

# Contamination des eaux souterraines par des pesticides : cartes de risque et d'incertitudes

Groundwater vulnerability to pesticide contamination : accounting for uncertainties in assessment maps

M. SOUTTER et A. MUSY<sup>1</sup>

Reçu le 12 août 1996, accepté le 22 novembre 1996\*.

## SUMMARY

A method to assess groundwater vulnerability to pesticide contamination on a regional scale has been developed and applied to the Rhone river valley in Valais. Uncertainties regarding vulnerability predictions were accounted for by combining local stochastic simulations, i.e. one-dimensional deterministic pesticide fate models used in a Monte-Carlo process, and interpolation by geostatistical tools. Due to the characteristics of the dataset, several preliminary operations were required including (i) a statistical analysis of soil sample data to derive a probabilistic relationship between soil classes and hydrodynamic properties, (ii) an estimation of the relevant water table depths at soil profile locations by cokriging the minimal and maximal water table heights measured in neighboring wells, and (iii) an analysis of the climate data provided by two stations located close to the study area. In the Monte-Carlo process, soils were described by the probability density functions of particle size distribution and organic carbon content as derived for each soil class from soil sample data and by an empirical uniform distribution of dispersivity. The parameters of moisture retention curves and hydraulic conductivity versus water content relationships were derived using various pedotransfer functions. Water table depth was described by a uniform distribution within the range defined by its minimum and maximum values while empirical uniform distributions outlined the properties of three generic pesticides. The important spatial variations in climate along the valley were accounted for by linear interpolation between the data from the two stations. The three selected simulation models were an analytical solution of the convection-dispersion equation (attenuation factor), a tipping bucket model (Leach-A) and a numerical solution of the convection-dispersion equation (Leach-M). Model sensitivity analysis using Latin hypercube sampling along with multiple regression showed that pesticide properties (degradation rate, partition coefficient), organic carbon content and water table depth are the most important variables regarding cumulative (10 year) pesticide fluxes to the groundwater. This analysis also stressed

1. Institut d'aménagement des terres et des eaux, EPFL-Ecublens, CH-1015 Lausanne, Suisse.

\* Les commentaires seront reçus jusqu'au 31 octobre 1997.

the weak effect of soil hydrodynamic characteristics. Besides, the Latin hypercube sampling technique proved to be very effective in reducing the number of simulations required by the Monte-Carlo process to something manageable. The five simulated cases were: (i) all uncertainties included, (ii) fixed pesticide properties, (iii) fixed pesticide properties and water table depth, (iv) same as (iii) but with empirical distributions for soil characteristics and (v) same as (iii) but with constant average climate conditions. In all cases, the fractiles of the locally simulated distributions show the same spatial pattern, i.e. all their variograms and cross variograms are proportional to the same model. Due to this intrinsic coregionalization property, interpolation may be achieved by kriging independently the various fractiles rather than by cokriging simultaneously all of them. However, integration of spatial uncertainty by sequential gaussian simulation has not been achieved due to excessive computer lasting. The resulting maps show that groundwater vulnerability is very high. Uncertainties are almost of the same order of magnitude, i.e.  $\pm 0.2$  for vulnerability indices ranging within the  $[0, 1]$  interval. Uncertainties on pesticide properties and water table depth account each for some 40% of the resulting uncertainty while the variability in organic carbon content accounts for the remaining 20%. All model outcomes were quite similar, except in the case of the less persistent pesticide with the attenuation factor. The dominant variables are the degradation rate and the partition coefficient of the pesticide, the organic carbon content of the soil and water table depth. Climate is of course the governing process, but 10 to 20% variations do not significantly affect the predicted cumulative pesticide fluxes. Availability of soil sample data regarding particle size distribution as well as pedotransfer functions has little effect on the resulting vulnerability assessments.

*Key words : pesticides, contamination, uncertainties, Monte-carlo, geostatistics.*

## RÉSUMÉ

Une procédure d'évaluation régionale des risques de contamination des eaux souterraines par des pesticides a été développée et appliquée à une partie de la plaine du Rhône valaisanne. La combinaison d'une application stochastique (Monte-Carlo) de modèles déterministes simulant localement le devenir de pesticides et des techniques d'interpolation géostatistique permet d'évaluer également les incertitudes entachant les prédictions effectuées. À chaque boucle de la procédure itérative, les propriétés des divers types de sols sont estimées par l'application de fonctions de pédotransfert à des valeurs de teneur en argile, en silt, en sable et en matière organique générées aléatoirement. Les lois de distribution de probabilité sur lesquelles repose cette opération sont dérivées d'une étude statistique portant sur plus de 500 échantillons de sol prélevés dans la zone d'étude. La technique d'échantillonnage sélectif par hypercubes latins s'est avérée très efficace, tant du point de vue de l'analyse de sensibilité des modèles que pour limiter le nombre de simulations requis par la méthode de Monte-Carlo. Les divers types de modèles utilisés (solution analytique et résolution numérique de l'équation de convection-dispersion, modèle capacitif) conduisent en général à des résultats très similaires. Les cartes obtenues montrent que le risque de contamination est très élevé. Les incertitudes sont d'un ordre de grandeur similaire, i.e.  $\pm 0,2-0,3$  pour des indices de risque compris dans l'intervalle  $[0, 1]$ . Ces incertitudes proviennent à raison d'environ 40-50 % des propriétés des pesticides et d'environ 30-40 % de la profondeur de la nappe phréatique, le 20 % restant étant dû aux incertitudes entachant les caractéristiques des sols, essentiellement leurs teneurs en carbone organique.

*Mots-clés : pesticides, contamination, incertitudes, Monte-carlo, géostatistique.*

## 1 – PROBLÉMATIQUE, OBJECTIFS ET ASPECTS MÉTHODOLOGIQUES

La contamination diffuse des eaux souterraines par divers types de produits utilisés dans le cadre des activités agricoles représente un problème environnemental majeur car la dégradation progressive de la qualité de ces eaux menace à moyen ou à long terme leur fonction de ressource en eau potable. La gestion ou le contrôle de cette forme de pollution est rendue difficile à la fois par son caractère non localisé et par le fait qu'elle est le fruit d'une accumulation progressive, le constat de pollution tout comme celui de l'effet de mesures correctives n'étant souvent possible qu'après un délai de plusieurs années. L'identification des zones à risque aussi bien à l'échelle d'un état qu'à celle d'une région et la mise en place de mesures préventives adaptées aux conditions locales pourraient dans ce contexte constituer un instrument efficace au service d'une véritable politique de gestion des ressources naturelles.

Identifier les zones à risque, c'est procéder à une évaluation systématique du risque pour une vaste superficie. Par les techniques et les instruments qu'elle utilise autant que par les difficultés qu'elle soulève, une telle évaluation régionale s'inscrit dans le cadre plus général du couplage ou de l'intégration des systèmes d'informations géographiques (SIG), des bases de données environnementales et des modèles de simulation, dont les objectifs consistent non seulement à élaborer des outils prédictifs à des fins de gestion, mais également à obtenir une meilleure compréhension des phénomènes.

Les trois problèmes fondamentaux soulevés par ce type de démarches, en particulier lorsqu'elles impliquent une phase de transfert dans la partie non saturée du sol, sont liés à l'échelle spatiale à laquelle les phénomènes sont abordés (JENSEN et MANTOGLIOU, 1992) : (i) la validité d'équations aux dérivées partielles développées pour décrire des processus à l'échelle de la colonne de sol, lorsqu'elles sont appliquées à décrire le comportement global de milieux naturels, (ii) la définition des paramètres « moyens » intervenant dans ces équations et la détermination de valeurs « représentatives », (iii) la qualité des résultats produits, soit les incertitudes dont sont entachées les estimations ou prédictions effectuées.

La démarche retenue dans le cas présent associe des simulations locales du devenir de pesticides dans le sol et une interpolation a posteriori du risque de contamination estimé localement (SOUTTER, 1996). Elle permet ainsi de contourner les deux premiers obstacles évoqués ci-dessus pour ne laisser subsister que la question des incertitudes dont sont entachées les prédictions, incertitudes dont l'estimation est indispensable si une quelconque application des résultats obtenus est envisagée.

Une évaluation régionale véhicule en effet implicitement les incertitudes liées aux approximations successives opérées aussi bien lors de la modélisation des processus et de la généralisation de ces modèles à un vaste domaine que lors de l'estimation des paramètres impliqués (tant au niveau de la mesure que de l'interpolation). L'analyse d'incertitudes est particulièrement importante dans la mesure où il s'agit du seul élément permettant d'appréhender dans une certaine mesure la fiabilité des résultats produits, les méthodes de validation expérimentale traditionnelles n'étant que difficilement applicables, en raison d'une part de l'échelle spatiale étendue sur laquelle porte l'évaluation et d'autre part de la nature intrinsèquement probabiliste de la notion de risque.

L'intégration des incertitudes peut être réalisée par l'utilisation de modèles stochastiques, par l'application stochastique de modèles déterministes (procédure de Monte-Carlo), ou encore, dans le cas de solutions analytiques, par les méthodes de propagation d'erreurs. Si l'approche de Monte-Carlo a été retenue en la circonstance, c'est avant tout parce que les modèles déterministes sont nombreux, disponibles et fréquemment utilisés. Le principe des méthodes de Monte-Carlo est en soi assez simple puisqu'il consiste à échantillonner de manière répétée une fonction réponse  $Y = f(X_1, \dots, X_n)$  pour des ensembles de valeurs  $(X_1, \dots, X_n)$  générés aléatoirement sur la base des fonctions de densité de probabilité définissant les variables  $X_1, \dots, X_n$ , qui sont en l'occurrence les propriétés des sols et des pesticides, les profondeurs de la nappe phréatique et les caractéristiques climatiques.

Appliquée successivement à une série de profils de sol décrits par des sondages, cette procédure permet de construire les distributions de probabilité locales correspondantes du risque de contamination (défini par le rapport de la masse de pesticide atteignant la nappe à la masse appliquée en surface). L'interpolation de ces distributions par les techniques de la géostatistique<sup>1</sup> (krigeage et simulation séquentielle) permet par la suite de reconstruire la distribution du risque pour un point quelconque du secteur traité.

Les objectifs de cette recherche consistaient à (i) évaluer le potentiel et les limites de l'approche méthodologique retenue, et identifier les causes possibles de difficultés, (ii) évaluer les influences relatives et respectives des diverses sources d'incertitudes sur la qualité des résultats obtenus, afin d'identifier les paramètres sur lesquels devrait porter de préférence l'effort d'acquisition de données, et (iii) examiner l'influence du type de modèle de simulation utilisé, en particulier pour déterminer dans quelle mesure une simplification du mode de description des processus altère les prédictions.

## 2 – MODÈLES DE SIMULATION

Les principaux processus affectant le devenir de pesticides dans les sols sont (i) la dégradation biologique, (ii) la dégradation chimique, par des réactions telles que l'hydrolyse, (iii) la sorption par des constituants minéraux ou organiques de la matrice solide du sol, (iv) les prélèvements par les racines de plantes, (v) la volatilisation, soit les pertes de pesticide vers l'atmosphère sous forme gazeuse, et (vi) les phénomènes de diffusion, de dispersion et de convection liés aux transferts d'eau. Leur transcription mathématique prend la forme d'une équation dite de convection-diffusion :

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} (\theta + \rho K_{oc} f_{oc} + \varepsilon K_H) = \frac{\partial}{\partial z} \left[ \theta D(\theta, q) \frac{\partial C_L}{\partial z} + C_L \left( K(\theta) \left( \frac{\partial h(\theta)}{\partial z} + 1 \right) \right) + D_a \tau(\varepsilon) K_H \frac{\partial C_L}{\partial z} \right] + Q \quad (1)$$

1. Les lecteurs peu familiers de ces techniques peuvent se référer à l'excellente introduction de Isaaks et Srivastava (1989).

où  $C_L$  est la concentration en phase liquide [ $\text{kg}/\text{m}^3$ ],  $\theta$  la teneur en eau [ $\text{m}^3/\text{m}^3$ ],  $\rho$  la masse volumique apparente du sol [ $\text{kg}/\text{m}^3$ ],  $K_{oc}$  le coefficient de partition du pesticide [ $\text{m}^3/\text{kg}$ ],  $f_{oc}$  la teneur en carbone organique du sol [ $\text{kg}/\text{kg}$ ],  $K_H$  la constante de Henry modifiée du pesticide [-], soit le rapport de sa densité de vapeur saturante à sa solubilité dans l'eau,  $\varepsilon$  le déficit de saturation [ $\text{m}^3/\text{m}^3$ ],  $D(\theta, q)$  le coefficient de diffusion-dispersion [ $\text{m}^2/\text{s}$ ],  $K(\theta)$  la conductivité hydraulique [ $\text{m}/\text{s}$ ],  $h(\theta)$  la pression matricielle [ $\text{m}$ ],  $D_a$  le coefficient de diffusion moléculaire dans l'air du pesticide [ $\text{m}^2/\text{s}$ ],  $\tau(\varepsilon)$  le facteur de tortuosité [-] et  $Q$  un terme source rendant compte des processus de dégradation, en l'occurrence par une cinétique de premier ordre.

La simulation du comportement de pesticides dans les sols peut faire appel à des modèles incluant de façon plus ou moins complète et détaillée les processus susmentionnés. À l'extrême sophistiqué se situe la résolution numérique de l'équation de convection-dispersion telle qu'écrite ci-dessus (Leach-M ; HUTSON et WAGENET, 1992) alors qu'à l'extrême inverse figurent des solutions analytiques de versions simplifiées de cette équation (facteur d'atténuation AF ; RAO *et al.*, 1985). La simplification résulte en l'occurrence des hypothèses d'un écoulement permanent à capacité de rétention, d'un déplacement de soluté par effet « piston », soit par convection pure sans phénomènes de diffusion-dispersion, et d'un équilibre instantané entre phases :

$$AF = \frac{C_n}{C_0} = \exp \left[ -\frac{1}{q} \sum_{i=1}^n (r_i d_i R F_i (\theta_{fc})_i) \right] \quad (2)$$

où  $C_0$  et  $C_n$  sont les masses de produit respectivement appliquées en surface et transférées à la nappe [ $\text{kg}$ ],  $q$  la recharge annuelle nette [ $\text{m}/\text{j}$ ], et, pour les divers horizons  $i$ ,  $r$  la constante de dégradation [ $\text{j}^{-1}$ ],  $d$  l'épaisseur [ $\text{m}$ ],  $q/c$  la capacité de rétention [ $\text{m}^3/\text{m}^3$ ] et  $RF$  un facteur de retard [-] exprimant la mobilité spécifique du produit dans le sol, soit,  $q_s$  étant la teneur en eau à saturation :

$$RF_i = 1 + \frac{\rho_i (f_{oc})_i K_{oc}}{(\theta_{fc})_i} + \frac{[(\theta_s)_i - (\theta_{fc})_i] K_H}{(\theta_{fc})_i} \quad (3)$$

Un troisième modèle représentatif d'une solution intermédiaire vient compléter cet éventail. Il s'agit d'un modèle capacitif (Leach-A ; ADDISCOTT, 1977), dans lequel les lois de vidange d'une succession de réservoirs se substituent aux processus de convection-dispersion pour décrire les phénomènes de transfert dans les sols.

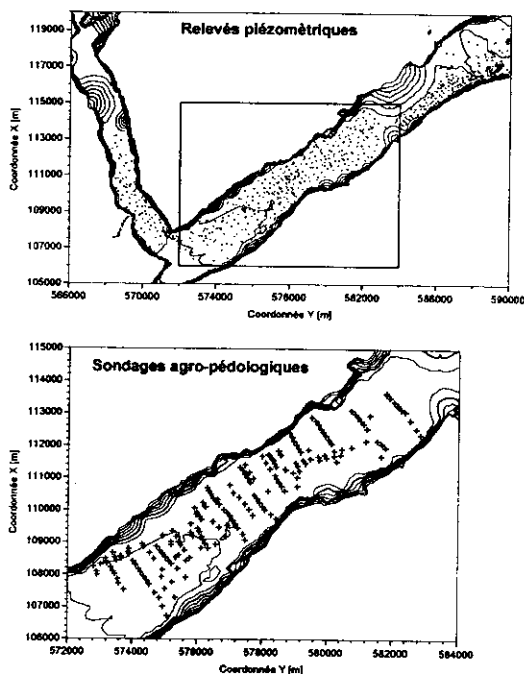
### 3 – ANALYSE ET TRAITEMENT DES DONNÉES

La mise en œuvre de ces modèles dans le cadre d'une procédure de Monte-Carlo implique la détermination préalable, sur une base probabiliste, des divers paramètres concernés, soit les propriétés des sols et des pesticides, la profondeur de la nappe phréatique et les conditions climatiques.

Le secteur d'application retenu se situe dans la plaine du Rhône valaisanne, région pour laquelle de nombreuses informations relatives tant aux sols qu'à la nappe phréatique ont été collectées dans le cadre d'un projet d'implantation de barrages hydroélectriques au fil de l'eau (Hydro-Rhône).

### 3.1 Propriétés des sols

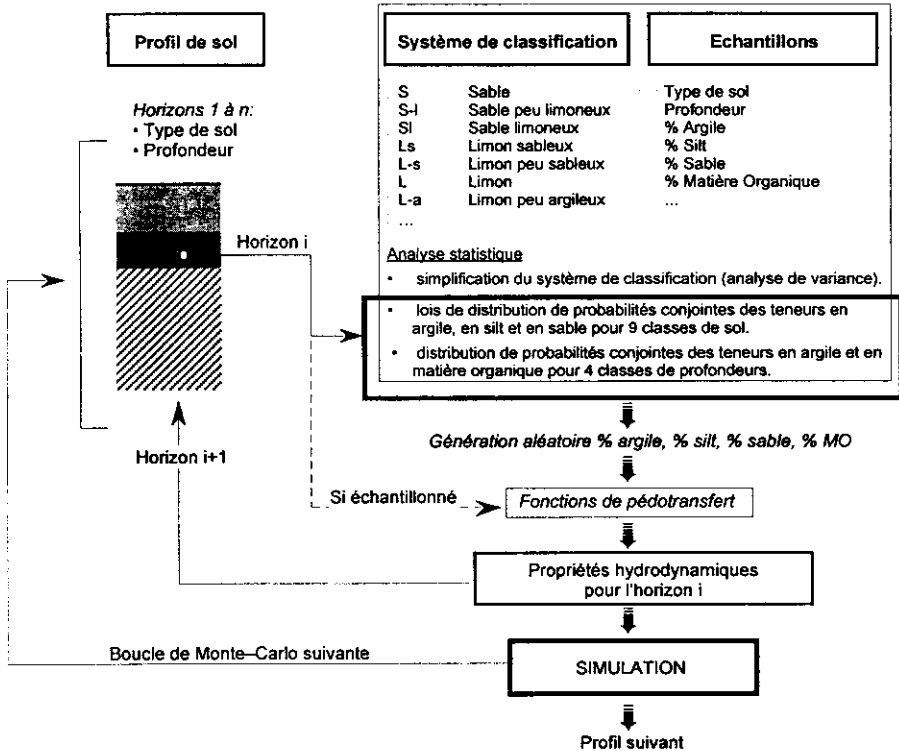
Les données relatives aux sols sont constituées de quelques 196 sondages agro-pédologiques (*fig. 1*) donnant une description qualitative du profil de sol, avec en particulier la profondeur et l'épaisseur des divers horizons, ainsi que leur dénomination dans un système de classification spécifique (transition progressive du sol sableux au sol limoneux, avec une teneur en argile généralement faible). Ces sondages sont complétés par les résultats d'analyse de 511 échantillons de sol relevés sur l'ensemble de la plaine, analyses portant sur les caractéristiques granulométriques, la teneur en matière organique et divers autres paramètres tels que pH, CEC, etc.



**Figure 1** Situation des relevés piézométriques et des sondages agro-pédologiques.  
*Piezometer and soil profile locations.*

L'estimation probabiliste des propriétés hydrodynamiques (relations  $h(\theta)$  et  $K(\theta)$ , cf. équation (1)) d'un horizon de sol, compte tenu de sa dénomination dans le système de classification et de sa profondeur, repose sur l'association des lois de distribution de probabilité correspondantes, déterminées par une analyse statistique de l'échantillonnage (simplification de la classification par une analyse de variance et ajustement de distributions multivariées), pour les caractéristiques granulométriques et la teneur en matière organique, et de fonctions de pédotransfert (*fig. 2*).

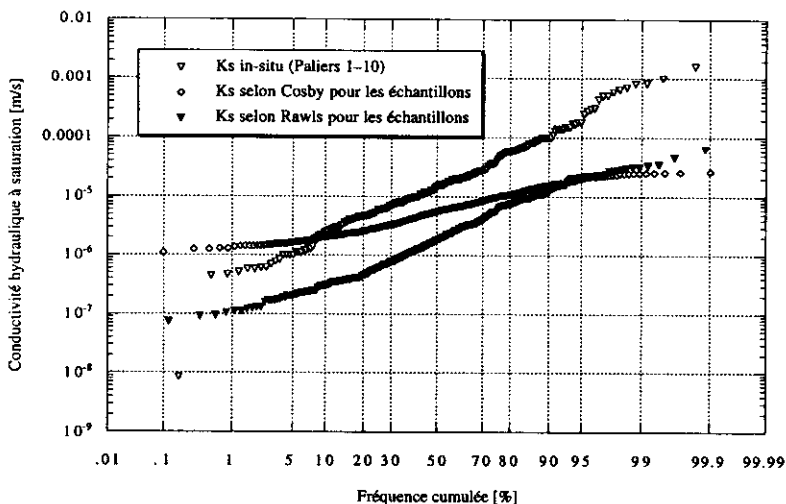
Une étude approfondie (SOUTTER, 1996) a montré qu'en l'absence d'échantillonnage les lois de distributions triangulaires choisies empiriquement sur la



**Figure 2** Estimation des propriétés hydrodynamiques d'un profil de sol.  
*Estimation of soil hydraulic properties.*

base de la logique inhérente au système de classification ne donnent des résultats plausibles qu'avec les fonctions de pédotransfert de COSBY *et al.* (1984) dans lesquelles la teneur en matière organique n'intervient pas<sup>1</sup>. Par contre, les estimations obtenues sur la base de lois de distribution dérivées de l'échantillonnage et en appliquant les fonctions de pédotransfert de RAWLS et BRAKENSIEK (1988, 1985) paraissent meilleures qu'avec celles de COSBY *et al.*, du moins si la forme de la distribution de probabilité cumulée est prise comme critère de comparaison. La figure 3 montre en effet que les valeurs calculées par les fonctions de RAWLS et BRAKENSIEK pour les 514 échantillons de sol prélevés dans le secteur sont distribuées de façon remarquablement similaire aux 288 mesures effectuées *in situ*<sup>2</sup>. Les deux formes d'estimation des propriétés hydrodynamiques des sols évoquées ci-dessus ont toutefois fait l'objet de simulations afin d'évaluer le bénéfice d'un échantillonnage intensif.

1. Cette variable est en réalité distribuée de façon lognormale. Lorsqu'elle est échantillonnée sur la base d'une distribution triangulaire choisie empiriquement, les valeurs obtenues sont globalement trop élevées pour que leur association corrélative aux teneurs en argile permette d'éviter une dispersion totale des conductivités hydrauliques estimées et surtout l'obtention de valeurs absurdes de teneur en eau à saturation (SOUTTER, 1996).
2. Pour une variable telle que la conductivité hydraulique à saturation, une différence d'un ordre de grandeur peut être considérée comme une bonne précision.



**Figure 3** Distributions de probabilité cumulée des conductivités hydrauliques à saturation mesurées *in situ* et calculées pour l'échantillonnage.

*Cummulative pdf's of in situ measured saturated hydraulic conductivity and calculated values of the soil samples.*

Les autres caractéristiques des sols, notamment en regard des phénomènes de diffusion-dispersion, qui ne peuvent être évaluées par des fonctions de pédo-transfert, sont maintenues constantes à une valeur moyenne (cf. analyse de sensibilité, § 4) à l'exception de la dispersivité (distributions uniformes des logarithmes, pour des valeurs comprises entre 1 et 100 mm).

### 3.2 Profondeur de la nappe phréatique

Les données piézométriques disponibles pour le secteur et ses environs immédiats sont constituées par un ensemble de 17046 observations de la cote altimétrique de la nappe, effectuées entre le 18.6.1983 et le 18.3.1986, sur quelques 743 points de mesure (fig. 1). Les fluctuations saisonnières du niveau de la nappe sont liées aux variations de niveau du Rhône, dont le régime nival se caractérise par une période de hautes eaux, liée à la fonte des neiges en été, et par une période de basses eaux en hiver. Les précipitations d'une certaine importance (> 15-20 mm/j) peuvent également provoquer des variations importantes du niveau de la nappe, qui ne présentent toutefois pas le caractère généralisé propre aux fluctuations saisonnières, restant en général très localisées. Dans le secteur étudié, la nappe se situe généralement à une cote comprise entre 1,0 et 2,0 m et entre 0,5 et 1,0 m en-dessous du niveau du Rhône, qui est endigué, en période de hautes et de basses eaux respectivement. L'écoulement de la nappe se fait parallèlement au fleuve (pente de 1 ‰), sauf aux abords immédiats de son lit et dans quelques zones situées au pied des versants (GÉOVAL, 1986).

Du point de vue de la simulation locale du comportement de pesticides, l'hypothèse de fluctuations sinusoïdales entre des cotes minimales et maximales paraît satisfaisante. Cette hypothèse ne peut cependant être intégrée à la simulation que dans le cas de la résolution de l'équation de convection-dispersion

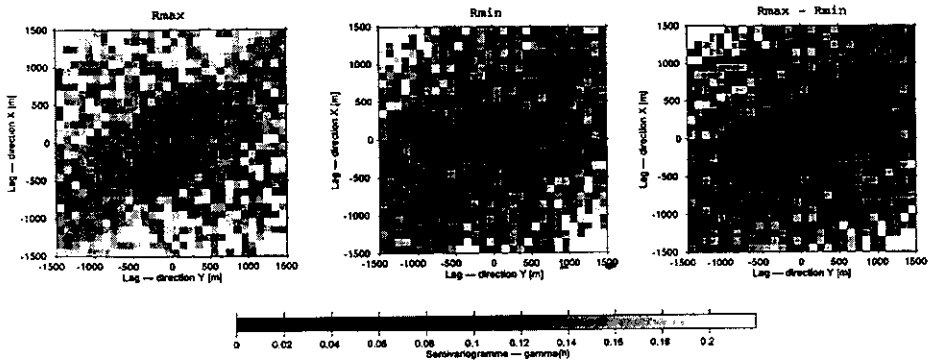


(Leach-M), si bien qu'une distribution uniforme entre cotes minimales et maximales a été retenue pour caractériser la nappe dans les deux autres cas.

Comme les sites d'observations piézométriques ne correspondent généralement pas aux sites des sondages agro-pédologiques formant le substrat des simulations locales, il était nécessaire d'interpoler les cotes de la nappe phréatique, puis de soustraire ces estimations aux cotes de terrain pour obtenir les profondeurs recherchées. Cette interpolation s'est faite par cokrigeage<sup>1</sup> des cotes minimale et maximale de la nappe, après élimination de la dérive due à la pente. La continuité spatiale des résidus R correspondants est un plus marquée dans le cas des cotes minimales, sans doute en raison de l'influence de l'hétérogénéité spatiale des précipitations sur les cotes maximales, et se caractérise par une forte anisotropie dans la direction de la vallée (fig. 4). Les paramètres du modèle linéaire de corégionalisation (JOURNEL et HUIJBREGTS, 1978) ajusté sur ces surfaces variographiques sont donnés par le tableau 1. L'erreur type de krigeage reste en général inférieure à 0,05 m, si bien qu'il n'a pas paru pertinent de chercher à établir des distributions de probabilités pour ces estimations par simulation séquentielle.

### 3.3 Caractéristiques climatiques

Les données météorologiques journalières proviennent de quatre stations de mesure de l'institut suisse de météorologie (ISM), en l'occurrence Martigny-ville, Martigny-Batiaz, Sion et Sion-aérodrome, pour les périodes figurant dans le tableau 2. Ces données mettent en évidence d'importantes différences climatiques entre Martigny et Sion, avec une forte réduction des modules pluviométriques aussi bien annuels que mensuels (- 20% en moyenne) et une augmentation de 30 à 40 % de l'évapotranspiration potentielle, qui conduisent en moyenne à un déficit hydrique annuel de 50 mm à Sion.



**Figure 4** Surfaces variographiques directes et croisées des résidus des cotes de la nappe phréatique.

*Direct and cross variogram surfaces of water table residual heights.*

1. Seule cette méthode d'interpolation permet de respecter la contrainte essentielle consistant à produire une estimation de cote minimale inférieure à l'estimation de cote maximale, et ce en tout point.

**Tableau 1** Paramètres du modèle linéaire de corégionalisation.**Table 1** *Parameters of the linear model of coregionalization.*

Variable	Modèle	Seuil/Pente (m <sup>2</sup> )	Portée/Puissance (m)	Direction (N=0) (°)	Coefficient d'anisotropie
Rmax	Pépite	0,038	—	—	—
	Sphérique	0,088	1 200	330	1,6
	Linéaire	4,8e-05	1	330	6,8
Rmin	Pépite	0,018	—	—	—
	Sphérique	0,066	1 200	330	1,6
	Linéaire	3,45e-05	1	330	6,8
Rmax-Rmin	Pépite	0,0045	—	—	—
	Sphérique	0,045	1 200	330	1,6
	Linéaire	3,3e-05	1	330	6,8

**Tableau 2** Disponibilité des données météorologiques.**Table 2** *Available meteorological data.*

Station	Pluie	ETP (Primaut, 1981)
Martigny-ville	10.1900 – 12.1977	—
Martigny-Batiaz	1.1960 – 12.1969	(778 mm/an)
	9.1989 – 12.1994	1.1960 – 12.1969 (495 mm/an)
Sion	10.1900 – 12.1977	(600 mm/an)
	1.1969 – 12.1994	1.1901 – 12.1977 (650 mm/an)
Sion-aérodrome		1.1978 – 12.1994

La période 1960-1969, retenue pour les simulations car la pluviométrie et l'ETP sont disponibles simultanément à Martigny et à Sion, est représentative des conditions climatiques moyennes. La prise en compte de la variabilité spatiale des conditions climatiques s'effectue dans le cas des modèles à pas de temps journalier ou inférieur (Leach-A et Leach-M) par une pondération des données journalières des deux stations en fonction de leurs distances au point de simulation. Dans le cas du facteur d'atténuation, la pondération porte sur les paramètres des lois de distributions de la recharge annuelle nette (normales).

### 3.4 Propriétés des pesticides

Les analyses de sensibilité des modèles (cf. § 5) montrent que les caractéristiques essentielles des pesticides en termes de contamination d'une nappe phréatique peu profonde sont la constante de dégradation et le coefficient de partition. Ce constat a conduit à évaluer le comportement de trois pesticides « types », dont les propriétés sont caractérisées par les distributions uniformes figurant dans le tableau 3. Le pesticide 1 est un produit très persistant et très mobile, dont les propriétés varient dans des fourchettes assez représentatives de la diversité des valeurs observées (RAO et DAVIDSON, 1980) pour des produits d'usage courant tel que l'atrazine, la simazine ou le glyphosate. Les deux autres substances sont de simples variations de la première, en moins persistant dans un cas et en moins mobile dans l'autre. Les autres caractéristiques des pesticides sont maintenues constantes à une valeur moyenne, à l'exception de la solubilité

(distributions uniformes des logarithmes, pour des valeurs comprises entre 50 et 5 000 mg/l).

Dans le cas des modèles *Leach-A* et *Leach-M*, ces pesticides sont appliqués à raison de 2 kg/ha, le 15 avril de chaque année, à la surface d'un sol dépourvu de végétation. Les constantes de dégradation ne s'appliquent qu'à la fraction solubilisée des pesticides et décroissent d'un facteur 10 entre la surface du sol et la profondeur moyenne de la nappe phréatique, cette dernière caractéristique s'appliquant également dans le cas du facteur d'atténuation.

**Tableau 3** Caractéristiques des pesticides.

**Table 3** *Pesticide properties.*

	Pesticide 1		Pesticide 2		Pesticide 3	
	min.	max.	min.	max.	min.	max.
Constante de dégradation*	0,0001	0,001	0,0001	0,001	0,001	0,01
Coefficient de partition	10	100	100	200	10	100

\* Distributions uniformes des logarithmes décimaux.

#### 4 – ÉCHANTILLONNAGE SÉLECTIF, ANALYSE DE SENSIBILITÉ ET PROCÉDURE DE MONTE-CARLO

L'identification des variables clés d'un modèle de simulation par une analyse de sensibilité joue un rôle essentiel dans la mesure où elle permet de limiter l'effort d'acquisition de données aux seules variables dont l'influence est déterminante et, par suite, de limiter la propagation d'incertitudes en cernant de manière plus précise ces variables. Dans sa forme usuelle, qui consiste à observer les effets sur la variable de sortie Y de variations de l'une des variables d'entrée  $X_i$ , les autres étant maintenues constantes, l'analyse de sensibilité atteint assez rapidement ses limites dès lors que le nombre de variables intervenant dans le modèle est élevé (exposant de la fonction puissance définissant le nombre de simulations nécessaire).

La combinaison d'une technique d'échantillonnage sélectif, en l'occurrence celle des hypercubes latins (MCKAY *et al.*, 1979), et de la régression linéaire multiple permet d'éviter cette prolifération de simulations.

Le principe d'un échantillonnage par hypercubes latins consiste à décomposer la distribution de probabilité de chacune des variables intervenant dans le modèle en un nombre k d'intervalles équiprobables puis de choisir aléatoirement une valeur dans chacun de ces intervalles. Cette façon de procéder présente le double avantage d'assurer que toutes les valeurs possibles d'une variable soient représentées dans l'échantillonnage tout en attribuant un poids plus important aux zones de probabilité plus élevée.

Les vecteurs de valeurs ordonnées de chaque variable sont alors permutés de façon aléatoire<sup>1</sup>, toutes les  $i^{\text{e}}$  valeurs étant associées pour former les entrées d'une simulation. Une régression linéaire multiple (méthode ascendante) effectuée sur les rangs de la réponse Y en fonction des rangs des variables d'entrée permet in fine de classer ces dernières en fonction du degré de monotonie de leur relation à Y, i.e. en fonction de la tendance que possède un accroissement de la variable à entraîner un accroissement de la réponse.

L'application de ces techniques aux modèles décrits sous § 2, avec les distributions de probabilité uniformes données au tableau 4, a permis de montrer (tabl. 5) que les flux cumulés de pesticides sont principalement sous la dépendance de la constante de dégradation, de la profondeur de la nappe phréatique, du coefficient de partition et de la teneur en carbone organique du sol (voir également SOUTTER et MUSY, 1996). Contrairement à toute attente, les autres variables, en particulier les caractéristiques hydrodynamiques des sols, leur dispersivité ou la solubilité des pesticides n'ont comparativement qu'une influence très limitée sur l'accumulation de pesticides à long terme (10 ans).

**Tableau 4** Bornes des distributions uniformes retenues pour les analyses de sensibilité.

**Table 4** *Limits of the uniform probability distributions used in the sensitivity analyzes.*

Variables	Unités	Minimum	Maximum	AF	Leach-A	Leach-M
Recharge annuelle nette	mm/an	100	600	X		
Profondeur de la nappe phréatique	mm	20	2 000	X	X	X
Capacité de rétention	m <sup>3</sup> /m <sup>3</sup>	0,05	0,35	X		
Teneur en eau à saturation	m <sup>3</sup> /m <sup>3</sup>	0,30	0,60	X		
Teneur en carbone organique	kg/kg	0	6	X	X	X
Masse volumique apparente sèche	kg/m <sup>3</sup>	1 200	1 700	X	X	X
Pression d'entrée d'air	kPa	-13	-1,5			X
Exposant de la courbe de rétention de Campbell	-	2	8			X
Conductivité hydraulique à saturation*	mm/j	10	10 000			X
Dispersivité	mm	10	100			X
Apport annuel de pesticide/traceur	mg/m <sup>2</sup>	50	400		X	X
Constante de dégradation*	j <sup>-1</sup>	0,0001	0,1	X	X	X
Solubilité*	mg/dm <sup>3</sup>	50	5 000		X	X
Coefficient de partition	dm <sup>3</sup> /kg	10	200	X	X	X
Constante de Henry*	-	1,0E-09	1,0E-04	X		
Densité de vapeur saturante*	mg/dm <sup>3</sup>	0,000001	0,01			X
Coefficient a de l'équation de Bresler	-	0,05	0,1			X
Coefficient b de l'équation de Bresler	-	8	12			X
Coefficient de diffusion moléculaire dans l'eau	mm <sup>2</sup> /j	80	200			X
Coefficient de diffusion moléculaire dans l'eau	mm <sup>2</sup> /j	80	200			X
Épaisseur de la cellule de mélange	mm	0	500			X

\* Logarithmes.

1. En réalité, lorsque les variables ne sont pas indépendantes, la permutation aléatoire doit être influencée de façon à éviter des combinaisons irréalistes, associant par exemple une forte porosité à une faible conductivité hydraulique. Cette influence s'exerce par une procédure de réarrangement des vecteurs destinée à leur conférer une structure de corrélation des rangs prédéfinie (IMAN et CONOVER, 1982).

**Tableau 5** Résultats de l'analyse de sensibilité.**Table 5** Results of sensitivity analyses.

	AF		Leach-M (= Leach-A)	
	% cumulé	% relatif	% cumulé	% relatif
Constante de dégradation	67,30 %	67,30 %	44,70 %	44,70 %
Profondeur de la nappe	76,90 %	9,60 %	62,45 %	17,75 %
Coefficient de partition	82,80 %	5,90 %	74,56 %	12,11 %
Teneur en carbone organique*	89,20 %	6,40 %	81,97 %	7,41 %
Recharge annuelle nette	92,50 %	3,30 %		

\* Teneur en matière organique / 1,724.

La technique d'échantillonnage par hypercubes latins permet en outre, dans le cadre d'une procédure de Monte-Carlo, de réduire fortement le nombre d'itérations requis pour obtenir une stabilisation de la distribution de la variable de sortie (en l'occurrence de 500 à 50 dans le cas des modèles Leach).

## 5 – INTERPOLATION DES DISTRIBUTION LOCALES

Les distributions locales du risque de contamination pour les divers cas de figure traités (tabl. 6) se caractérisent de manière générale par une forte dispersion et une asymétrie marquée vers la droite, en particulier dans le cas de produits très contaminants (l'utilisation de valeurs moyennes conduirait à sous-estimer le risque médian).

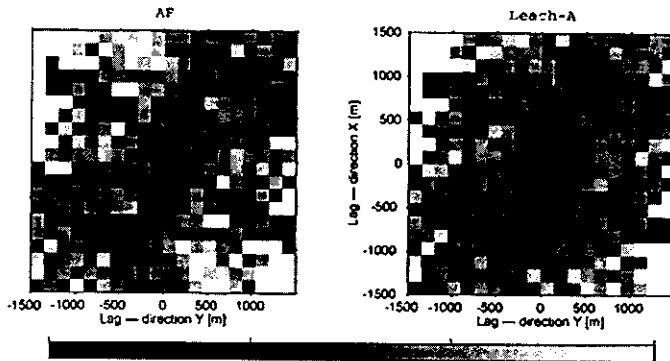
**Tableau 6** Caractéristiques des divers cas simulés.**Table 6** Characteristics of the various simulated conditions.

Cas	Pesticides	Nappe	Sols	Climat	Modèles
1	Variables	Variable	Distributions expérimentales & Rawls	Interpolation	AF, Leach-A, Leach-M
2	Fixés	Variable	Distributions expérimentales & Rawls	Interpolation	AF, Leach-A
3	Fixés	Fixée	Distributions expérimentales & Rawls	Interpolation	AF, Leach-A
4	Fixés	Fixée	Distributions empiriques & Cosby	Interpolation	AF, Leach-A
5	Fixés	Fixée	Distributions expérimentales & Rawls	Constant	AF, Leach-A

L'analyse de la continuité spatiale des divers fractiles de ces distributions fait apparaître de manière systématique un effet de stratification en diagonale (fig. 5) imputable à la disposition particulière des sites de sondage (alignés sur quelques sections transversales, fig. 1). Dans chaque cas de figure traité, les divers fractiles des distributions obtenues se caractérisent par la propriété de corégionalisation intrinsèque, i.e. par le fait que tous leurs variogrammes directs et croisés (isotropes) sont proportionnels à un unique modèle de base (JOURNAL et HUIJBREGTS, 1978). En conséquence, le cokrigage de l'ensemble des fractiles

des distributions locales qui serait nécessaire pour construire la distribution du risque de contamination en un point quelconque du secteur étudié, peut être remplacé par une série de krigeage indépendants des divers fractiles.

Il faut toutefois relever que, dans le cas du facteur d'atténuation, la forte influence de la constante de dégradation et l'occurrence de déficits hydriques occasionnels sont cause d'une telle variabilité des fractiles inférieurs des distributions locales que toute analyse de continuité spatiale est empêchée. De façon similaire, la simulation du comportement de produits moins contaminants conduit à une dispersion encore plus marquée du risque de contamination, enlevant toute signification aux statistiques qui sous-tendent la modélisation de la continuité spatiale (structure en ailes de papillon des diagrammes de corrélation différés). Finalement, l'intégration de l'incertitude spatiale à l'estimation, par une procédure de Monte-Carlo (simulation séquentielle<sup>1</sup>), s'avère lourde en termes informatiques, notamment faute de pouvoir définir *a priori* le nombre minimal de fractiles à interpoler et d'itérations nécessaires. La faible variabilité des sols et leur influence réduite sur les risques calculés permet cependant de considérer que l'incertitude spatiale n'a qu'un poids relativement faible en regard des autres sources d'incertitudes.



**Figure 5** Continuité spatiale des médianes des distributions locales (Cas 1, pesticide 2).  
*Spatial continuity of the medians of the local distributions (Case 1, pesticide 2).*

## 6 – RÉSULTATS ET CONCLUSIONS

Les prédictions obtenues à l'aide des trois modèles de simulation sont très similaires, avec toutefois une notable exception pour le facteur d'atténuation dans le cas du produit le moins contaminant (pesticide 3). L'influence de la constante de dégradation (équation 2) est alors telle que dès qu'elle s'éloigne des faibles valeurs caractérisant des produits très persistants, les risques de contamination

1. Le principe de ces simulations consiste à effectuer à plusieurs reprises un krigeage de l'ensemble du secteur en suivant un cheminement aléatoire, chaque nouvelle estimation étant ajoutée au système de krigeage.

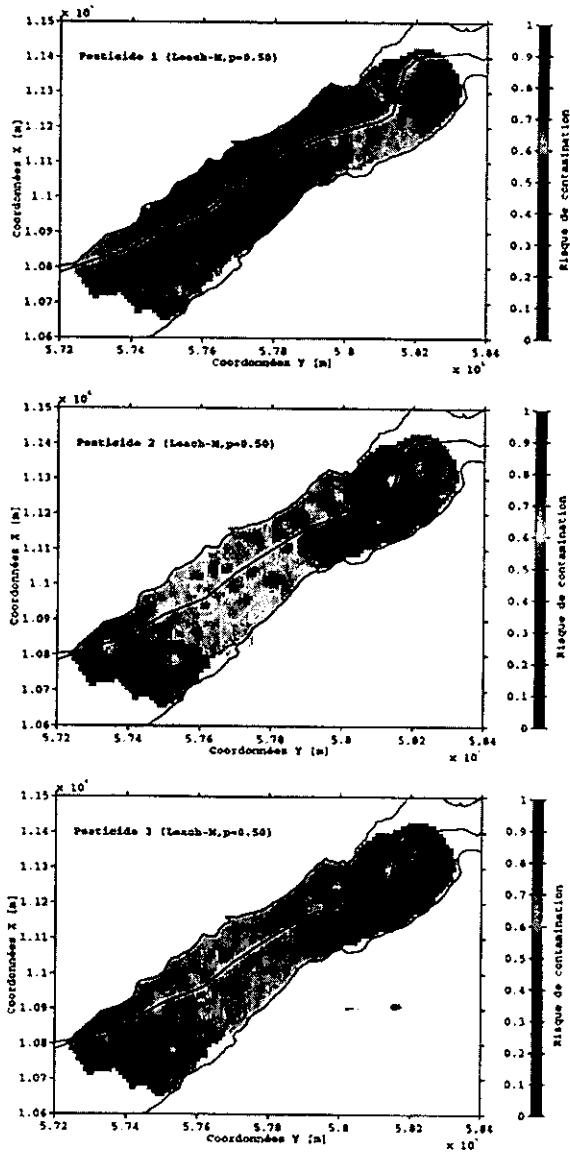
calculés sont inférieurs de plusieurs ordres de grandeur à ceux déterminés à l'aide des deux autres modèles.

Les diverses cartes obtenues (*fig. 6*) montrent par ailleurs que les valeurs médianes du risque de contamination sont très élevées, avec des transferts à la nappe pouvant atteindre quelques 60 à 90 % de la masse appliquée en surface dans le cas du produit le plus contaminant (pesticide 1). Les valeurs les plus fortes s'observent dans la zone centrale du secteur étudié où la nappe est la moins profonde.

Les incertitudes entachant ces prédictions médianes sont cependant considérables, atteignant des valeurs de  $\pm 0,2-0,3$ , pour des valeurs de risque variant entre 0 et 1. Ces incertitudes sont en outre d'autant plus fortes que le risque calculé prend une valeur moins extrême. La comparaison des cartes obtenues pour les pesticides 2 et 3, respectivement moins mobile et moins persistant que le pesticide 1, montre que ces deux éléments, mobilité et persistance, exercent une influence similaire sur l'évolution des valeurs médianes alors que la dispersion des distributions locales et par conséquent les incertitudes sont beaucoup plus sensibles à la profondeur de la nappe phréatique dans le premier cas que dans le second.

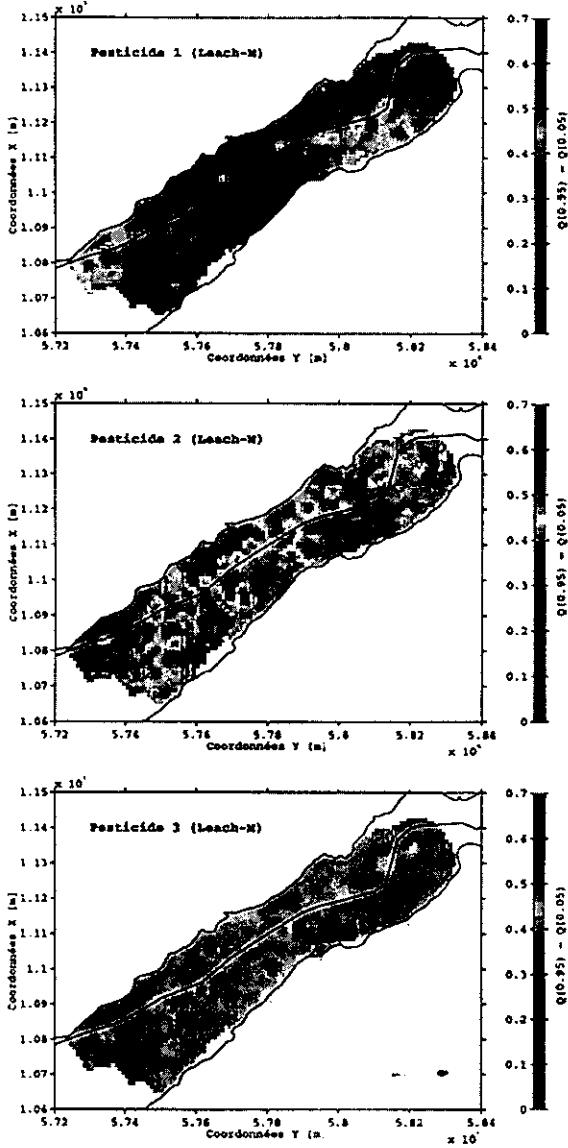
L'évolution de ces cartes dès lors que les propriétés des pesticides, puis la profondeur de la nappe phréatique sont supposées connues avec exactitude permet de constater d'une part que les médianes ne sont que très peu affectées et d'autre part que les incertitudes sont imputables à raison d'environ 40-50 % aux propriétés des pesticides, 30-40 % à la position de la nappe et 20 % aux caractéristiques des sols (essentiellement la teneur en carbone organique, ce dont témoignent les cartes obtenues pour des traceurs).

Ces résultats paraissent paradoxaux dans la mesure où, à notre connaissance, aucune trace de pesticide n'a été relevée à ce jour dans les eaux captées dans la plaine. Trois éléments paraissent susceptibles d'expliquer, du moins partiellement, ce paradoxe apparent et mériter des investigations plus approfondies : (i) imperfection des modèles, qui négligent notamment les processus affectant les pesticides à la surface du sol, (ii) méconnaissance des processus de dégradation en conditions naturelles (pour un même produit, les valeurs de la constante de dégradation peut différer de plusieurs ordres de grandeur lorsque l'on passe de la mesure en laboratoire à la mesure *in situ*, cf. RAO *et al.*, 1980) et (iii) volume considérable de la nappe phréatique, d'où des possibilités de dilution importantes. Quelle que soit toutefois la pertinence des cartes de risque qu'il est possible d'établir et en dehors de l'aspect de la comparaison relative de divers sites, elles contribuent surtout à déplacer le problème à l'aval, dans la mesure où leur interprétation en termes de menace pour les ressources en eaux potables reste liée à la question du devenir de ces produits dans une nappe en écoulement constant et du seuil de contamination qu'il convient de considérer comme critique.



**Figure 6** Cartes de risques (médianes) et d'incertitudes pour trois pesticides « type » (Leach-M, cas 1).  
*Vulnerability (median values) and uncertainty maps for three « generic » pesticide (Leach-M, case 1).*





**Figure 6**  
(suite)

Cartes de risques (médianes) et d'incertitudes pour trois pesticides « type » (Leach-M, cas 1).

*Vulnerability (median values) and uncertainty maps for three « generic » pesticide (Leach-M, case 1).*

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ADDISCOTT, T.M. (1977). A simple computer model for leaching in structured soils. *J. Soil Sci.*, 28 : 554-563.
- COSBY, B.J., HORNBERGER, G.M., CLAPP R.B., GINN T.R. (1984). A statistical exploration of the relationships of soil moisture characteristics to the physical properties of soils. *Water Resour. Res.*, 20(6) : 682-690.
- GÉOVAL (1986). Étude hydrogéologique, Palier 6 : rapport après 3 ans d'observations. Géoval. Sion.
- HUTSON, J.L., WAGENET, R.J. (1992). Leaching Estimation And Chemistry Model. Version 3, User manual, Cornell university, Ithaca, New-York.
- IMAN, R.L., CONOVER, W.J. (1982). A distribution-free approach to inducing rank correlation among input variables. *Commun. Statist.-Simula. Computa.*, 11(3) : 311-334.
- ISAAKS, E.H., SRIVASTAVA, R.M. 1989. An introduction to applied geostatistics. Oxford University Press, New York.
- JENSEN, K.H., MANTOGLOU, A. (1992). Future of distributed modelling. *Hydrological processes.*, 6 : 255-264.
- JURNEL, A.G., HUIJBREGTS, C.J. (1978). Mining geostatistics. Academic Press. London.
- MCKAY, M.D., BECKMANN, R.J., CONOVER, W.J. (1979). A comparison of three methods for selecting values of input variables in the analysis of output from a computer code. *Technometrics.*, 21(2) : 239-245.
- PRIMAULT, B. (1981). Extension de la validité de la formule Suisse de calcul de l'évapotranspiration. *Arbeitsberichte SMA Nr.103. Zürich.*
- RAO, P.S.C., HORNSBY, A.G. JESSUP, R.E. (1985). Indices for ranking the potential for pesticide contamination of groundwater. *Proc. Soil Crop Sci. Soc. Fla.*, 44 : 1-8.
- RAO, P.S.C., DAVIDSON, J.M. (1980). Estimation of pesticide retention and transformation parameters required in nonpoint source pollution models. In : Overcash, M. R. and J. M. Davidson (eds), Environment impact of nonpoint source pollution, *Ann Arbor Science, Ann Arbor.* 23-67.
- RAWLS, W.J., BRAKENSIEK, D.L. (1988). Estimation of soil water retention and hydraulic properties. In : Morel-Seytoux, H.J. (ed), *Unsaturated flow in hydrologic modeling, theory and practice, Kluwer Academic Publ., Dordrecht,* 275-300.
- RAWLS, W.J., BRAKENSIEK, D.L. (1985). Prediction of soil water properties for hydrologic modelling. In : E. Jones et T.J. Ward (éds.) *Watershed management in the eighties. Proc. Symp. ASCE, Denver CO. 30 apr.-2 may 1985, ASCE, New York.*
- SOUTTER, M. (1996). Prédiction stochastique à l'échelle régionale des risques de contamination des eaux souterraines par des pesticides. *Thèse n° 1487, École polytechnique fédérale de Lausanne,* 101 p.
- SOUTTER, M., MUSY, A. (1996). Pesticide leaching models : sensitivity analyzes and Monte-Carlo simulations using latin hypercube sampling. *Water Resou. Res.* (soumis).