o La volatilisation post application
 - o L'érosion par le vent
 - o L'apport par le transport à plus ou moins longue distance

- Puits :
 - o Les transferts vers les sols et les hydrosystèmes
 - o La photodécomposition
 - o Les dépôts secs et humides
 - o La dispersion aérienne : dérive et transport local ou à longue distance

La notion d'émissions (sources) dans l'atmosphère est délicate à délimiter. L'INRA souligne : « *qu'est-ce qu'une émission vers l'atmosphère : combien de temps cette émission doit-elle rester dans l'air pour être considérée comme telle ?* » (Guiral, 2016). En effet, les pesticides sont pulvérisés sous forme de gouttelettes qui se déposent très rapidement sur leur cible (plante) ou au sol.,

On considérera ici une source dès que pour un état donné initial de l'atmosphère, on a une contribution supplémentaire (et perturbatrice) qui arrive dans le domaine. L'échelle de temps et d'espace dépend des phénomènes à étudier.

3. Modélisation des sources de pesticides dans l'atmosphère

*La modélisation des **sources** de pesticides a fait l'objet de nombreux travaux de recherche.*

Dans le processus habituel de modélisation de qualité de l'air, cette partie représente en fait **l'estimation des émissions vers l'atmosphère**.

Actuellement, l'estimation des émissions à l'échelle régionale est effectuée à l'aide de « facteurs d'émission », dépendant des caractéristiques physico-chimiques de la substance et du mode d'application (Air Rhône-Alpes, 2013 et Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, 2017). L'utilisation de ces facteurs est simple pour effectuer des estimations annuelles régionales mais comporte beaucoup de limites, par exemple il ne concerne que **les pertes par volatilisation en post-application**.

L'INRA dans son rapport de 2016 souligne que le potentiel d'utilisation de ces facteurs est faible et préconise d'utiliser des modèles pour fournir de nouveaux facteurs d'émission. Cette démarche s'applique à grande échelle et pour de nombreuses substances.

Le paragraphe ci-dessous présente rapidement les outils de modélisation **des émissions de pesticides** vers l'atmosphère par type de phénomène. La modélisation des sources n'est pas l'objet principal de ce rapport.

3.1. Les émissions de gouttelettes pendant l'application

Le rapport élaboré par le groupe de travail FOCUS Air (FOCUS, 2008) synthétise les émissions provenant des épandages (première source de pesticides dans l'atmosphère), du sol, des plantes, de l'eau ou des usages en air intérieur. Chahine (2011) passe en revue les techniques de modélisation de ces émissions de type analytique, screening et résistance. Des études plus spécifiques ont été menées en vue d'optimiser l'utilisation du matériel comme les buses : l'atomisation des jets de pesticides lors des applications a été modélisée avec le code 3D FLUENT pour représenter l'écoulement tridimensionnel à l'intérieur de la buse et à sa sortie jusqu'à 6,5 millimètres par Luca *et al.* (2007).

3.2. La volatilisation (post application)

La volatilisation est par définition un processus physico-chimique par lequel un composé est transféré de la phase solide ou liquide vers la phase gazeuse. Il peut résulter d'une évaporation depuis la phase liquide, ou bien d'une sublimation depuis la phase solide. La constante de Henry permet d'évaluer la tendance d'un produit à se volatiliser : plus sa valeur est élevée, plus le produit aura tendance à se volatiliser. Ce phénomène caractérise donc le transfert des pesticides à partir du sol ou des plantes dans les phases gazeuses (Bedos *et al.* 2002). Le récent article de Lichiheb *et al.* (2015) est une synthèse des connaissances sur ce type de transfert des pesticides vers l'atmosphère depuis les plantes.

L'annexe 1 présente les éléments recensés sur les modèles concernant le phénomène de volatilisation. Le rapport de Guiral (2016) sur les facteurs d'émission présente également une synthèse de ces modèles.

3.3. L'érosion par le vent

L'érosion éolienne dépend essentiellement de l'intensité du vent et de la nature du sol. Elle est favorisée dans les régions où les vitesses et les fréquences de vent sont élevées (proximité de la mer, grandes plaines), et concerne les cultures à faible couverture végétale. Les particules de poussières, auxquelles sont fixées des résidus de traitement, sont arrachées par le vent et se retrouvent dans l'atmosphère. (Barneaud, 2002). Cette source pour l'atmosphère est estimée faible (<1 %) dans nos systèmes de production et nos climats (Attard *et al.* 2015).

Certains modèles de type eulérien (explicité par la suite) possèdent des paramétrisations plus ou moins explicites pour représenter ce phénomène. Par exemple dans le modèle CHIMERE (Menut *et al.* 2013), différents schémas sont implémentés pour laisser l'utilisateur choisir pour une représentation simple du phénomène ou plus complexe (assez couteuse en temps de calcul).

Note : il n'a pas été fait de recherche spécifique sur le sujet très particulier des émissions de particules lors des semis de substances traitées.

4. Modélisation du devenir des pesticides de l'atmosphère

Une fois émises dans l'atmosphère, les substances peuvent être dispersées, se dégrader ou être transférées vers d'autres compartiments.

Le paragraphe suivant traite de la modélisation de ces différents phénomènes séparément.

4.1. Transferts dans le sol et entre les hydrosystèmes

De nombreuses publications concernent la modélisation des pesticides dans les hydrosystèmes et le sol. Par exemple le travail de Bacchi *et al.* (2009) décrit un modèle de transfert de pesticide dans l'air, le sol, les nappes et les rivières sur des sous bassins de la Seine. Cela s'inscrit dans le cadre du développement du modèle STICS-Phytodel (Moreau-Guigon *et al.* 2008) et de la plateforme Eau-dyssée (Habets *et al.* 2008). Rat *et al.* (2007) et Moreau-Guigon *et al.* (2007) dans leurs travaux de simulation des transferts de produits phytosanitaires depuis le sol jusqu'aux eaux souterraines et superficielles passe en revue plusieurs modèles (MACRO, PEARL, PRZM, GLEAMS, AGRIFLUX, LEACHP...).

Le modèle stochastique TFM (Transfer Function Model ; Jury, 1982) se base par exemple sur la définition et la paramétrisation d'une fonction de probabilité décrivant le temps de transfert d'un soluté entre la surface du sol et une profondeur donnée. Mills & Leonard (1983) ont pour leur part exprimé la quantité de pesticides susceptible d'être perdue par ruissellement par une fonction de probabilité en observant que la fréquence d'évènements pluvieux susceptibles d'entraîner des pertes par ruissellement suivait une loi de probabilité de Poisson. Plus récemment, Grochulska & Klavivko (1994) ont modifié le modèle stochastique de Jury dans le cadre de la description des transferts d'eau dans des sols à double porosité. Bien que d'un intérêt conceptuel certain, les modèles stochastiques ne reçoivent que peu d'attention dans le cadre de l'étude du transfert de pesticides vers les ressources en eau.

SurfAtmest, développé par l'INRA (Personne *at al.* 2009, Stella *at al.* 2011), est un modèle bi-directionnel pour l'échange de chaleur et de polluants entre les écosystèmes et l'atmosphère. Le modèle distingue le sol et les plantes : il décrit les échanges en termes d'adsorption¹ par les cuticules des feuilles et du transport bidirectionnel par les stomates des feuilles et du sol. SurfAtm combine une approche résistive pour l'équilibre de l'énergie et est mis en œuvre pour l'ammoniac (NH₃), l'ozone (O₃) et les pesticides.

4.2. Dépôts sec et humide au sol

Le dépôt des pesticides sur les surfaces (eaux et terres) intervient sous forme de dépôt sec ou humide, tant que le sol n'est pas saturé.

¹ En chimie, l'adsorption, à ne pas confondre avec l'absorption, est un phénomène de surface par lequel des atomes ou des molécules de gaz ou de liquides (adsorbats) se fixent sur une surface solide (adsorbant) selon divers processus plus ou moins intenses comme les interactions de Van der Waals ou les interactions dipolaires (<https://fr.wikipedia.org/wiki/Adsorption>)

La **déposition sèche** concerne les phases gazeuse et particulaire des pesticides (Figure 4) : le dépôt particulaire (aérosols), l'absorption par voie stomatique (puis métabolisation), l'absorption à la surface (feuilles, troncs, sol, eau). Le dépôt dépend de la taille et densité des pesticides, des propriétés de surface comme la rugosité, de l'humidité et de la météorologie.

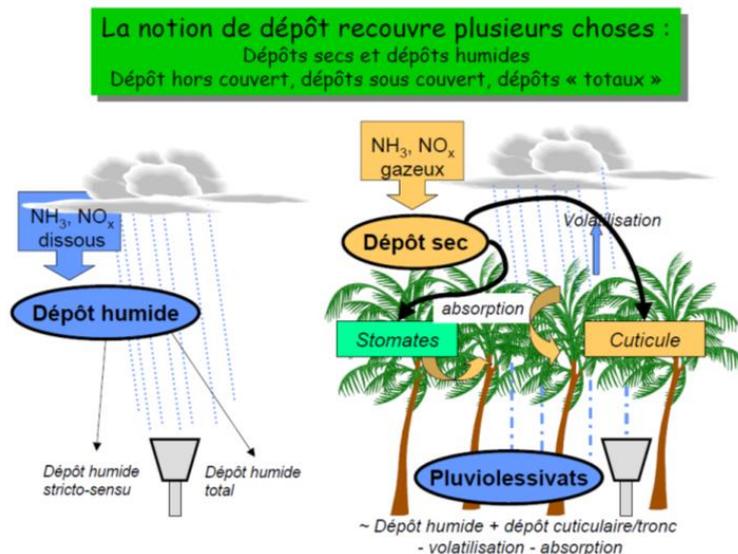


Figure 4: Schématisation des dépôts secs et humides
(source : www6.versailles-grignon.inra.fr/ecosys/.../1/.../BL_Cours_III_Dépôt.pdf)

Les composés gazeux restent plus longtemps dans l'atmosphère (que les composés particulaires), cela dépend bien sûr du composé et de sa durée de vie. Ils peuvent toutefois être déposés au niveau du sol ou être dégradés par réaction chimique (oxydation par l'ozone et les composés hydroxyles) ou photochimique.

Le **dépôt humide** correspond aux quantités de polluants dissoutes dans les eaux de pluie et brouillards. Il intervient pour les phases liquide, vapeur et particulaire des pesticides : lors des précipitations, les pesticides gazeux sont progressivement dissous dans l'eau de pluie lorsque cette dernière approche le sol. Les pesticides avec une forte solubilité tels que le lindane ont été identifiés à de fortes concentrations dans l'eau de pluie (Van Den Hout *et al.* 1999).

Le rapport dépôt sec / dépôt humide dépend des conditions climatiques (température, pluviométrie, humidité), des composés concernés (solubilité, réactivité), d'autres polluants (co-déposition, formation d'aérosols), de la distance aux sources.

Les modèles de type résistifs sont les plus simples pour représenter l'échange de matière entre l'atmosphère et la surface engendré par des tourbillons dans l'atmosphère. Ces modèles « Big Leaf » sont appliqués aux gaz et aux particules. Comme le décrit I. Panic (2003), dans ces modèles, la surface est considérée comme étant une grande feuille sur un arbre. Le transport est considéré comme trois étapes distinctes (W. Asman *et al.* 1999), ces étapes peuvent être décrites comme des résistances en séries par analogies avec les circuits électriques :

- La première partie est le transport par diffusion turbulente à partir d'une certaine hauteur dans l'atmosphère (hauteur de référence), c'est une couche très mince ($\approx 1\text{mm}$) juste au-dessus de la surface. Cela correspond à la résistance aérodynamique.
- Dans la deuxième couche, l'écoulement est considéré laminaire (non turbulent) et le transport doit se produire par diffusion non turbulente. Pour les gaz, c'est une diffusion moléculaire ; pour les petites particules, c'est une diffusion brownienne ; et pour les plus grandes particules, les effets de l'inertie et

de gravitation deviennent importants et sont caractérisés par une vitesse de dépôt. Cette couche fine est appelée la couche limite laminaire.

- La matière arrive ensuite à la surface dont les propriétés sont : la solubilité, la réactivité/dégradation, la vitesse de transport. Cette troisième couche est appelée celle de surface.

La vitesse d'échange dépend de la propriété du gaz mais également des propriétés de la surface. En effet, les gaz hautement solubles / réactifs tels que l'acide nitrique (HNO_3) sont immédiatement pris par la surface, ce qui signifie que la résistance de surface pourra être négligée et ainsi, le transport sera déterminé par la résistance aérodynamique et la résistance de couche limite laminaire. Par contre, les gaz inertes tels que l'Hélium (He) ne sont pas capturés par la surface, ainsi, la résistance de surface sera infiniment grande et déterminera le transport.

Comme le précise Panic (2003), on trouve des particules de différentes tailles dans l'atmosphère, mais la plupart sont de petites tailles et leurs dépôts par gravitation est négligeable comparé au transport vertical provoqué par diffusion turbulente dans l'atmosphère. Par conséquent, la plupart des particules sont transportées et diffusées de la même façon que les gaz. Une fois que les particules sont déposées, elles ne sont habituellement pas ré-émises dans l'atmosphère, par conséquent, la résistance de surface peut être omise dans le modèle d'échange pour les particules, parce qu'elle est nulle. La vitesse de dépôt sec dans ce cas est donnée par formulation suivante : les particules ont quelques propriétés qui rendent leur résistance laminaire de couche limite beaucoup plus grande que pour des gaz, parce que leur transport par la couche laminaire est beaucoup plus lent. Seule les très petites particules avec un rayon inférieur à $0.1 \mu\text{m}$, qui ne contribuent pas beaucoup à toute la masse atmosphérique d'aérosol, ont des diffusivités browniennes raisonnables et sont transportés avec une vitesse raisonnable par la couche limite laminaire. Pour les particules qui ont un rayon plus grand, autour de $1 \mu\text{m}$, le transport à travers la couche limite laminaire est plus efficace parce que l'impaction et l'interception sur la surface sont également importantes. Mais, pour une grande fraction de particules qui ont un rayon compris entre 0.1 et $1 \mu\text{m}$ sont seulement transportées très lentement à travers la couche limite laminaire. La vitesse à laquelle ces particules sont transportées à travers la couche limite laminaire varie fortement avec leur taille, en conséquence la vitesse de dépôts secs pour les particules change également fortement avec leur taille. Pour les particules qui ont un rayon supérieur à $5 \mu\text{m}$, le dépôt gravitationnel est important et devrait être pris en considération. Tant que ce mécanisme est actif au même moment que les mécanismes de transport atmosphérique, le modèle résistif peut être modifié en ajoutant une résistance de dépôt gravitationnel pour le transport parallèle aux autres résistances. Beaucoup de particules ont un rayon compris entre 1.1 et $1 \mu\text{m}$, et pour ces particules la résistance de la couche limite laminaire domine toutes les résistances de transport de l'atmosphère jusqu'à la surface. En conséquence, la vitesse de dépôt sec de ces particules est relativement faible parce qu'elles ne croisent pas la couche de frontière laminaire rapidement (Ruijgrok *et al.* 1995).

Certains auteurs comme Foudhil (2002) ont modélisé le dépôt sec comme étant la somme d'un dépôt par impact sur un couvert végétal et par sédimentation.

4.3. Décomposition / photolyse / photodécomposition

Chaque pesticide a des propriétés uniques qui déterminent sa réactivité. Certains pesticides sont sensibles aux conditions acides et/ou basiques, d'autres sont sensibles à la lumière, une attaque microbienne ou végétale et le métabolisme des animaux. Dans l'atmosphère, la plupart des pesticides se décomposent rapidement par réaction d'oxydation avec les radicaux OH, l'ozone ou les oxydes d'azotes, catalysées par la lumière du soleil (photolyse indirecte). D'autres pesticides se décomposent en absorbant directement la lumière du soleil (photolyse). La prépondérance de l'une ou l'autre de ces réactions sera fonction de la structure chimique du composé et de son spectre d'absorption dans l'ultra-violet et le visible. L'effet direct du soleil induisant une photo dégradation est un phénomène mineur sur la plupart des pesticides. Par contre l'action des UV est beaucoup plus efficace. La majorité des pesticides ne se décompose pas tant qu'ils sont actifs, ensuite ils peuvent devenir des produits inertes ou être minéralisés (CO_2 , eau, et minéraux contenant des éléments incluant du soufre, phosphore, l'azote et les halogènes : chlore, fluor et brome).

Les produits issus de la photodécomposition sont assez bien identifiés par contre les auteurs s'accordent pour écrire qu'il manque des études détaillées des mécanismes des différents schémas/chemins de décomposition (Burrows *et al.* 2002, Kiss *et al.* 2009, EXTOXNET 1993)

La modélisation de certaines de ces réactions chimiques a été réalisée par l'élaboration de modèles statistiques (Moesta *et al.* 1993, Meramet *et al.* 2009). Pour l'évaluation des risques sanitaires, les modèles statistiques seuls ne permettent pas de calculer des concentrations présentes dans l'atmosphère. C'est pourquoi tout ou partie de ces réactions chimiques doit être incorporé dans des modèles plus élaborés.

4.4. La dispersion aérienne

Les composés sous forme gazeuse sont emportés par le vent, sous forme aqueuse, ils se retrouvent dans les aérosols. Ceux-ci sont également transportés par le vent, se déposent ou sont déposés par la pluie sur le sol et à la surface des océans/mers/rivières. La dispersion sera plus ou moins lointaine selon les conditions de vent ainsi que le mode d'émission (au sol ou aérien). Les pesticides sont disséminés dans l'atmosphère par deux mécanismes :

- **La diffusion**, favorisant la dispersion des gaz et aérosols, résulte des mouvements turbulents présents en air instable ou engendrés par des cisaillements de vent ;
- **Le transport dépendant de la circulation des masses d'air** à l'échelle locale ou globale et la survenance de précipitations. Sous forme liquide et particulaire, les pesticides sont facilement abattus au sol lors d'événements pluvieux ou neigeux. En phase gazeuse, leur temps de séjour dans l'atmosphère est plus important, à condition que leur durée de vie dans l'atmosphère leur permette d'être transportés sur de plus grandes distances (composés stables et peu solubles, Sanusi 1996). Le transport sur de longues distances n'est envisageable qu'à la suite d'une élévation des composés dans la troposphère, par exemple au-dessus de la couche limite (Millet, 1999).

Panic (2003) ou encore Chahine (2011) présentent des revues bibliographiques assez complètes de la modélisation de la dispersion aérienne des pesticides. Le rapport de Brunet *et al.* (2013) du projet MODAPEX (MODélisation de la Dispersion Aériennes des Pesticides et des niveaux d'Exposition à l'échelle du paysage) présente également un état de l'art récent sur la modélisation. Une grande partie des propos ci-après sont issus de leurs publications.

Les grandes familles de modèles de dispersion sont les modèles :

1. À compartiments /modèles de boîtes
2. Gaussien
3. Lagrangien
4. Eulérien.

A noter que certains de ces modèles intègrent des paramétrisations des phénomènes évoqués dans les paragraphes précédents (comme la volatilisation, les dépôts secs/humides...). Nous présentons ci-après chacun des 4 grands types.

4.4.1. Les modèles à compartiments « fugacity approach »

Les modèles de type multimédias ont été développés au cours des années 1980 (Mackay, 1979 ; Paterson & Mackay, 1985 ; Mackay & Paterson, 1990, 1991 ; Mackay, 1991 ; Wania & Mackay, 1999) et sont principalement utilisés pour simuler le devenir des pesticides persistants du type lindane, DDT, chlordane, aldrine, dieldrine, endrine, heptachlore, mirex, toxaphene (Severinsen & Jager, 1998 ; Wania *et al.* 1999 ; Liu *et al.* 1999) dont l'utilisation en agriculture n'est plus autorisée depuis de nombreuses années sur le territoire métropolitain. Les modèles de type multimédias se basent sur une segmentation des écosystèmes en grands compartiments (sol, plante, air, eau, par exemple) et l'établissement de flux entre ces différents compartiments à travers des coefficients de partage (par exemple, un coefficient de partage entre une feuille et l'atmosphère ou entre le sol et l'eau). En n'utilisant qu'un nombre limité de paramètres d'entrée, ces modèles sont particulièrement

adaptés à la modélisation des transferts à très large échelle (par exemple les transferts à l'échelle régionale ou mondiale ; Wania & Mackay, 1999) ou des situations pour lesquelles les données permettant de paramétrer des modèles déterministes sont peu nombreuses. Leur intérêt à une échelle plus fine est toutefois limité.

Ces types de modèles sont rangés dans 4 catégories selon les échelles de temps, d'espace et les processus représentés (Smaranda and Gavrilescu, 2008) :

1. Niveau I : l'atmosphère et les autres compartiments environnementaux sont des systèmes fermés sans interactions. Les échanges entre l'atmosphère et les processus de dégradation sont ignorés. Le modèle prédit une distribution stationnaire d'une quantité fixe de pesticide à travers les principaux compartiments. Ils ne peuvent pas être utilisés pour calculer un temps de résidence dans l'atmosphère des pesticides ni évaluer un transport à long ni moyen terme.
2. Niveau II : l'atmosphère est décrite comme un système stable. Des réactions chimiques et les dépôts sec et humide entre l'atmosphère et les autres compartiments peuvent être représentés. Le taux de pesticide dans l'atmosphère et dans les autres compartiments est calculé avec l'hypothèse d'un taux initial constant. Ce type de modèle peut être utilisé pour évaluer un temps de résidence dans l'atmosphère des pesticides et évaluer un transport à long terme
3. Niveau III : la distribution des pesticides est stationnaire dans la couche mixte de l'atmosphère et les autres compartiments qui ne sont pas en équilibre. Chaque compartiment est composé de sous boîtes. Si l'équilibre n'est pas assuré entre les compartiments, il l'est entre les sous boîtes de chaque compartiment. Cette hypothèse est correcte lorsque le temps requis pour partitionner les pesticides dans les sous boîtes est suffisamment court comparé au temps requis pour atteindre l'équilibre entre les compartiments (Devillers *et al.* 1995). Comme pour le niveau II les processus de dégradation sont considérés dans chaque compartiment et la concentration atmosphérique n'est calculée qu'une fois l'équilibre entre le taux initial de pesticide et le taux de dégradation atteint.
4. Niveau IV : il s'agit de la version instable du niveau III. Le taux de pesticide initial n'est pas nécessairement constant. Le modèle prend en compte différentes sources environnementales variantes telles que la distribution d'eau et de terre à la surface aux échelles régionales et continentales. Ce type de modèles peut être utilisé pour analyser les effets saisonniers des émissions de pesticide dans les concentrations atmosphériques.

Ces modèles sont basés sur des formules théoriques décrivant les processus de diffusion et d'advection. La variation dans le temps des concentrations de pesticides est calculée par l'équation de bilan de masse (somme de l'advection, diffusion, source et taux de dégradation). Le terme d'advection représente le flux de masse de pesticide migrant d'un compartiment à un autre, celui de diffusion représente la migration par transport turbulent et moléculaire dus aux gradients de concentration. Le terme source est l'entrée dans le compartiment de pesticides, celui de dégradation est principalement dû aux transformations par photolyse et microbiologiques.

Le premier de ces modèles est le Behaviour Assessment Model BAM (Jury *et al.* 1983). Il est unidirectionnel : la variation de la concentration ne varie qu'en direction perpendiculaire du sol. La volatilisation n'est représentée qu'avec une couche limite stable. Le transport vertical de l'eau dans le sol est représenté par les équations classiques de Richards. La sortie principale modélisée est le taux de volatilisation.

PRZM est un autre exemple de modèle (Suarez, 2005). Il s'agit d'un modèle 1D par différence finie comportant presque les mêmes équations que celles de BAM. PRZM est plus utilisé dans les études du devenir des pesticides dans le sol. Ils simulent la volatilisation à l'échelle de la journée et leurs données d'entrée sont issues de mesures, indépendantes des conditions climatiques. Ces modélisations sont utiles pour la prévision à long terme du devenir des pesticides en fonction de leur potentiel de volatilisation.

Un autre type de modèle (par éléments finis) de volatilisation est le modèle PEM (Pesticide Emission Model, Scholtz *et al.* 2002a,b). Dans ce modèle, l'atmosphère est couplée avec le sol. A l'interface sol/atmosphère, tous les processus liés à la volatilisation sont considérés et les paramètres d'entrées sont décrits au pas de temps horaire. La variation diurne du taux de volatilisation est ainsi simulée.

D'autres modèles à compartiments ont été développés dans le cadre du projet APECOP (Vanclouster, 2003). L'objectif principal a été d'améliorer la prévision de la volatilisation. Pour y parvenir, une grande variété de processus d'échanges entre différents compartiments environnementaux ont été considérés dans les modèles tels que MACRO (Jarvis, 1995), PELMO (Klein *et al.* 1997) and PEARL (Leistra *et al.* 2005) ; des modules de volatilisation entre le sol et la végétation ont été implémentés pour mieux représenter l'étape de diffusion dans l'atmosphère (Vanclouster, 2003). A noter qu'une difficulté rencontrée pour la validation de ces modules par manque de données expérimentales. De plus, l'utilisation de ces modules a été limitée par la disponibilité des données météorologique, souvent collectées sur des bases journalières plutôt qu'horaires.

Des modèles avancés de niveau IV (ou FUGIV) développés par Paraiba *et al.* 2007; Wania and Mackay, 1995, découpent l'atmosphère en 2 sous boîtes : l'air et les aérosols. Les concentrations de pesticides dans ces 2 boîtes sont calculées séparément en utilisant le coefficient de partage octanol/air dans le jeu d'équations déterministes.

Contreras *et al.* (2008) a simulé le devenir du carbofuran (connu comme pesticide lipophile) dans des conditions atmosphériques instables avec un modèle à compartiment de niveau IV en utilisant 4 boîtes : l'atmosphère, un champ de riz, l'eau et les sédiments. Il a été observé une augmentation du carbofuran dans l'eau et la végétation ainsi qu'un pic de concentration dans l'air affichant une décroissance progressive jusqu'à 16 jours après l'épandage. Avec ce type de modèle, les différents compartiments sont considérés bien mélangés ce qui ne permet pas d'avoir d'information locale sur la concentration dans l'air. Cependant ils sont utilisés pour l'évaluation des niveaux de risque de contamination dans l'eau et l'atmosphère à large échelle.

Siimes and Kamari (2003) ont réalisé une intercomparaison de 30 modèles pour simuler le devenir d'un herbicide sur une culture finlandaise de betterave sucrière. Aucun n'a rempli l'ensemble des critères recherchés. La conclusion principale a été que les modèles ont de sérieux manques dans la prise en compte des processus à la surface (comme par exemple le gel/dégel).

Des modèles "Multimedia environmental fate models" parfois référencés comme les modèles Mackay-type ont permis de simuler les concentrations des pesticides aux échelles régionales et continentales. Par exemple les modèles SimpleBox (Bakker *et al.* 2003) ou ECHAM5-HAM (Stier *et al.* 2005). Ils considèrent l'atmosphère comme une boîte 'bien mélangée' et sont capables de simuler des prévisions de concentrations sur des saisons ou des années. Basés sur les paramétrisations des modèles de compartiments, ils conviennent pour des scénarisations de contamination de l'atmosphère et de l'eau par les pesticides ainsi que pour les évaluations de leurs dépôts sur le sol et dans l'eau, pour des transports à long terme et leur long temps de résidence dans l'environnement. Par exemple en Hollande, le modèle RIVM a été utilisé à l'échelle nationale pour expliquer la pollution de l'eau par les pesticides (Clark 2003). Cette étude a montré que de fortes concentrations sont dues non seulement au dépôt atmosphérique mais aussi à la dérive lors de la pulvérisation. De manière similaire, Semeena *et al.* (2006) avec le modèle ECHAM5-HAM dans lequel l'atmosphère est décomposée en 3 sous boîtes : l'air, l'eau nuageuse et les aérosols ; a réalisé des simulations de 10 ans à l'échelle globale pour différents scénarii.

4.4.2. Les modèles gaussiens

Les modèles de panaches gaussiens (sources continues) ou à bouffées (sources instantanées ou ponctuelles) représentent la dispersion de pesticide par un panache idéalisé issu de la source. Ils sont basés sur des solutions simples et analytiques dérivées des équations d'advection-diffusion avec conservation de la masse. La stabilité de l'atmosphère est décrite selon des valeurs empiriques de paramètres selon les classes de Pasquill (Hanna *et al.* 1982).

Les principales simplifications couramment utilisées sont de considérer un état stationnaire des champs météorologiques et un champ de vent uniforme. La 1^{ère} hypothèse impose un résultat valide uniquement sur une courte période (quelques heures) et la seconde implique que cette modélisation n'est pas adaptée aux terrains complexes ni proche de la surface (où le champ de vent est caractérisé par de grands cisaillement et

une turbulence est inhomogène) ni proche de la source du fait de la turbulence créée par les équipements de pulvérisation. **Ce type de modélisation est donc approprié pour des situations simples avec des conditions idéalisées : sur terrains plats et homogènes.** Cette approche produit des résultats raisonnables pour des distances au-delà de 50m sous le vent de la source de pulvérisation (Craig 2004).

Différentes équipes ont développé des « extensions » dans les modèles gaussiens pour prendre en compte des phénomènes particuliers : déposition sèche, variation verticale de la diffusivité turbulente, prise en compte des phases gazeuses et liquides, hétérogénéité spatiale du vent : modèle ISCST (Industrial Source Complex Short Term model de l'USEPA (1995) et Creyer and van Wesenbeeck (2001), Watanabe 2000, GDS (Gaussian Diffusion and Sedimentation de Craig (2004), Raupach *et al.* 2001, Bozon *et al.* 2008). Le modèle gaussien de pollution atmosphérique ISCST (Industrial Source Complex Short Term model) développé par l'USEPA (USEPA, 1995a) simule des prévisions de concentration dans l'air des pesticides volatilisés à de courts intervalles de temps après l'épandage. Les données principales de ce modèle sont les taux moyens horaires de volatilisation de pesticide et des données horaires météorologiques. Creyer and van Wesenbeeck (2001) ont utilisé ce modèle avec des sources multiples d'émission de pesticides provenant de zones agricoles. Les prévisions de concentration dans l'air étaient en bon accord avec les séries de mesures réalisées en Californie.

Le modèle FIDES, développé par l'INRA, est un modèle de dispersion et d'échange de polluants gazeux et de particules en champ proche. Il est utilisé pour estimer le dépôt de polluants à proximité de sources (< 5 km). Il a été développé pour étudier le dépôt d'ammoniac (Loubet *et al.*, 2001) et a été appliqué aux pesticides gazeux (Bedos *et al.*, 2013) et aux particules (Petit *et al.*, 2013). FIDES est constitué d'un modèle de dispersion de type gaussien et d'un modèle d'échange bidirectionnel de type résistif. Il constitue le module de transfert atmosphérique du modèle NitroScape² (qui modélise les transferts et transformations d'azote dans les paysages). FIDES est également utilisé en mode inverse pour estimer des sources à partir des concentrations (Carozzi *et al.*, 2013; Loubet *et al.*, 2012; Loubet *et al.*, 2010; Loubet *et al.*, 2011).

4.4.3. Les modèles lagrangiens

Dans ces modèles, la particule émise par la source se déplace suivant une certaine trajectoire dictée par les conditions initiales de son émission, de la vitesse du vent et de la turbulence atmosphérique. En champ proche, le mouvement de la particule est dominé par son inertie et sa vitesse d'émission. Au bout d'un certain temps, son mouvement devient indépendant de sa vitesse initiale et il sera régi uniquement par la vitesse du vent et la turbulence jusqu'à son dépôt sur la végétation ou sur le sol.

La théorie lagrangienne est basée sur l'hypothèse d'indépendance des gouttelettes les unes des autres. Elles sont considérées sphériques et avec une densité plus grande que celle de l'air, avec un diamètre inférieur à l'échelle de Kolmogorov. Les forces exercées sur une gouttelette sont principalement la force de gravité et de traînée dues au mouvement de la gouttelette. La difficulté principale pour résoudre les équations décrivant le mouvement est de connaître la vitesse du vent instantanée. Ce type d'information peut être obtenu par l'une des deux techniques suivantes :

- Des simulations LES (Large-Eddy Simulation³) avec des modèles eulériens.
- Les simulations RANS (Reynolds Averaged Navier-Stokes) qui consistent à moyennner temporellement les équations de Navier-Stokes pour toutes les échelles, couplées à une approche stochastique.

Ces 2 méthodes sont décrites dans le chapitre suivant présentant les modèles eulériens.

Les méthodes lagrangiennes permettent de **simuler la dispersion sur des terrains hétérogènes et d'intégrer le suivi et les transformations physico chimiques des gouttes le long de leur trajectoire** (notamment leur évaporation) alors qu'en gaussien, cela est très limité. Toutefois, cette modélisation requière des ressources de calcul plus importantes que pour les méthodes gaussiennes.

² <http://www.inra.fr/Chercheurs-etudiants/Systemes-agricoles/Tous-les-dossiers/Modelisation-et-agrosystemes/NitroScape>

³ LES: La Simulation des Grandes Échelles consiste à simuler un écoulement turbulent en définissant un nombre d'onde de coupure au-delà duquel l'énergie due aux mouvements tourbillonnaires est prise en compte par un modèle dit modèle sous-maille. En clair, les plus gros tourbillons sont calculés (ils sont physiquement visibles dans le domaine de calcul), les plus petits sont pris en compte en introduisant une viscosité supplémentaire. https://fr.wikipedia.org/wiki/Simulation_de_la_turbulence#Simulation_des_Grandes_Échelles_.28SGE.2C_Large-Eddy_Simulation_ou_LES_en_anglais.29

Parmi les études de dispersion de pesticides, les modèles lagrangiens ont principalement été utilisés pour **optimiser les équipements d'épandage et minimiser la dérive des pesticides** en dehors des zones visées : en permettant de mieux comprendre les effets de la turbulence induits par les gouttelettes de pesticides en mouvement, la dérive est déduite.

Les dérives des gouttes pendant les pulvérisations sont très dépendantes des conditions environnementales telles que la vitesse du vent, température et l'humidité (Gil *et al.* 2008, 2007), et des facteurs relatifs au matériel et techniques utilisés pour l'épandage (Cross *et al.* 2001; Ozkan *et al.* 1995; Yarpuz-Bozdogan and Bozdogan, 2009). La turbulence générée par les moyens de pulvérisation (tracteur, avion) affecte également le déplacement des gouttes.

Le modèle FLEXPART⁴ a été utilisé pour simuler sur des périodes de 10 jours le transport méso et grande échelle, la diffusion et les dépositions sèches et humides de composés chlorés C3 – C6 dans l'atmosphère sur Cherbourg et en Espagne (Palau, 2013)

Le modèle ANSYS CFX⁵ (éléments finis) a été utilisé par Baetens et al (2009) pour simuler la dérive d'une rampe de pulvérisation. Leur modèle permet des évaluations des dérives jusqu'à 10m du bord du champ sous différentes conditions de pulvérisation (hauteur de rampe, vitesse du vent et taille des gouttes).

Le modèle FLUENT⁵ (volumes finis) a été utilisé par Sidahmed and Brown (2002) pour calculer les trajectoires des gouttelettes proches des buses. Ils ont ainsi analysé les effets des conditions météorologiques et l'orientation des buses sur le dépôt près d'un pulvérisateur pneumatique.

Le logiciel DRIFTSIM⁶ (Zhu *et al.* 1995) permet de calculer la dérive. Il est basé sur l'interpolation de valeurs issues d'une base de données de dérives pour des distances jusqu'à 200m, initialement calculées par le code FLUENT. A noter que sa validation n'a été faite que par comparaison à des mesures en soufflerie, sans considération de la technique de pulvérisation.

Mokeba *et al.* (1997) ont développé un modèle de simulation 3D combinant un modèle balistique et de marche aléatoire pour prendre en compte les effets d'évaporation des gouttelettes et de leur dépôt près du vaporisateur. Il est basé sur une approche de marche aléatoire coupée à un modèle d'évaporation. Quand les gouttelettes s'évaporent, leurs trajectoires sont modifiées et leur dépôt intervient plus loin de la source.

Pour des applications aériennes, le modèle lagrangien AGDISP (AGricultural DISPersal) a été développé par la NASA and Spray Drift Task Force (SDTF) pour simuler les effets des vortex des ailes d'avion sur les gouttelettes durant leur application (Bird *et al.* 2002). Ce modèle simule la dérive avec un vent perpendiculaire à la source (considérée comme une ligne infinie). Toutes les conditions d'épandage incluant des buses types, des tailles de gouttes et de vitesse de vent ont ensuite été implémentées dans le modèle renommé AGDRIFT (Teske *et al.* 2002). L'avantage de ce modèle est son utilisation en prévision en routine et sa capacité de prévoir la distance de la zone impactée jusqu'à 800m sous le vent lors d'application aérienne. Une approche gaussienne a ensuite été implémentée dans le modèle pour étendre les capacités de prévision au dépôt des gouttelettes jusqu'à 20km (Teske and Thistle, 2004).

Le modèle SprayTrans (Richardson *et al.* 2007) est une autre version améliorée de AGDISP : il a été interfacé avec les modèles de qualité de l'air CalPuf/Calmet⁷. CalPuf/Calmet est une combinaison du modèle de transport gaussien (Calpuf) avec un interpolateur météorologique (Calmet). Cette combinaison a été validée par des mesures de terrain et sa capacité à simuler la dérive jusqu'à 2000m.

⁴ <https://www.flexpart.eu/>

⁵ <http://www.ansys.com/fr-FR/Products/Fluids/ANSYS-Fluent>

⁶ <https://www.ars.usda.gov/SP2UserFiles/Place/50820500/Posters/DRIFTSIM.pdf>

⁷ <http://www.src.com/>

En utilisant le modèle à compartiments BAM pour le taux de volatilisation des pesticides depuis le sol, Yates (1993) a utilisé l'approche lagrangienne pour surveiller la dispersion hors-site des vapeurs de pesticides sur une distance de 100m sous le vent de la source. Sa méthode consiste à relâcher une particule depuis le sol vers l'air et de calculer ses trajectoires pour estimer les concentrations près de la source. L'extension de cette méthode à des domaines plus grands a été limitée par le temps élevé de calcul requis.

Dans la même optique, Holterman et al (1997) a utilisé le modèle de marche aléatoire IDEFICS pour décrire les trajectoires des gouttelettes produites par une buse.

MODDAAS-SMOP⁸, développé par l'INRA, est un modèle lagrangien de dispersion et d'échange de gaz-traces et de particules en champ proche pour les couverts végétaux. L'effet de la végétation sur le dépôt est pris en compte pour les particules par les effets d'impaction, et de sédimentation sur les éléments de végétation. Le modèle est actuellement couplé à Thetis, un modèle de turbulence k-e. Le modèle est en 2D pour les gaz et le dépôt est calculé en 3D pour les particules.

A noter que Bozon et al. 2009 ont couplés les résultats d'un modèle analytique avec des informations GIS

⁸ <https://www6.versailles-grignon.inra.fr/ecosys/Productions/Logiciels-Modeles/MODDAAS-SMOP>

4.4.4. Les modèles eulériens

Dans les modèles eulériens, l'air est maillé en cellules multidimensionnelles. La concentration d'un composé est calculée pour chaque cellule selon l'équation de conservation de la masse et les équations 2D ou 3D d'advection-diffusion afin de représenter les flux entrants/sortants et à l'intérieur de chaque cellule. Les approches eulériennes sont capables de fournir des concentrations atmosphériques de pesticide jusqu'à quelques jours après la pulvérisation de l'échelle de la plante à l'échelle régionale. En terrain complexe ou pour obtenir des champs de concentrations détaillés, la vitesse moyenne du vent et l'intensité de la turbulence doivent être calculés à des échelles spatiales fines résolvant les équations de Navier-Stokes. L'inconvénient de ce type de modélisation est sa complexité de mise en œuvre et son coût élevé de temps de calcul.

Van Jaarsveld and Van Pul (1999) ont listé des modélisations eulériennes et de pesticides avec les modèles (EUROS (Van Pul et al. 1996), MATCH (Persson and Ullerstig, 1996), ASIMD (Pekar and Van Pul, 1998).

Les modèles LES (Large-Eddy Simulation) présentent l'avantage de calculer la dynamique des champs de vents instantanés. Ils permettent de simuler des rafales de vent dans la couche limite (e.g. Dupont and Brunet, 2009). Cette technique permet d'analyser en détails la turbulence de la canopée. Dans le cadre de sa thèse, Chahine (2011) a utilisé le modèle atmosphérique ARPS (Advanced Regional Prediction System) pour simuler la dispersion de pesticides à l'échelle de quelques rangs et d'une parcelle de vigne. Ce modèle a été développé au CAPS (Center for Analysis and Prediction of Storms) de l'Université d'Oklahoma (Xue *et al.* 1995, 2000) puis modifié et validé pour des canopées homogènes et hétérogènes par Dupont and Brunet (2008a,b) en introduisant l'approche de la force de traînée pour représenter l'action de la végétation sur le vent. A noter que le modèle utilise un état de base d'écoulement initialement homogène sur le plan horizontal avec une vitesse verticale nulle et est très coûteux en temps de calcul.

Les modèles RANS (Reynolds Averaged Navier-Stokes simulation) consistent à calculer la moyenne temporelle des équations de Navier-Stokes pour toutes les échelles. Ils ne permettent donc de n'avoir que des concentrations moyennes.

S. Hupont (2006, 2010) a modélisé la dispersion et de la perte de viabilité de pollen de maïs à courte (échelle de la parcelle) et longue (échelle régionale) distances afin de répondre à des questions liées à la dissémination d'organismes génétiquement modifiés dans l'environnement. A courte distance, il a été montré (avec le modèle Aquilon) que l'utilisation d'une approche eulérienne donnait des résultats identiques à une approche lagrangienne et en accord avec des mesures in situ sur la concentration et le dépôt au sol de grains de pollen en aval d'une parcelle de maïs. A longue distance, une modélisation de la dispersion et du suivi de viabilité des grains de pollen de maïs a été introduite dans Mésoscale-NH de Météo-France. Les simulations effectuées avec ce modèle sur la région Aquitaine ont permis de confirmer la possibilité de présence non négligeable de grains de pollen de maïs viables dans toute la couche limite atmosphérique due à la convection thermique fréquente pendant la période de pollinisation.

Le projet MODAPEX décrit dans le rapport final de Brunet et al. (2013) a concerné la prévision des taux d'exposition des pesticides dans l'air et au sol à des échelles comprises entre celle de la parcelle et celle du paysage. La dispersion régionale a été modélisée via la plateforme BatchDriftX. Ce dernier a été construit à partir d'un code source (DriftX) couplé avec un Système d'Information Géographique pour créer la plateforme DriftGIS. DriftX est un modèle qui calcule la dispersion des quantités émises vers l'air pendant les traitements. Son principe est décrit dans Brun (2007) et Bozon et al. (2008). Dans le cadre de ce projet, le code DriftX a été modifié pour pouvoir intégrer les émissions vers l'air obtenues par le code LES ARPS et des fichiers vectoriels synthétisant les pulvérisations à simuler et leurs caractéristiques.

5. Conclusions de l'étude bibliographique et perspectives de mise en œuvre

Les approches des différents modèles de simulation de la dispersion des pesticides dans l'atmosphère diffèrent de par les échelles de temps et spatiales considérées.

Pour évaluer le risque d'exposition et de contamination environnementale, les échelles d'espace (allant jusqu'à quelques kilomètres) apparaissent comme cruciales car une partie des gouttelettes est dispersée sur de telles distances au moment de la pulvérisation.

Cependant la plupart des modèles de dispersion ne sont pas encore applicables à cette échelle. La plus grande difficulté est de relier la complexité du flux de vent induit par les hétérogénéités de surface (causée par la présence de route, champs, forêts... de différentes hauteurs). L'approche lagrangienne est utilisée à l'échelle des équipements de pulvérisation et s'adresse donc aux gouttelettes et non à la phase « volatilisation en post application ».

A l'opposé, les modèles de boîte/compartiments ne sont applicables qu'à échelle plus grande que celle du paysage du fait des approximations fortes utilisées. Ce type de modèle est également restreint à l'évaluation des transferts post-application. L'approche gaussienne n'est pas applicable pour des surfaces hétérogènes avec des champs de vents complexes. Les champs de vents complexes sur la canopée, sur quelques parcelles, sont modélisables en utilisant les approches lagrangienne ou eulérienne coûteuses en temps de calcul.

Brunet (2013) présente une tendance récente en modélisation des pesticides rejoignant celle de la qualité de l'air : **le couplage entre les échelles locale et régionale**. Un modèle LES (Large Eddy Simulation) appliqué à l'échelle d'une parcelle permet de calculer les concentrations et le flux de pesticide de la parcelle qui sont ensuite utilisés comme donné d'entrée « source » dans une modélisation à l'échelle du paysage (régionale)

Comme l'écrivent De Leew *et al.* (2000) ou encore l'EEA⁹, **toute mise en œuvre d'un système de modélisation doit répondre à des objectifs déterminés.**

Avant de mettre en œuvre une modélisation, il faudra déterminer :

→ Quel(s) composant(s) veut-on et doit-on modéliser ?

Le nombre de différents processus atmosphériques diffère grandement entre les composants gazeux et les aérosols. Si le composant est relativement chimiquement inerte, la chimie dans le modèle pourra être décrite par des processus linéaires ou négligés. A noter que le fait qu'un composant soit inerte ou non dépend, parmi d'autres facteurs, des échelles spatiales et de temps. Par exemple, le benzène peut être considéré comme inerte à l'échelle locale (moins de 30km) correspondant au temps de trajet de seulement quelques heures. A l'échelle continentale (2000km, parcourus en quelques jours) la dégradation chimique du benzène doit être modélisée. Si le composant est réactif : il faut identifier les autres composants impliqués et les équations chimiques correspondantes.

→ Quelle est l'échelle de temps ? Quelles sont les distances typiques entre émetteur et récepteur ou autrement dit quelle est l'échelle spatiale ?

En champ proche, le temps de transport entre émission et récepteurs est si court que certains processus comme la déposition et la chimie atmosphérique peuvent être négligés. Dans ce cas, un modèle simple peut être utilisé. Par contre ils ne doivent plus l'être pour les échelles supérieures.

⁹ <http://www.eea.europa.eu/publications/TEC11a/page011.html>

Perspectives de mise en œuvre opérationnelle

Apporter des informations / recommandations pour optimiser les épandages ou évaluer des actions préventives

Le directeur général de l'alimentation (DGA) a adressé le 27 janvier 2016 une instruction technique aux préfets et aux directions régionales de l'agriculture relatives à la protection des personnes vulnérables lors des épandages de pesticides. Cette note précise les mesures de protection prévues par la loi d'avenir pour l'agriculture d'octobre 2014, et se veut être une « boîte à outils à la disposition des préfets de département afin de leur permettre d'appréhender les situations locales, en l'état actuel des connaissances »¹⁰.

Les mesures mentionnées sont :

- Une distance minimale de 5 mètres pour les cultures basses (grandes cultures, cultures légumières...), 20 mètres pour la viticulture, 50 mètres pour l'arboriculture,
- Des dates et horaires de traitement
- La mise en place de haies antidérive
- Des moyens matériels permettant de diminuer le risque de dérive de pulvérisation

La mise en place de modélisation pour évaluer l'efficacité des actions de l'instruction DGA est envisageable sous réserve de satisfaire aux contraintes ci-dessous :

Mesure	Contraintes	Type de modélisation
Distance minimale	Résolution spatiale fine Champ proche	CFD, LES
Dates et horaires	Echelle temporelle < jour (horaire ou trihoraire) des émissions et de la modélisation	CFD, LES Lagrangien
Haies anti-dérive	Résolution spatiale fine	CFD, LES Modélisation du jet et de la dérive
Diminution de la dérive	Instationnarité du jet Résolution fine	Modélisation du jet Lagrangien

Dans ce contexte, il y a donc une nécessité d'une résolution spatiale et temporelle fine. Les phénomènes pendant et post application sont importants, l'inventaire spatialisé établi par Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, tel que réalisé actuellement ne peut pas être utilisé.

Les substances à prendre à compte seraient déterminées par la culture étudiée.

Nos modèles de qualité de l'air actuels (CHIMERE : Menut *et al.* 2013, CAMx : Wagstrom 2008) ont été développés dans l'optique de prédire la qualité de l'air à une échelle régionale, et/ou continentale. Leur résolution est donc large (à partir du kilomètre) et les flux de surface correspondant aux processus d'émission et de dépôt y sont représentés par des paramétrisations relativement simples. Ces modèles méso-échelle ne sont pas adaptés pour travailler à des échelles beaucoup plus fines pour les pesticides, et ce pour plusieurs raisons :

1. Une réduction des pertes aériennes peut s'opérer dès la source ; la géométrie du système pulvérisateur – couvert végétal, en relation avec les conditions microclimatiques et topographiques locales, a un impact fort sur les quantités de produit s'échappant par dérive ;
2. Plusieurs types d'aménagements ont été envisagés afin de limiter l'impact de la contamination aérienne (mise en place de zones non traitées, de zones tampons, de haies, pulvérisation sous filets, etc.) ; l'étude de leurs effets conduit à s'intéresser aux caractéristiques fines du paysage autour de la parcelle traitée ;

¹⁰ <http://www.actu-environnement.com/ae/news/epandage-pesticides-boite-outils-haie-coupe-vent-protéger-enfants-sante-26198.php4>

3. Ces modèles de qualité de l'air calculent des niveaux de pollution de fond, et donc des expositions essentiellement moyennes.

Les modèles de qualité de l'air à l'échelle urbaine tels que SIRANE et ADMS sont adaptés pour décrire des concentrations à l'échelle de la dizaine à quelques centaines de mètres. Ils n'ont à ce jour pas été utilisés dans le cadre d'études liées aux pesticides car ils n'intègrent qu'un schéma de dépôt sec de particules et de dérive mais aucune chimie propre aux pesticides.

Evaluer l'exposition de la population de la région Auvergne-Rhône-Alpes aux pesticides pour en dégager les risques chroniques et/ou aigus ou fournir une couche de données complémentaires dans les travaux de croisement de données environnementales (concernant actuellement l'air et le bruit)

Traiter la question de l'exposition de la population de la région aux pesticides **dans son ensemble** à l'aide des modèles de qualité de l'air « classiques » en combinant estimation des émissions puis dispersion/ réaction chimique/dépôts comme cela est fait pour les oxydes d'azote par exemple pose de nombreuses difficultés. En effet, la synthèse bibliographique a montré la complexité de la modélisation des processus, dépendant notamment de la substance concernée.

Par ailleurs, avant de mettre en œuvre la modélisation du devenir des pesticides dans l'air, la question des sources est cruciale. L'inventaire spatialisé des émissions, élaboré par Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, correspond aux émissions par volatilisation des pesticides, **estimées de manière annuelle**. Une modulation pour des **substances particulières** par mois pourrait être envisagé mais il est délicat de descendre en dessous de cette échelle de temps. De même la résolution spatiale des émissions est à une échelle assez large, le code postal (qui comprend plusieurs communes). Il n'est alors pas possible d'envisager une modélisation fine (type LES).

Les mesures réalisées jusqu'à aujourd'hui ont montré que contrairement à des polluants comme les oxydes d'azote, les pesticides ne sont pas présents dans l'air toute l'année, certaines substances ne sont quantifiées qu'une seule semaine par an. De par cette spécificité, et compte-tenu de la complexité, la modélisation des concentrations de pesticides dans l'air doit probablement être abordée de manière similaire à celle des pollens. Concernant ces derniers, la modélisation mise en œuvre par Atmo Auvergne-Rhône-Alpes **ne concerne que l'ambrosie sur une saison**.

Par ailleurs, en Auvergne-Rhône-Alpes, fleuves, vallons, montagnes, villes et très grosses agglomérations composent le terrain qui est donc complexe et le sol très hétérogène.

Dans ce cadre, **un cadrage plus précis des besoins en modélisation doit encore être effectué**, notamment en se rapprochant des acteurs de la santé.

En conclusion, la synthèse réalisée montre l'étendue de la complexité de cette problématique, qui n'est pas assez avancée pour une mise en œuvre opérationnelle à l'échelle régionale. De nombreux travaux restent nécessaires, qui dépassent le cadre d'Auvergne-Rhône-Alpes. Il apparaît donc incontournable de suivre les travaux des acteurs ayant déjà travaillé depuis plusieurs années sur ces thématiques qu'ils soient français comme l'INRA ou l'IRSTEA, ou européens comme le groupe "FOCUS" (FORum for Co-ordination of pesticide fate models and their Use)¹¹ et de restreindre le champ d'investigation.

¹¹ Cette organisation est une initiative de la commission Européenne pour harmoniser les estimations des concentrations environnementales prévisibles (predicted environmental concentrations PEC) des substances actives des pesticides (plant protection products PPP) dans le cadre de la directive Européenne 91/414/EEC. FOCUS est basé sur la coopération entre les scientifiques des agences de contrôle, le monde académique, et les industriels. Ce travail a débuté en 1993 via le FOCUS Leaching Modelling Workgroup et la nomination d'un comité de direction. Depuis, différents groupes se sont constitués. Dans plusieurs pays européens, des programmes de recherche à des échelles nationales ou régionales ont été menés pour suivre la qualité des eaux de surface et des eaux souterraine

Bibliographie

Air Rhône-Alpes (2014) - Estimation des émissions potentielles de pesticides dans l'air en région Rhône-Alpes. Estimation des quantités et répartition géographique.

Rapport téléchargeable à cette adresse :

http://www.air-rhonealpes.fr/sites/ra/files/publications_import/files/rapport_final_estimation_emissions_pesticides_.pdf

Atmo Auvergne-Rhône-Alpes (2017) Estimation des émissions de pesticides vers l'atmosphère en Auvergne-Rhône-Alpes

Attard J. et A. KLINGHAMMER, 2015 : Comprendre et réduire les émissions des produits phytosanitaires, ECOPHYTO, http://www.alsace.chambagri.fr/uploads/media/8_comprendre_et_reduire_les_emissions_des_produits_phytosanitaires_01.pdf

Barneaud A., 2002: Eléments d'évaluation de l'exposition des habitants du vignoble nantais aux pesticides dans l'atmosphère, Mémoire de fin d'études, Formation d'Ingénieurs du Génie Sanitaire de l'Ecole Nationale de la Santé Publique, 12-16

Bedos C., Loubet B., Barriuso E., 2013 : Contamination des eaux de surface par les pesticides : évaluation de la part des dépôts gazeux aériens, *Innovations Agronomiques* 28 (2013), 25-33

Bedos C., Cellier P., Calvet R., Barriuso E., Gabrielle B., 2002: Mass transfer of pesticides into the atmosphere by volatilisation from soils and plants : overview, *Agronomie*, N°22, 21-33

Bedos, C., Loubet, B. and Barriuso, E., 2013. Gaseous Deposition Contributes to the Contamination of Surface Waters by Pesticides Close to Treated Fields. A Process-Based Model Study. *Environmental Science & Technology*, 47(24): 14250-14257.

Brunet Y. (coord.), 2009 : Dispersion du pollen de maïs à longue distance : sources, transport, dépôt, Rapport final, ACI 'Impact des OGM', OGM 009, 36 p.

Bunet Yves, Sylvain Dupont, Ali Chahine, Carole Sinfort 2013 : MODAPEX : MODELISATION DE LA DISPERSION AERIENNE DES PESTICIDES ET DES NIVEAUX D'EXPOSITION A L'ECHELLE DU PAYSAGE, PROGRAMME « EVALUATION ET REDUCTION DES RISQUES LIES A L'UTILISATION DES PESTICIDES », rapport scientifique, 42p

Burrows H.D., M. Canle L, J.A. Santaballa , S. Steenken, 2002: Reaction pathways and mechanisms of photodegradation of pesticides, *Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology* 67, p71–108.

Carozzi, M., Loubet, B., Acutis, M., Rana, G. and Ferrara, R.M., 2013. Inverse dispersion modelling highlights the efficiency of slurry injection to reduce ammonia losses by agriculture in the Po Valley (Italy). *Agric. For. Meteorol.*, 171–172(0): 306-318.

Chahine Ali, 2011 : Modélisation de la dispersion aérienne de pesticides des échelles locales aux échelles régionales, influence des aménagements et quantification des niveaux d'exposition Thèse de Doctorat, Centre International d'Etude Supérieures en Sciences Agronomiques, Montpellier SupAgro, 184p.

Davakis E., Degliannis P., 2000. Dispersion modelling intercomparison exercise. *Int. J. Environ. Poll.*, 14, 176–185. → The participating models are AUSTAL86 (TA–Luft), IFDM (VITO), ISCST2 (EPA), OML (NERI), OPS (RIVM), PLUIMPLUS (TNO), STACKS (KEMA) and UK–ADMS (CERC)

De Luca M., A. Valle, R. Borghi 2007 : Contribution à la modélisation de la pulvérisation d'un liquide phytosanitaire en vue de réduire les pollutions, Journées Interdisciplinaires sur la Qualité de l'Air, Villeneuve d'ASCQ, 10p, 25-26 janvier 2007, [hal-00468533](https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00468533)

DE LEEUW FRANK A. A. M., W. ADDO J. VAN PUL, FREDERIK VAN DEN BERG and ANDREW J. GILBERT 2000: THE USE OF ATMOSPHERIC DISPERSION MODELS IN RISK ASSESSMENT DECISION SUPPORT SYSTEMS FOR PESTICIDES, *Environmental Monitoring and Assessment* 62: 133–145.

Derwent R.G., Hov O., Asman W.A.H., Van Jaarsveld J.A., De Leuw, F.A.A.M., 1989. An intercomparison of long-term atmospheric models: the budgets of acidifying species for The Netherlands. *Atmos. Environ.*, 23, 1893–1909.

Dupont S., Y. Brunet, N. Jarosz, 2006: Eulerian modelling of pollen dispersal over heterogeneous vegetation canopies, *Agricultural and Forest Meteorology*, 141, 82-104.

Dupont 2010 : HDR

DUPUY C. et MARLIEREF. 2000 : Mesure des pesticides dans l'atmosphère, INERIS DRC-00-23449- AIRE -569a-CDu-FMr

EXTOXNET 1993: Extension Toxicology Network : Toxicology Information Briefs : A Pesticide Information Project of Cooperative Extension Offices of Cornell University, Oregon State University, the University of Idaho, and the University of California at Davis and the Institute for Environmental Toxicology, Michigan State University. Major support and funding was provided by the USDA/Extension Service/National Agricultural Pesticide Impact Assessment Program. <http://extoxnet.orst.edu/tibs/movement.htm>

FOCUS (2008). "Pesticides in Air: Considerations for Exposure Assessment". Report of the FOCUS Working Group on Pesticides in Air, EC Document Reference SANCO/10553/2006 Rev 2 June 2008. 327 pp

Foudhil Hadjira 2002 : Développement d'un modèle numérique de dispersion atmosphérique de particules à l'échelle d'un paysage hétérogène, Thèse de Doctorat de l'Université Bordeaux I, 298p

Guiral C., Bedos C., Ruelle B., Basset-Mens C., Douzals JP, Cellier P, Barriuso E. (2016) Les émissions de produits phytosanitaires dans l'air. Facteurs d'émission, outils d'estimation des émissions, évaluations environnementales et perspectives de recherche – Synthèse ADEME 47p

Habets, F, E. Ledoux, P. Viennot, E. Philippe, C. David, E. Moreau Guigon, H. Blanchoud, P-A. Jayet, A. Bacchi, P. Zakharov, 2008, Evolution du modèle hydrogéologique MODCOU et stratégie de couplage avec un modèle économique et un modèle de pesticide, Rapport du PIREN Seine.

Houze E. 2003 : mesure des pesticides dans l'air ambiant en milieu urbain, rapport Air Breizh, 78 p
http://www.airbreizh.asso.fr/uploads/media/Campagne_Phyto_Rennes_ete03.pdf

Kiss A, Virag D. 2009 : Photostability and photodegradation pathways of distinctive pesticides *J Environ Qual.*;38(1):157-63. doi: 10.2134/jeq2007.0504. Print 2009 Jan-Feb.

10

Lichiheb, Nebila, Carole Bedos, Erwan Personne, et Enrique Barriuso. « Synthèse des connaissances sur le transfert des pesticides vers l'atmosphère par volatilisation depuis les plantes ». Text. <http://irevues.inist.fr/pollution-atmospherique>, 10 mars 2015. <http://odel.irevues.inist.fr/pollution-atmospherique/index.php?id=4732&format=print>.
Pollution atmosphérique - 2015 - N° 224, Janvier-mars 2015

Loubet Benjamin: Dépôts de polluants et particules troposphériques, <http://www6.versailles-grignon.inra.fr/ecosys/Enseignement/Cours>

Loubet, B., Générumont, S., Cohan, J.P., Charpiot, A., Morvan, T., Trochard, R., Eveillard, P., Champolivier, L., De Chezelles, E. and Espagnol, S., 2012. A new method for estimating ammonia volatilization from slurry in small fields using diffusion samplers, International Symposium on Emissions of Gas and Dust from Livestock (EMILI 2012), Saint-Malo, France, pp. 4.

Loubet, B., Générumont, S., Personne, E. and Massad, R.S., 2011. Can we estimate ammonia emissions by inverse modelling with time averaged concentrations?, Nitrogen and Global Change, Edinburgh, pp. 2.

Loubet, B., Générumont, S., Ferrara, R., Bedos, C., Decuq, C., Personne, E., Fanucci, O., Durand, B., Rana, G. and Cellier, P., 2010. An inverse model to estimate ammonia emissions from fields. European Journal of Soil Science, 61: 793-805.

Loubet, B., Milford, C., Sutton, M.A. and Cellier, P., 2001. Investigation of the interaction between sources and sinks of atmospheric ammonia in an upland landscape using a simplified dispersion-exchange model. J. Geophys. Res.-Atmos., 106(D20): 24183-24195.

Menut L, B.Bessagnet, D.Khvorostyanov, M.Beekmann, N.Blond, A.Colette, I.Coll, G.Curci, G.Foret, A.Hodzic, S.Mailler, F.Meleux, J.L.Monge, I.Pison, G.Siour, S.Turquety, M.Valari, R.Vautard and M.G.Vivanco, 2013, CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling, Geoscientific Model Development, 6, 981-1028, doi:10.5194/gmd-6-981-2013

Mensink C., Maes G., 1997. Comparative sensitivity study for operational short-range atmospheric dispersion models. *Int. J. Environ. Poll.*, 8, 356-366

Merabet Smail, Abdelkrim Bouzaza, Mohamed Bouhelassa et Dominique Wolbert, 2009 : Modélisation et optimisation de la photodégradation du 4-méthylphénol dans un réacteur à recirculation en présence d'UV/ZnO *Revue des sciences de l'eau / Journal of Water Science*, vol. 22, n° 4, p. 565-573.

MILLET M. (1999 ?), Etude des processus qui conduisent à la contamination de l'atmosphère par les produits phytosanitaires, rapport bibliographique

Moesta Hasso et Masayuki Murabayashi, 1993 : Thermodynamic modelling and photodegradation of some pesticide *Bull. Inst. Environ. Sci. Technol. Yokohama Natl. Univ.* 19:39-49.

Moreau-Guigon E., H. Blanchoud, M. Chevreuil, 2007 : Transferts des pesticides vers les eaux superficielles et l'atmosphère : caractérisation et modélisation sur le bassin versant de la Vesle, http://www.metis.upmc.fr/piren/?q=webfm_send/27
<http://www.metis.upmc.fr/piren/?q=book/export/html/19>

Moreau Guigon E., Bacchi A., Botta F., Viennot P., Habets F. et Blanchoud H. 2008. Description du concept de fusion entre Phytodel et STICS-Phyto-MODCOU-NEWSAM pour la modélisation du transfert des pesticides vers l'atmosphère et les eaux de surface et souterraines. Rapport d'activité 2007 du PIRENSeine.

Palau J.L., Sales M.J., Rovira F., Knowles S., 2013 : Comparison of Long-Range Transport and dry and wet deposition of selected C3 – C6 Chlorinated Organic Compounds on two different climatic regions of Europe

Panic I., 2003 : Synthèse bibliographique sur la dispersion de pesticides dans l'atmosphère
https://www.google.fr/url?sa=t&rct=j&q=&esrc=s&source=web&cd=8&ved=0ahUKewivgdb5rKLMAhWCRBoKHbdJAZUQFghLMAC&url=http%3A%2F%2Fwww6.versailles-grignon.inra.fr%2Fecosys%2Fcontent%2Fdownload%2F3900%2F45111%2Fversion%2F1%2Ffile%2FvankaPanic2003_Synth%25C3%25A8seBiblio.pdf&usq=AFQjCNF--DgYghIK72SsIIJTD7S2e9Rj4w&sig2=-4zsxPNj6M-dROYyWjEusg&cad=rja

Petit, C., Loubet, B., Rémy, E., Aubry, C., Duguay, F., Missonnier, J., Cellier, P., Feiz, A.A., Blondeau, C., Mauclair, C. and Durand, B., 2013. Dépôt de polluants sur les espaces agricoles à proximité des voies de transport en Île-de-France Vertigo - la revue électronique en sciences de l'environnement, Hors-série 15, février 2013.

Personne, E., Loubet, B., Herrmann, B., Mattsson, M., Schjoerring, J. K., Nemitz, E., Sutton, M. A., and Cellier, P.: SURFATM-NH3: a model combining the surface energy balance and bidirectional exchanges of ammonia applied at the field scale, *Biogeosciences*, 6, 1371–1388, doi:10.5194/bg-6-1371-2009, 2009.

Rat A., E. Ledoux, P. Vienn, 2007 : Transferts de pesticides vers les eaux souterraines, modélisation à l'échelle d'un bassin versant (Cas d'étude du bassin amont de la Vesle), Centre de Géosciences, Ecole des Mines de Paris http://www.metis.upmc.fr/piren/?q=webfm_send/26

SANUSI A.A.(1996), Comportement physico-chimique et transport des pesticides particulaires et gazeux dans l'atmosphère, thèse de doctorat de 3^{ème} cycle, Université Louis Pasteur de Strasbourg, 22-72

Sidahmed M., R. B. Brown 2001: Simulation of Spray Dispersal and Deposition from a Forestry Airblast Sprayer --- Part I: Air Jet Model, *Transactions of the ASAE*. Vol. 44(1): 5-10 . (doi: 10.13031/2013.2297) @2001

Stella P., E. Personne, B. Loubet, E. Lamaud, E. Ceschia, P. Béziat, J. M. Bonnefond, M. Irvine, P. Keravec, N. Mascher, and P. Cellier: Predicting and partitioning ozone fluxes to maize crops from sowing to harvest: the Surf atm-O3 model , *Biogeosciences Discuss.*, 8, 6701-6741, 2011.

Teske, M. E., S. L. Bird, D. M. Esterly, T. B. Curbishley, S. L. Ray and S. G. Perry. 2002, «AgDRIFT : A model for estimating near-field spray drift from aerial application», *Environmental Toxicology and Chemistry*, vol. 21,3, pp. 659–671.

Teske, M. E. and H. W. Thistle. 2004, «Aerial application model extension into the far field», *Biosystems Engineering*, vol. 89, pp. 29–36.

Van Jaarsveld, J.A, and Van Pul, (1999). Modelling of Atmospheric Transport and Deposition of Pesticides, *Water, Air Soil Pollut.*, 115, 167 – 182

Voltz Marc *et al.* Expertise scientifique collective "Pesticides, agriculture et environnement" chap.3 : Devenir et transfert des pesticides dans l'environnement et impacts biologiques https://www.google.fr/url?sa=t&rct=j&q=&esrc=s&source=web&cd=9&ved=0ahUKEwivgdb5rKLMAhWCRBoKHbdJAZUQFghQMAg&url=http%3A%2F%2Fwww7.inra.fr%2Fcontent%2Fdownload%2F5801%2F62727%2Ffile%2Fpesticides-3texte-leger.pdf&usg=AFQjCNGbmg9-PHVSZVq0ECAN7aG5ZINqdQ&sig2=HkfH_do5yHtxBXwNf_KZXQ&cad=rja

Wagstrom Kristina M., Spyros N. Pandis, Greg Yarwood, Gary M. Wilson, Ralph E. Morris, 2008: Development and application of a computationally efficient particulate matter apportionment algorithm in a three-dimensional chemical transport model, *Atmospheric Environment*, 42, 5650–5659.

Annexes

ANNEXE 1 – Synthèse sur les modèles de volatilisation

D'après Rüdél (1997), dans les 24h suivant l'application, les flux de volatilisation émis depuis le couvert végétal peuvent être jusqu'à 13 fois plus importants que ceux émis depuis le sol, selon le pesticide considéré. La volatilisation plus intense depuis la plante plutôt que depuis le sol peut s'expliquer par l'absorption plus faible des pesticides sur les végétaux que sur les particules du sol, l'exposition accrue des résidus de pesticides foliaires aux turbulences atmosphériques et une surface d'échange plus importante.

Plusieurs modèles décrivent la volatilisation depuis un sol nu, tels que le modèle Volt'Air (Bedos *et al.* 2009 ; Garcia *et al.* 2011), BAM (Jury *et al.* 1983), PEARL (Leistra *et al.* 2005) et PEM (Scholtz *et al.* 2002a). Leurs principales caractéristiques sont présentées Figure 5.

Pour la volatilisation depuis la plante, peu de modèles existent (PEM, PEARL, Plant X (Trapp *et al.* 1994), Cemos-Plant (Trapp et Matthies, 1997), SURFATM-Pesticides (Lichiheb *et al.* 2014)). Cette voie de transfert est à ce jour la moins bien renseignée, avec un nombre de références dans la littérature plus limité, bien qu'elle soit reconnue plus intense et plus rapide que la volatilisation depuis le sol, et malgré le fait que de nombreux pesticides soient appliqués sur couvert végétal (Bedos *et al.* 2002 ; Van den Berg *et al.* 1999). Le manque de connaissances sur ce processus est lié essentiellement à la complexité des interactions entre les processus ayant lieu à la surface de la feuille qui sont en compétition avec la volatilisation, à savoir la pénétration foliaire, la photodégradation et le lessivage par la pluie. Ces processus conditionnent la persistance des pesticides à la surface foliaire et leur disponibilité pour la volatilisation.

La description du processus de volatilisation dans les modèles existants dépend de l'information recherchée (quantification du processus et/ou étude des mécanismes nécessaires à sa description) et de l'importance de ce processus par rapport aux autres processus de dissipation des pesticides dans l'environnement. En évaluation des risques de contamination par les pesticides, certains modèles mettent en œuvre une paramétrisation très simplifiée pour prendre en compte le processus de volatilisation comme un processus de dissipation parmi d'autres (Apecop, 2003). Dans ce contexte, McCall (1989) décrit le processus de volatilisation selon une cinétique de premier ordre en intégrant un coefficient de volatilisation empirique déduit d'expérimentations en conditions contrôlées.

Le tableau ci-dessous issu de Lichiheb et al. (2015) présente de manière synthétique les modèles permettant de décrire les flux de volatilisation des pesticides depuis les plantes. En se basant sur la littérature, cinq modèles ont été identifiés qui intègrent une description plus au moins mécaniste des processus de pénétration foliaire, de photodégradation et de lessivage à l'eau de pluie. Il s'agit du modèle PEM (Pesticide Emission Model) qui est un modèle développé pour fournir aux modèles météorologiques de transport de polluants une estimation des taux d'émission par volatilisation des pesticides appliqués sur le sol et sur la végétation (Scholtz *et al.* 2002a ; Scholtz *et al.* 2002b). Parmi les modèles utilisés au niveau européen dans le cadre de l'homologation des pesticides, PEARL (Pesticide Emission Assessment at Regional and Local scales) est le modèle qui décrit le processus de volatilisation des pesticides à partir de la plante de la manière la plus avancée (Leistra et Wolters, 2004). Les modèles Plant X et Cemos-Plant ont été développés pour décrire les processus d'absorption et de transfert des composés organiques dans les plantes, et ils sont applicables à différentes espèces végétales (Trapp *et al.* 1994 ; Trapp et Matthies, 1997). Le modèle SURFATM-Pesticides a été développé à partir du modèle d'échange sol-plante-atmosphère SURFATM (Personne *et al.* 2009) pour simuler les flux de volatilisation des pesticides depuis les plantes. Une première version du modèle se base sur une cinétique de premier ordre avec des coefficients empiriques pour décrire les processus de pénétration foliaire et de photodégradation (Lichiheb *et al.* 2014). Une amélioration du modèle SURFATM-Pesticides via une paramétrisation basée sur une approche de compartimentation des résidus de pesticides à la surface de la feuille a été développée afin de décrire d'une manière mécaniste le processus de pénétration foliaire (Lichiheb, 2014). Ces différents modèles présentent un niveau de validation varié lié à la disponibilité des jeux de données portant sur la mesure directe de flux de volatilisation des pesticides depuis les plantes.

Modèles	PEM	PEARL	Plant X	Cemos Plant	SURFATM-Pesticides	
Processus	Transfert des pesticides à l'intérieur du couvert	description des transferts turbulent et laminaire par le concept du transfert résistif		Deux approches : (i) le concept du transfert résistif pour décrire les transferts laminaires, et (ii) le concept du transfert résistif pour décrire les transferts turbulent et laminaire	description des transferts turbulent et laminaire par le concept du transfert résistif	description des transferts turbulent et laminaire par le concept du transfert résistif
	Température de surface des feuilles	Simulation de la température de surface des feuilles en intégrant un modèle de bilan d'énergie		Pas de simulation de la température de surface des feuilles	Pas de simulation de la température de surface des feuilles	Pas de simulation de la température de surface des feuilles
	Processus en compétition avec la volatilisation	Pénétration foliaire	Description mécaniste	Description empirique	Description empirique	Description empirique
Photodégradation		Description empirique	Description empirique			
Lessivage par la pluie		Description mécaniste	Non inclus			
Validation du modèle	Pas de validation directe du modèle par un jeu de données comprenant des mesures de flux de volatilisation des pesticides depuis les plantes	Validation du modèle avec deux jeux de données de flux de volatilisation : (i) du chlorothalonil et du parathion appliqués sur la pomme de terre (Van den Berg <i>et al.</i> , 1995), et (ii) du chlorothalonil appliqué sur du blé (Bedos <i>et al.</i> , 2010)		Pas de validation du modèle par un jeu de données comprenant des mesures de flux de volatilisation des pesticides depuis les plantes	Validation du modèle avec deux jeux de données de flux de volatilisation : (i) du chlorothalonil et du parathion appliqués sur la pomme de terre (Van den Berg <i>et al.</i> , 1995), et (ii) du chlorothalonil et de la fenpropidine appliqués sur du blé (Bedos <i>et al.</i> , 2010)	
Référence	(Scholtz <i>et al.</i> , 2002 a,b)	(Leistra et Wolters, 2004)	(Trapp <i>et al.</i> , 1994)	(Trapp et Matthies, 1997)	(Lichiheb <i>et al.</i> , 2014)	

Tableau 2. Récapitulatif des modèles existants décrivant la volatilisation des pesticides depuis les plantes.
Summary of existing models describing pesticide volatilization from plants.

Figure 5: Synthèse des connaissances sur le transfert des pesticides vers l'atmosphère par volatilisation depuis les plantes
 Nebila Lichiheb, Carole Bedos, Erwan Personne et Enrique Barriuso, 2015 *Pollution atmosphérique - 2015 - N° 224, Janvier-mars 2015 - Articles*