



Rapport d'expertise

Avis sur la présence d'atrazine dans les eaux souterraines des Sables du Perche - Captage d'eau potable de la Repesserie, Le Pas-Saint-l'Homer, Orne

BRGM/RP-62784-FR

Octobre, 2013

Cadre de l'expertise :

Appuis aux administrations

Appuis à la police de l'eau

Date de réalisation de l'expertise : Octobre 2013

Localisation géographique du sujet de l'expertise : Le Pas-Saint-l'Homer, Orne, Basse-Normandie

Auteurs BRGM : M. BOUDET, N. CROISSET

Demandeur : DDT 61

1.89 3740.46 -625.5





Géosciences pour une Terre durable

brgm

Le système de management de la qualité et de l'environnement est certifié par AFNOR selon les normes ISO 9001 et ISO 14001.

Ce rapport est le produit d'une expertise institutionnelle qui engage la responsabilité civile du BRGM.

Ce document a été vérifié et approuvé par :

Vérificateur :		
Nom : B. LOPEZ		Date : 28/10/2013
Approbateur :		
Nom : B. VITTECOQ		Date : 31/10/2013

Mots-clés : expertise – atrazine – appui à la police de l'eau – Le Pas-Saint-l'Homer, Orne, Basse-Normandie.

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

Boudet M., Croiset N. (2013) – Avis sur la présence d'atrazine dans les eaux souterraines des Sables du Perche - Captage d'eau potable de la Repesserie, Le Pas-Saint-l'Homer, Orne. Rapport d'expertise. Rapport BRGM/RP-62784-FR. 34 p., 15 ill., 2 ann.

© BRGM, 2013, ce document ne peut être reproduit en totalité ou en partie sans l'autorisation expresse du BRGM.

Synthèse

Contexte :

Date de la formulation de la demande d'expertise au BRGM : juillet 2013

Demandeur : DDT 61

Nature de l'expertise : Le captage AEP de la Repesserie (n° BSS : 02537X0012), situé sur la commune du Pas-Saint-l'Homer dans l'Orne, est sujet à des pollutions récurrentes à l'atrazine et déséthyl-atrazine depuis 2 ans. La DDT61 a demandé au BRGM de rédiger une synthèse des connaissances du contexte géologique et hydrogéologique de l'aquifère des sables du Perche, ainsi qu'une synthèse des connaissances sur les processus de transferts de l'atrazine du sol vers les nappes.

Situation : Le Pas-Saint-l'Homer, Lieu-dit La Repesserie, Orne, Basse-Normandie.

Nature de l'intervention du BRGM : examen sur documents.

Principaux dossiers transmis :

- Etude de la vulnérabilité et d'évaluation des risques de pollution – captage de la Repesserie, Le Pas-Saint-l'Homer (Aster, 1994).
- Définition des périmètres de protection du forage de la Repesserie au Pas-Saint-l'Homer (P. Juignet, hydrogéologue agréé, 1995).
- Dossier périmètre de protection. Inventaire des sources de pollution - Forage de la Repesserie (Sogreah, 2003).
- Reconnaissance des points d'infiltration autour du forage de la Repesserie (Sogreah, 2004).

Hypothèses :

Deux hypothèses peuvent être avancées pour expliquer les importantes concentrations en atrazine et DEA mesurées au captage de la Repesserie depuis 2010.

La contamination en atrazine et en DEA pourrait être due soit :

- à l'utilisation du produit avant 2003. L'atrazine a été stockée dans le sol et/ou le sous-sol et est relarguée et dégradée progressivement ;
- à l'utilisation illégale récente d'atrazine dans l'environnement proche du captage.

Etant donné l'étendue spatiale de la contamination (et le nombre de captages impactés), l'hypothèse d'une utilisation illégale d'atrazine impliquerait une utilisation étendue sur un secteur de plusieurs dizaines de km².

L'hypothèse d'une contamination due à une utilisation passée paraît plus plausible. Des concentrations élevées en atrazine peuvent en effet encore être retrouvées dans le sous-sol et dans les eaux souterraines une dizaine d'années après la dernière application. Afin de valider l'hypothèse d'une contamination due à un usage antérieur à 2003, il serait nécessaire de s'intéresser aux formations géologiques potentiellement impliquées dans le stockage de l'atrazine.

Recommandations :

La synthèse des données existantes soulève plusieurs questions auxquelles il n'est pas possible de répondre avec certitude sans acquérir et analyser des données complémentaires :

- ✓ Quelle est l'origine et la source de la pollution en atrazine ?
- ✓ Quelle est l'extension du panache ?
- ✓ Quel est l'ordre de grandeur de la durée potentielle de la pollution ?
- ✓ Quels points d'eau, aujourd'hui non contaminés, peuvent à l'avenir voir leur qualité être dégradée par la présence d'atrazine ?

Afin de répondre à ces questions, plusieurs actions devraient être envisagées :

- ✓ La réalisation de l'historique des pratiques culturales des parcelles situées à proximité et en amont du captage,
- ✓ Un diagnostic du forage de la Repesserie afin de préciser si l'eau contaminée en atrazine provient bien de la nappe des sables du Perche et non d'une pollution ponctuelle,
- ✓ La caractérisation des relations entre l'Eure et la nappe des sables du Perche, avec notamment des analyses chimiques de l'eau de la rivière,
- ✓ La réalisation d'une étude approfondie des contextes hydrogéologiques des captages situés aux alentours de la Repesserie,
- ✓ Le suivi des principaux paramètres physico-chimiques et des concentrations en atrazine dans les eaux souterraines,
- ✓ L'évaluation de la quantité d'atrazine appliquée,
- ✓ Un échantillonnage et analyses chimiques dans les sols et la zone non saturée.

Sommaire

1. Contexte	7
1.1. SITUATION GEOGRAPHIQUE ET CARACTERISTIQUES DE L'OUVRAGE	7
1.2. CONTEXTE CLIMATIQUE ET HYDROGRAPHIQUE	7
1.3. CONTEXTE GEOLOGIQUE	8
1.4. CONTEXTE HYDROGEOLOGIQUE	10
2. Synthèse des connaissances sur les processus de dégradation et de transferts de l'atrazine du sol vers les nappes	13
2.1. STRUCTURE, USAGES ET REGLEMENTATION DE L'ATRAZINE	13
2.2. LES PROCESSUS DE TRANSFERT DE L'ATRAZINE VERS LE SOL ET LES NAPPES.....	13
2.2.1 La dégradation.....	14
2.2.2 Sorption	16
2.2.3 Formation de résidus liés	17
2.3. CONCLUSION	17
3. Analyse des données disponibles.....	18
3.1. LA CONTAMINATION EN ATRAZINE A L'ECHELLE NATIONALE.....	18
3.2. ANALYSES CHIMIQUES AU CAPTAGE DE LA REPESSERIE ET DANS LES CAPTAGES ALENTOURS.....	20
3.2.1 Captage de la Repesserie	20
3.2.2 Captages alentours	21
3.3. ETUDE DES DONNEES PLUVIOMETRIQUES ET PIEZOMETRIQUES	23
3.3.1 Evolution du niveau piézométrique au captage de la Repesserie	23
3.3.2 Comparaison de la pluviométrie et des concentrations en atrazine.....	23
4. Hypothèses et recommandations	24
4.1. HYPOTHESES	24
4.2. RECOMMANDATIONS	25
4.2.1 Historique des pratiques culturales des parcelles situées à proximité du captage.....	25
4.2.2 Diagnostic du forage de la Repesserie	25
4.2.3 Caractérisation des relations entre l'Eure et la nappe et analyses chimiques de l'eau de la rivière.....	25
4.2.4 Etude approfondie des contextes hydrogéologiques des captages situés aux alentours de la Repesserie.....	26
4.2.5 Suivi des principaux paramètres physico-chimiques et des concentrations en atrazine dans les eaux souterraines	26
4.2.6 Evaluation de la quantité d'atrazine appliquée.....	26
4.2.7 Echantillonnage et analyses chimiques dans les sols et la zone non saturée.....	26
5. Bibliographie.....	29

6. Annexes	31
-------------------------	-----------

Liste des illustrations

Illustration 1 : Extrait de la carte géologique au 1/50 000 et coupe géologique de la Loupe (n°253, G. Moguedet, 2000).....	9
Illustration 2 : Carte piézométrique de la nappe des Sables du Perche (Aster, 1994)	10
Illustration 3 : Coupe hydrogéologique schématisée (Aster, 1994)	11
Illustration 4: Chronique piézométrique observée au captage de la Repesserie (source : SDE 61).	11
Illustration 5 : Indice de Développement et de Persistance des Réseaux (IDPR) au niveau de la zone d'étude	12
Illustration 6 : Les trois isomères de la triazine.....	13
Illustration 7 : Principales voies de dégradation de l'atrazine et de ses composés dérivés. Les flèches en noir correspondent à des dégradations biologiques, la flèche grise à une dégradation abiotique (d'après Moreau-Kervévan, 1997 et Dousset, 1993)	14
Illustration 8 : Temps de demi-vie de l'atrazine et de ses principaux métabolites déterminés dans différentes études (références citées dans Baran, 1999 et Moreau-Kervévan, 1997).....	15
Illustration 9 : Valeurs de K_{OC} pour l'atrazine, la DEA et la DIA (d'après Moreau-Kervévan, 1997)	16
Illustration 10 : Représentation en boîte à moustaches des concentrations en atrazine et en DEA en France entre 1990 et 2010.....	18
Illustration 11 : Evolution du taux de dépassement du seuil 0,1µg/L et nombre d'analyses pour l'atrazine pour les masses d'eau ayant plus de 10% de leur surface cultivée en maïs.	19
Illustration 12 : Evolution des concentrations en atrazine et en déséthylatrazine à la station de la Repesserie	20
Illustration 13 : Localisation des captages situés aux alentours de la Repesserie pour lesquels des analyses d'atrazine et de DEA sont disponibles et concentrations maximales enregistrées pour l'atrazine ou la DEA	21
Illustration 14 : Evolution des concentrations en atrazine et en DEA pour différents captages AEP situés aux alentours du captage de la Repesserie	22
Illustration 15 : Pluviométrie à la station de Longny-au-Perche et évolution des concentrations en atrazine et DEA au captage de la Repesserie	23

1. Contexte

Le captage AEP de la Repesserie (n° BSS : 02537X0012), situé sur la commune du Pas-Saint-l'Homer dans l'Orne, est sujet à des pollutions récurrentes à l'atrazine et déséthyl-atrazine depuis 2 ans. Au titre de l'Appui aux Services de la Police de l'Eau, le BRGM a été missionné par la DDT61 afin de réaliser une synthèse des connaissances du contexte géologique et hydrogéologique de l'aquifère des sables du Perche, ainsi qu'une synthèse des connaissances sur les processus de transferts de l'atrazine du sol vers les nappes.

Il est rappelé que le travail réalisé ici résulte de l'interprétation d'informations objectives ponctuelles et non systématiques (sondages, analyses, mesures...), en fonction de l'état de la science et de la connaissance à un moment donné.

1.1. SITUATION GEOGRAPHIQUE ET CARACTERISTIQUES DE L'OUVRAGE

Selon l'étude de vulnérabilité et d'évaluation des risques de pollution du captage de la Repesserie dans la commune du Pas-Saint-l'Homer (Aster, 1994), ainsi que la définition des périmètres de protection du forage de la Repesserie au Pas-Saint-l'Homer (P. Juignet, 1995), le captage de la Repesserie (indice BSS 02537X0012) est localisé sur la commune du Pas-Saint-l'Homer, dans l'Orne, sur un plateau pratiquement horizontal, à une altitude voisine de 225 m (Annexe 1). Le site se trouve en rive droite du ruisseau le Livier qui s'écoule de l'Ouest vers l'Est pour rejoindre l'Eure. Le captage a été réalisé en 1993, à 50 m de l'ancien ouvrage (indice BSS 02537X0001) et du château d'eau. Il est géré par le Syndicat Intercommunal d'Alimentation en Eau Potable du Pas-Saint-l'Homer.

Ses coordonnées en Lambert 2 étendu sont : X = 494 838 m, Y = 2 390 752 m et sa côte est Z = 224 m. Sa profondeur est de 75,2 mètres. Il est implanté sur la parcelle cadastrale le Pas-Saint-l'Homer, section ZB n°191.

Le forage est cimenté entre 0 et 45 m et crépiné entre 45 et 73 m (Annexe 2). Il capte l'aquifère des Sables du Perche du Cénomaniens supérieur.

Des essais de puits et de nappe ont été réalisés en juillet et août 1993. Les essais de puits ont été réalisés aux débits de 50, 75, 80, 125, 140 m³/h pendant une heure, séparés par une heure d'arrêt. Ils ont permis de déterminer un débit critique de 125 à 140 m³/h et un débit spécifique de 28 m³/h/m. L'essai de nappe longue durée s'est déroulé au débit moyen de 120 m³/h sur 96 h et la remontée a été suivie pendant 24 h. La transmissivité, calculée sur la remontée par la Direction des Services de l'Aménagement de l'Orne, est estimée à $1,7 \cdot 10^{-2}$ m²/s. Les résultats de l'analyse d'eau, après le pompage d'essai, datent du 4 août 1993. Ils montrent que l'eau est bicarbonatée calcique, assez dure (27°F), la teneur en nitrates est peu élevée (13 mg/l), la teneur en fer (0,4 mg/l) dépasse la concentration maximale admissible. Du point de vue bactériologique, l'eau est de bonne qualité.

1.2. CONTEXTE CLIMATIQUE ET HYDROGRAPHIQUE

D'après l'étude de vulnérabilité et d'évaluation des risques de pollution du captage de la Repesserie dans la commune du Pas-Saint-l'Homer (Aster, 1994), la pluviométrie annuelle moyenne entre 1967 et 1993 a été évaluée à 744 mm par an à partir des données de la station climatologique de Longny-au-Perche (221 m d'altitude).

Le plateau, sur lequel est implanté le captage de la Repesserie, est limité au Nord et au Nord-Ouest par la vallée de l'Eure, au Sud et au Sud-Ouest par la vallée de la Corbionne. Les pentes y sont très faibles en moyenne de 0,3%, sauf la pente Sud-Ouest du plateau qui peut dépasser 10%.

Sur le plateau, le réseau hydrographique se résume au ruisseau le Livier, un affluent de l'Eure. Il prend naissance en bordure du Bois de la Villedieu. Il s'écoule vers l'ESE. L'écoulement est temporaire jusqu'au lieu-dit le Parc, puis il devient permanent.

1.3. CONTEXTE GEOLOGIQUE

Au niveau du captage de la Repesserie (02537X0012), les formations rencontrées sont (Illustration 1) :

- 0 à 45,5 m : Sable du Perche jaune plus ou moins argileux.
- 45,5 à 57 m : Sable du Perche jaune plus ou moins grossiers avec des passées gréseuses.
- 57 à 73 m : Sables du Perche gris avec grès de plus en plus grossier entre 63 et 73 m.
- 73 à 74,5 m : Sables du Perche gris avec grès. Passées argileuses.
- 74,5 à 75,2 m : Sables du Perche. Argiles noires sableuses.

Au niveau de l'ancien captage de la Repesserie (02537X0001), localisé à 50 m du captage actuel, les formations rencontrées sont :

- 0 à 0,5 m : Sol (terre végétale)
- 0,5 à 14 m : Paléogène / Quaternaire – Altérite, argile à silex, craie altérée
- 14 à 25,6 m : Sables du Perche – sable
- 25,6 à 67 m : Sables du Perche – sable ; sable argileux ; grès
- 67 à 85 m : Sables du Perche – sable ; grès
- 85 à 100,17 m : Cénomanien moyen / Cénomanien supérieur – Craie de Rouen – argile, craie.

Selon la notice de la carte géologique au 1/50 000 de la Loupe (n°253), les Sables du Perche, là où ils existent, sont coiffés par le résidu à silex. La couverture de résidus à silex est pratiquement continue sur les plateaux. Cette formation, a priori meuble et très plastique quand elle est saturée en eau, est charpentée par des silex et résiste particulièrement bien à l'érosion mécanique (Quesnel, 1993). Lorsque ce résidu à silex repose sur les Sables du Perche, le contact est très franc, rectiligne et quasiment horizontal, soulignant ainsi l'altération complète de la craie post-cénomanienne. Au lieu-dit de la Repesserie, le résidu à silex est épais de près de 14 m. Au niveau du captage de la Repesserie (02537X0012), les argiles à silex sont vraisemblablement présentes même si elles ne sont pas individualisées formellement.

La formation des Sables du Perche (Cénomanien supérieur) (40 à 50 m), est la formation la plus caractéristique du Perche, selon la notice de la carte géologique. Elle affleure dans des pentes généralement fortes, dans les profondes vallées qui entaillent les plateaux d'argiles à silex. Les sables sont généralement grossiers (grains moyens de 0,5 à 1 mm) mais peuvent localement être très fins ou à l'inverse très grossiers et même graveleux. Les argiles associées aux Sables du Perche sont la plupart du temps des smectites. Au-delà de la faille de Senonches, vers le Nord, les Sables du Perche disparaissent totalement (coupe géologique, Illustration 1).

D'un point de vue structural, la carte géologique 1/50 000 de la Loupe (n°253 G. Moguedet, 2000) mentionne une faille orientée ONO-ESE, dans l'axe de la vallée de l'Eure (Illustration 1). Le rejet de cette faille serait d'une quarantaine de mètres. Le compartiment sud, correspondant au plateau du Pas-Saint-l'Homer, est abaissé par rapport au compartiment nord sur lequel est située la forêt de Senonches (coupe géologique, Illustration 1).

De nombreuses petites dépressions creusées dans les limons, et ne dépassant pas 50 cm de profondeur sont observées sur le plateau des Menus (carrières, Illustration 1). Selon la notice de la carte géologique, les limons ou le fer de nature limonitique, contenu dans le grison, ont été extrait par tranchées peu profondes, comblées dès que l'extraction était terminée. Le grison s'est formé dans la zone de contact entre limons de plateau et résidu à silex, après lessivage du fer contenu dans les limons sus-jacents.

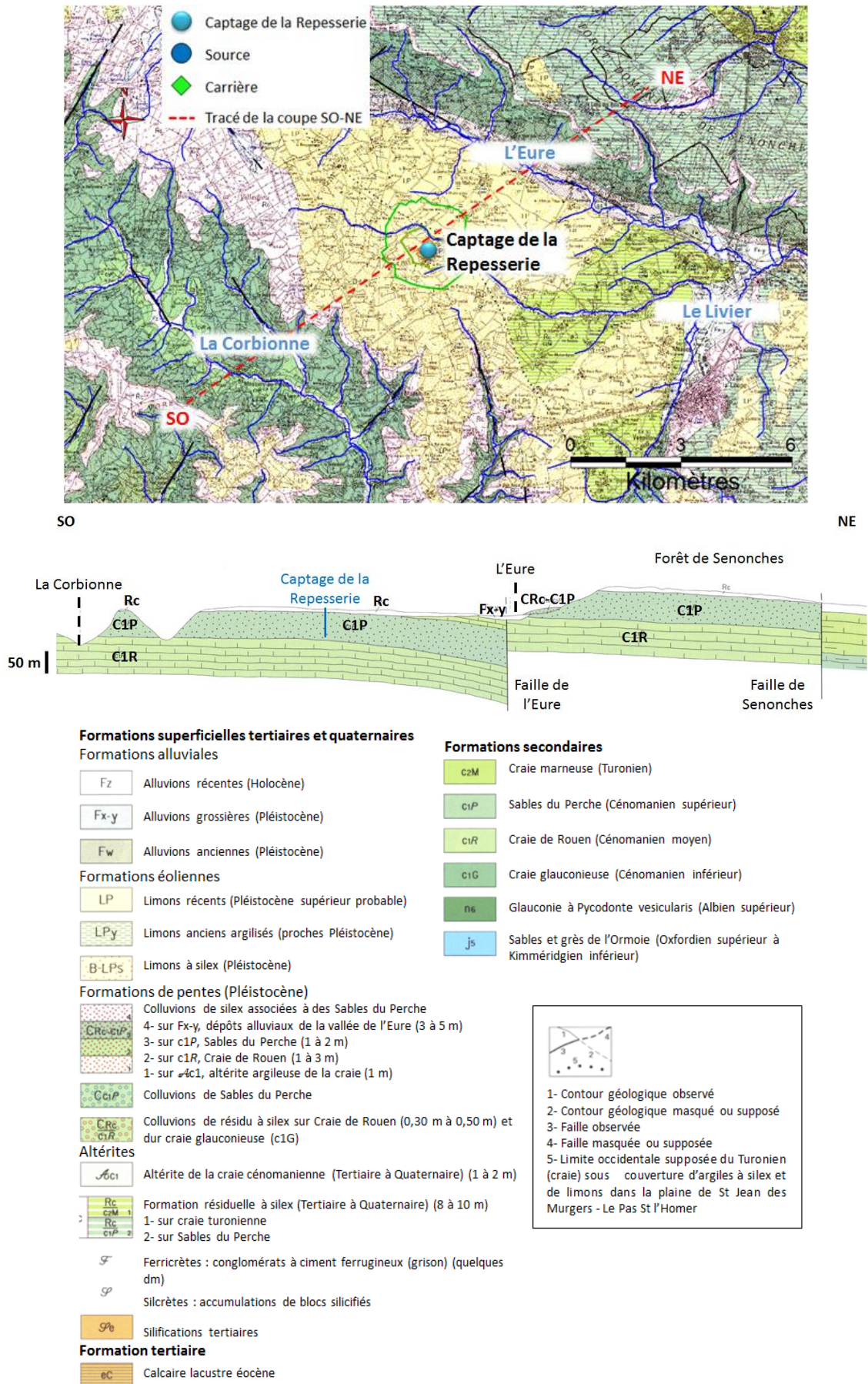


Illustration 1 : Extrait de la carte géologique au 1/50 000 et coupe géologique de la Loupe (n°253, G. Moguedet, 2000)

1.4. CONTEXTE HYDROGEOLOGIQUE

Selon l'étude de vulnérabilité et d'évaluation des risques de pollution du captage de la Repesserie (Aster, 1994), deux systèmes aquifères sont présents dans la zone d'étude :

- une nappe superficielle ;
- la nappe des Sables du Perche.

La nappe superficielle dans les argiles à silex est perchée et temporaire. Considérées dans leur ensemble, les formations supérieures, à dominante argileuse sont sans conteste peu perméables. Cependant, rien n'autorise à penser qu'elles forment un écran régulier au toit des Sables du Perche. Une partie de la nappe superficielle est probablement drainée en profondeur (Aster, 1994). *En raison de son imperméabilité, le résidu à silex a donné naissance à des écoulements superficiels appelés « gouttiers », selon la notice de la carte géologique de la Loupe (n° 253, G. Moguedet, 2000). L'aménagement de digues a permis de créer des plans d'eau de tailles diverses, qui constituent les sources de nombreux cours d'eau ayant profondément incisé les plateaux sableux (sources au niveau des étangs dans la forêt de Longy et le long de la faille de Senonches dans la forêt de Senonches, Illustration 1).*

La carte piézométrique des Sables du Perche permet d'illustrer les écoulements de la nappe des Sables du Perche (Illustration 2). Cette carte a été établie à partir des mesures du niveau d'eau dans les puits atteignant la nappe des Sables du Perche (Aster, 1994). Le ruisseau de la Corbionne constitue, en limite sud du plateau, le niveau de base de la nappe des Sables du Perche, à une cote moyenne de 150 m NGF. La nappe s'écoule du NNE au SSO au droit du captage de la Repesserie. L'Eure est en position haute par rapport à la nappe entre Neuilly-sur-Eure et Manou ; au-delà, la vallée de l'Eure s'enfonce progressivement vers l'ESE et le cours d'eau redevient un axe de drainage de la nappe des Sables du Perche. Ce drainage induit l'existence d'une ligne de partage des eaux souterraines orientée NO-SE entre d'une part, le bassin souterrain drainé par la Corbionne, et d'autre part, le bassin souterrain drainé par l'Eure.

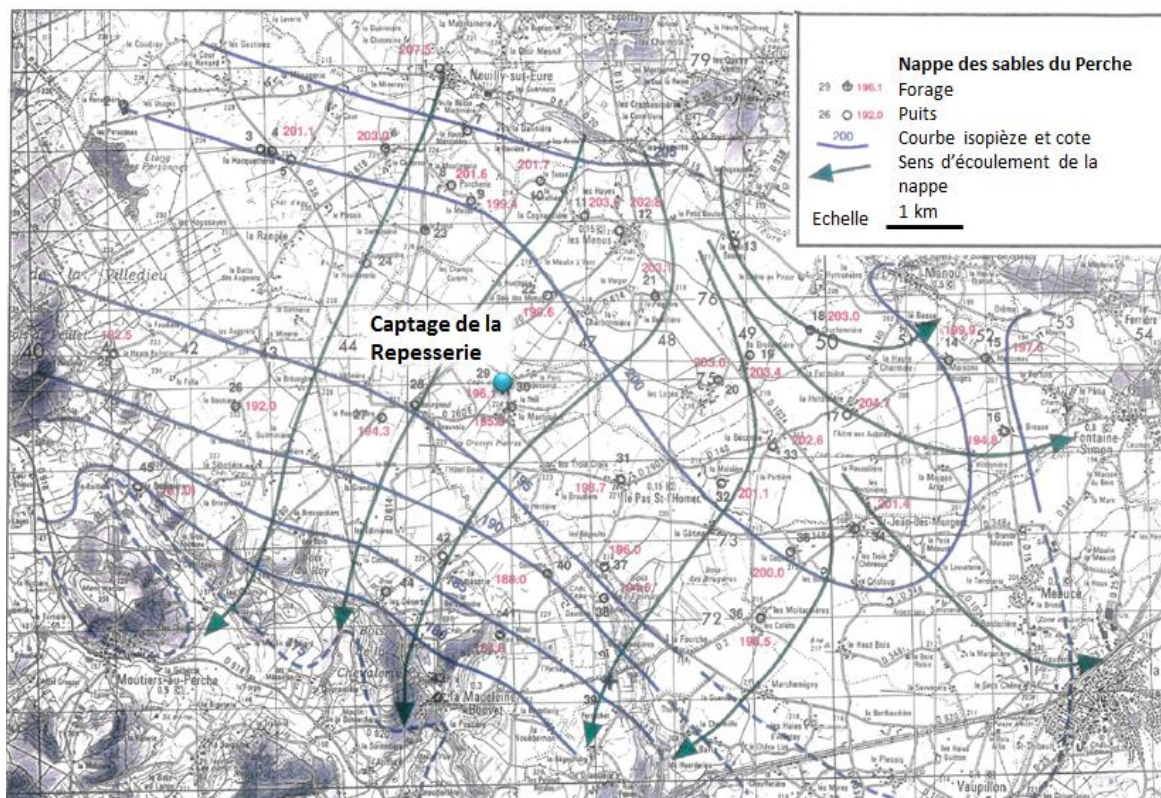


Illustration 2 : Carte piézométrique de la nappe des Sables du Perche (Aster, 1994)

Au droit du forage de la Repesserie, l'épaisseur de la nappe est d'environ 47 m (Aster, 1994). Le gradient de la nappe est de l'ordre de 0,2% sur le plateau, augmente très rapidement vers la bordure sud du plateau où il atteint 1% compte tenu du rabattement dû au drainage par la Corbionne et ses ruisseaux affluents (Illustration 3). L'aquifère est de type semi-captif, sa transmissivité, calculée à partir des résultats des pompages d'essais réalisés est de $1,7 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2/\text{s}$.

La carte géologique au 1/50 000 de la Loupe (n°253 G. Moguedet, 2000) mentionne des fracturations de direction NO-SE qui joueraient un rôle non négligeable dans l'écoulement des eaux souterraines. La faille de l'Eure, de direction NO-SE (Illustration 3) joue le rôle d'une ligne de partage des eaux entre les bassins de la Seine et de la Loire, en concomitance avec les failles de Senonches et de la Loupe. Au Sud et à l'Ouest de la faille de l'Eure, les eaux souterraines s'écoulent vers la vallée de la Corbionne. De ce fait, la vallée sert d'axe drainant aux différents aquifères s'écoulant vers le Sud, ce qui lui confère un rôle privilégié en termes de productivité. Selon la notice de la carte géologique de la Loupe (n°253 G. Moguedet, 2000), la faille de l'Eure joue un rôle important dans l'alimentation de la circulation des eaux souterraines contenues dans les Sables du Perche. Au droit de la zone d'étude, l'épaisseur importante des sables (50 à 70 m) alliée à leur grande extension (Illustration 2), permet d'obtenir un réservoir de grand volume, concrétisé par des ouvrages de très bonne productivité comme le captage de la Repesserie (02537X0012) au Pas-Saint-l'Homer.

Entre la faille de l'Eure et la faille de Senonches, de nombreuses sources sont recensées dans le versant (Illustration 1). Ces sources de débordement apparaissent au niveau du contact entre les Sables du Perche et les colluvions du résidu à silex, peu perméables (en jaune, Illustration 3).

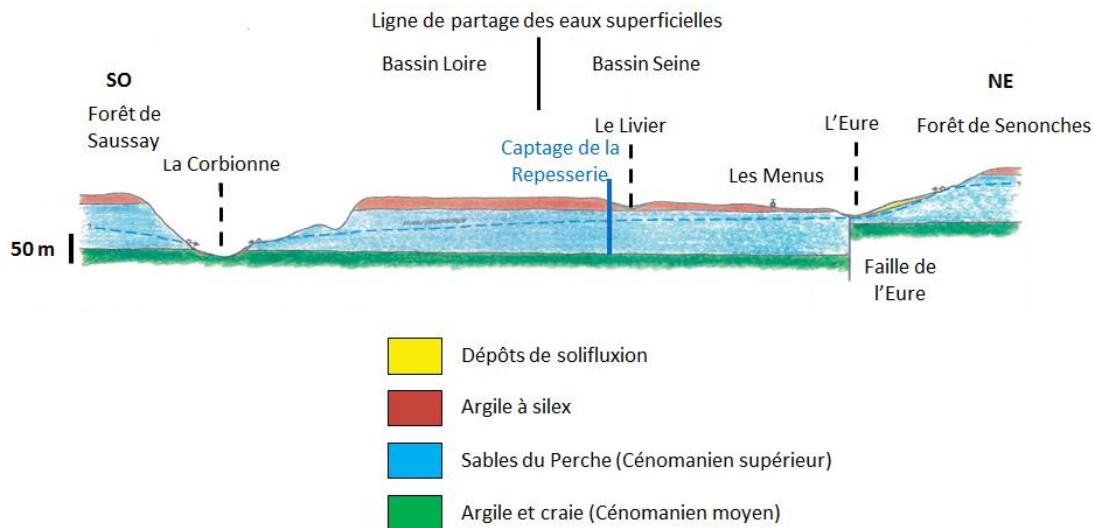


Illustration 3 : Coupe hydrogéologique schématique (Aster, 1994)

Des mesures régulières du niveau piézométrique, réalisées par le SDE 61, sont disponibles jusqu'en juin 2010 pour le captage de la Repesserie (Illustration 4).

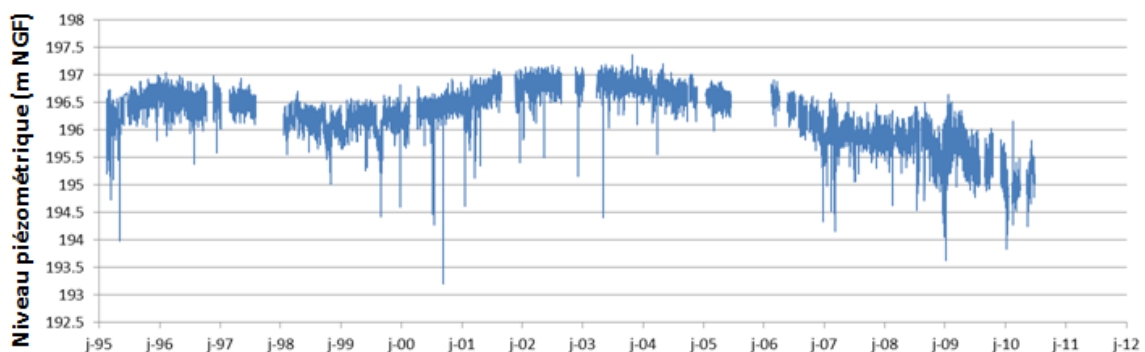


Illustration 4 : Chronique piézométrique observée au captage de la Repesserie (source : SDE 61).

Captage d'eau potable de la Repesserie, Le Pas-Saint-l'Homer, Orne

La chronique piézométrique du captage de la Repesserie montre un fonctionnement de la nappe assez inertiel au niveau du captage : les cycles saisonniers sont peu marqués et un cycle pluriannuel de période 6 à 7 ans semble s'individualiser. Ce comportement tend à montrer qu'il n'y a pas de circulations rapides des eaux du sol vers la nappe. Depuis 2004, les niveaux piézométriques au captage de la Repesserie semblent suivre une tendance à la baisse.

L'Indice de Développement et de Persistance des Réseaux (V. Mardhel, 2010), permet une approche qualitative de l'aptitude des formations du sous-sol à laisser s'infiltrer ou ruisseler les eaux de surface vers le milieu souterrain. De façon générale, on observe le caractère infiltrant des limons de plateau (LP) et ruisselant des alluvions récentes (Fz). Les zones les plus vulnérables sont le long des talwegs, axes d'écoulement temporaire des eaux de surface. Ils correspondent par ailleurs avec les axes drainants souterrains (Illustration 5).

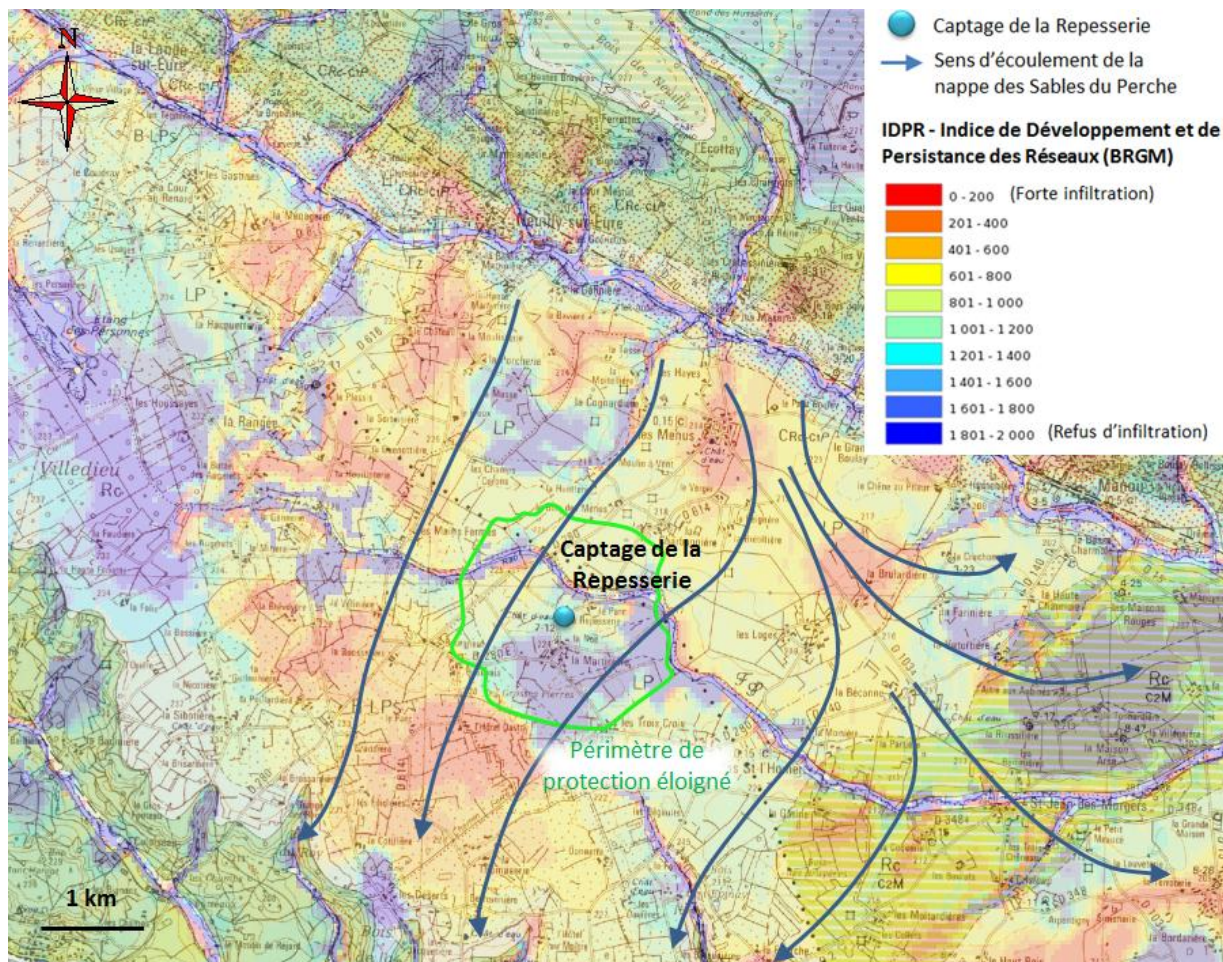


Illustration 5 : Indice de Développement et de Persistance des Réseaux (IDPR) au niveau de la zone d'étude

Il apparaît que les zones potentielles d'alimentation du captage de la Repesserie sont localisées dans le secteur NNE de l'ouvrage, entre la faille de l'Eure et le Livier. Les eaux superficielles de l'Eure peuvent également participer à l'alimentation du captage. C'est à priori dans ce secteur qu'il faudrait rechercher en priorité l'origine de la pollution des eaux du captage par l'atrazine.

2. Synthèse des connaissances sur les processus de dégradation et de transferts de l'atrazine du sol vers les nappes

2.1. STRUCTURE, USAGES ET REGLEMENTATION DE L'ATRAZINE

L'atrazine est un pesticide dérivé de la triazine au même titre que la simazine, le chlorure cyanurique, l'acide cyanurique, la terbutylazine, la mélamine et l'irgarol. Ces composés sont tous caractérisés par une structure hétérocyclique aromatique de 3 atomes de carbone et 3 atomes d'azote (cf. Illustration 6).

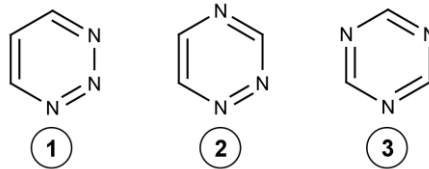


Illustration 6 : Les trois isomères de la triazine

L'atrazine a été couramment utilisée en France entre 1960 et 2001. C'est un herbicide de pré- et post-levée¹, principalement utilisé sur le maïs mais il a été aussi utilisé comme herbicide total pour des usages non-agricoles (désherbage des voies ferrées par exemple).

L'atrazine a été homologué en 1959. La persistance de l'atrazine et ses produits de dégradation (déséthylatrazine notamment) dans les eaux souterraines et de surface a entraîné une réduction des usages autorisés puis son interdiction. La réglementation a connu plusieurs étapes clés. Au niveau national, en 1997, le Ministère de l'Agriculture et de la Pêche a restreint les usages, à la fois par une diminution des doses d'emploi (la dose homologuée en 1959 qui était fixée à 2,5 kg/ha/an a été successivement baissée à 1,5 en 1990, puis en 1997 à 1 kg/ha/an - avis JO du 15 février 1997), et par une restriction des usages (interdiction des épandages sur les zones non agricoles telles que jardins, fossés, bordures des voies... avis JO du 4 juillet 1997).

Des interdictions totales ont été décidées dès 1998 dans certains départements, notamment en Bretagne. L'interdiction à l'échelle nationale a été décidée fin 2001. La date limite de distribution a été fixée au 30 septembre 2002. La date limite d'utilisation a été fixée au 30 septembre 2003.

Au niveau européen, la réévaluation de la substance a conduit à son retrait de l'annexe I de la directive 91/414/CE en 2003 (Sanco/10496/2003).

2.2. LES PROCESSUS DE TRANSFERT DE L'ATRAZINE VERS LE SOL ET LES NAPPES

La volatilisation, le transport par l'eau, la diffusion, l'adsorption/désorption, la dégradation et la formation de résidus liés font partie des principaux processus gouvernant le devenir de l'atrazine, comme celui de tout micropolluant organique, dans un système sol-zone non saturée-aquifère.

Les processus d'atténuation qui se passent dans le sol sont les plus importants et les plus étudiés. Dans la zone non saturée et dans la zone saturée, les études sont plus rares.

La volatilisation qui pourrait limiter les apports des pesticides au sol n'est pas étudiée en détail dans cette étude car ce processus est vraisemblablement peu impactant (Barcelo et Hennion, 1997). La volatilisation correspond au passage à l'état gazeux d'une substance déposée sur le sol. Le mode d'application (sous forme de granulés ou liquide) a une grande influence sur le taux de volatilisation.

¹ Un herbicide est dit de pré-levée lorsqu'il est appliqué avant la levée des mauvaises herbes, il est dit de post-levée s'il peut être appliqué sur des mauvaises herbes déjà poussées.

2.2.1 La dégradation

a) Les produits de dégradation de l'atrazine

La dégradation de l'atrazine peut suivre diverses voies biologiques et physico-chimiques qui entraînent l'apparition de différents produits, ou métabolites (Illustration 7). Certains des produits de dégradation (DEA, DIA) de l'atrazine sont au moins aussi toxiques pour l'homme que la molécule-mère.

Les principales voies de dégradations biologiques sont les réactions de déalkylation aboutissant à différents dérivés primaires : la déséthylatrazine (DEA), la désisopropylatrazine (DIA) et la déséthyl-désisopropylatrazine (DEDIA). Cette dernière molécule peut ensuite être dégradée en ammeline, puis en acide cyanurique et finalement en dioxyde de carbone et ammonium.

La principale voie de dégradation abiotique est l'hydrolyse, qui aboutit à la formation d'hydroxy-atrazine.

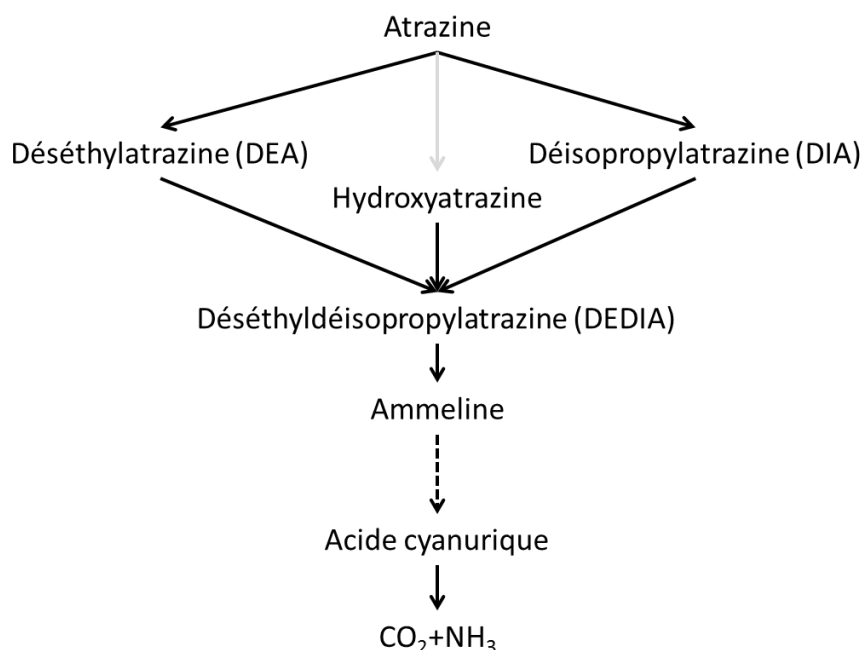


Illustration 7 : Principales voies de dégradation de l'atrazine et de ses composés dérivés. Les flèches en noir correspondent à des dégradations biologiques, la flèche grise à une dégradation abiotique (d'après Moreau-Kervévan, 1997 et Dousset, 1993)

b) Photodégradation

La photolyse peut être importante dans le sol, les eaux superficielles et l'atmosphère. Les travaux de Pelizetti et al. (1990) montrent que l'atrazine soumis à un rayonnement solaire artificiel à faible concentration (10^{-3} µg/L) peut être dégradée partiellement en une dizaine de minutes en utilisant des particules de titane. Cependant, ces travaux effectués en laboratoire sont difficilement transposables aux conditions régnant dans le sol.

Il n'existe pas à notre connaissance de travaux concernant la photodégradation à l'état adsorbé sur le sol, car il est difficile de dissocier la photodécomposition des autres facteurs aboutissant à la dissipation de l'atrazine (Dousset, 1993).

c) Dégradation abiotique

La principale voie de dégradation abiotique de l'atrazine est l'hydrolyse qui aboutit à la formation d'hydroxyatrazine. D'après l'étude bibliographique réalisée par Dousset (1993), les réactions d'hydrolyse sont d'autant plus importantes que les conditions sont acides (<5) ou alcalines (>7,3). D'autre part, l'adsorption de l'atrazine sur des particules de sol (matière organique ou argiles) catalyserait cette réaction d'hydrolyse.

d) Biodégradation

De nombreuses études (reprises dans Dousset et al., 1993) ont mis en évidence le rôle des microorganismes dans la dégradation des pesticides. Selon plusieurs études (Schiavon, 1988, Mills et Thurman, 1994), l'atrazine est préférentiellement dégradée en DEA, la DIA se forme plus lentement et est dégradée rapidement en DEDIA.

D'après Mouvet et al. (1999), les facteurs principaux qui contrôlent l'efficacité de la dégradation de l'atrazine par les populations microbiennes sont : la présence de souches microbiennes potentiellement capables de dégrader le pesticide, la disponibilité de nutriments, et l'existence de facteurs pédologiques et climatiques favorables à une activité microbienne (température, texture du sol, pH, conditions d'oxydation).

Le rapport sable/argile des sols, corrélé avec la densité de population microbienne, a également une influence sur l'activité microbienne : les horizons de sol avec un pourcentage élevé en argiles (donc perméabilité faible et transport des solutés et des microorganismes peu important) ont une densité microbienne faible et métaboliquement peu active (Mouvet, 1999).

Les conditions d'oxydo-réduction prévalant dans le sol ont également un rôle important. Delaune et al. (1997) ont étudié la dégradation de l'atrazine dans un sol aérobie et dans un sol anaérobie. Dans le sol aérobie, l'atrazine est complètement minéralisée en 14 jours ; en conditions anaérobies, la dégradation se révèle beaucoup plus lente et une partie du composé est toujours détectable après 99 jours d'incubation.

Kruger et al. (1993) ont étudié la dégradation de l'atrazine et de la DEA marquées au carbone 14 dans trois horizons d'un profil de sol de 1,2 m de profondeur. En accord avec les études précédentes, une augmentation de la persistance de l'atrazine avec la profondeur est mise en évidence. Dans l'horizon 90-120 cm, la DIA est dégradée plus rapidement que l'atrazine, que ce soit en conditions non saturées ou saturées. Toutefois, lorsque cet horizon est saturé en eau, la persistance des deux composés diminue par rapport aux conditions non saturées. Ceci serait dû à une diminution des phénomènes de sorption qui entraînerait une meilleure disponibilité des produits pour une attaque d'origine microbienne ou chimique.

Des temps de demi-vie peuvent être calculés en supposant que la dégradation suit une cinétique de premier ordre. Les temps de demi-vie que l'on peut trouver dans différentes études sont très variables. Cette variabilité peut s'expliquer en partie par les méthodes utilisées. Les études qui prennent en compte l'analyse des résidus absorbés et des résidus liés mesurent des dégradations bien plus lentes que les procédures standards. La différence entre le taux de dégradation et le taux de disparition de la molécule en solution n'est pas toujours faite.

Auteurs	Temps de demi-vie (en jours)		
	Atrazine	DIA	DEA
Kruger et al., 1993	41-231 (zone non saturée)	32-173	
Kruger et al., 1993	87 (zone saturée)	58 (zone saturée)	
Gish et al., 1994	36		
Jury et al., 1987	64		
Winckelmann et Klaine, 1991	21	17	26
Rodriguez et Harkin, 1997	120 à 271 (zone non saturée)		
Rodriguez et Harkin, 1997	500 à 2000 jours (zone saturée)		

Illustration 8 : Temps de demi-vie de l'atrazine et de ses principaux métabolites déterminés dans différentes études (références citées dans Baran, 1999 et Moreau-Kervévan, 1997).

Rodriguez et Harkin (1997) ont mesuré des temps de demi-vie particulièrement longs (2000 jours sur un sol sableux) sur des échantillons de roche aquifère collectés sur des sites agricoles contaminés en atrazine. Les échantillons sont non stériles, ils disposent d'une population microbienne importante. De même Jablonowski et al. (2009) ont détecté des quantités importantes d'atrazine et de ses métabolites dans un sol, 22 ans après la dernière application.

2.2.2 Sorption

a) Les paramètres qui jouent un rôle sur l'adsorption

D'après l'étude bibliographique réalisée par C. Moreau-Kervévan dans sa thèse (1997), la quantité de matière organique d'un sol est un des premiers paramètres à prendre en compte pour décrire l'adsorption de l'atrazine. La nature de la matière organique a une influence notable sur la sorption. Les substances humiques sont les plus réactives. Il faut distinguer :

- les acides humiques, solubles en milieu basique ;
- les acides fulviques, solubles en milieu acide ;
- les humines, non solubles.

Les acides fulviques semblent mieux absorber l'atrazine. Ces derniers étant assez mobiles, ils peuvent constituer des vecteurs importants de pesticides. La sorption augmente avec le pourcentage de matière organique présent dans le sol. Ainsi, le lessivage d'un pesticide au travers d'une couche de sol avec un pourcentage élevé de matière organique sera moins important qu'au travers de solides contenant peu de matière organique.

La sorption par les argiles du sol est souvent masquée par le rôle de la matière organique. La contribution des argiles à l'adsorption des pesticides est importante lorsque le sol contient peu de matière organique. La nature minéralogique des argiles est aussi importante. L'adsorption par les argiles dépend également de la nature des cations compensateurs. Le pH joue également un rôle important.

b) Etude de sorption de l'atrazine et de ses produits de dégradation

D'après la thèse de Baran (1999), l'atrazine reste mobilisable dans le sol plusieurs mois après son application. Différentes études donnent des pourcentages d'atrazine mobilisable, qui dépendent de la texture du sol mais aussi de la technique d'extraction utilisée. La DEA est susceptible d'être absorbée sur le sol mais en quantité moindre que l'atrazine, elle peut donc migrer plus facilement au sein d'un profil de sol.

L'indice qui quantifie le phénomène de sorption est le coefficient de partition K_p , calculé par le rapport entre les concentrations à l'équilibre de pesticide adsorbé sur les particules de sol d'une part et celle dans la phase liquide d'autre part. Plus la valeur de K_p est faible plus la concentration du pesticide dans la solution est importante. Le paramètre le plus couramment utilisé est en fait le $K_{OC} = K_p / \text{teneur en carbone organique du sol}$. Le K_{OC} prend des valeurs comprises entre quelques L/kg^{-1} pour des pesticides très peu adsorbés et pouvant être lessivés facilement, et plusieurs milliers de L/kg^{-1} pour des pesticides très adsorbés et très peu susceptibles d'être lessivés sous forme dissoute.

Auteurs	Valeurs de K_{OC} ($L \cdot kg^{-1}$)		
	Atrazine	Déséthylatrazine	Hydroxyatrazine
Brouwer et al., 1990	69 à 172	34 à 86	172 à 1015
Schiavon et al., 1990	85 à 135		
Clay et Koskinen, 1990	130 à 230		830 à 220
Barriuso et al., 1992	40 à 72		
Grundl et Smail, 1993	218 à 640		
Donati et al., 1994	110 à 650	24 à 154	
Roy et Krapac, 1994	112 à 1680	47 à 290	
Seybold et al., 1994	62 à 541		
Dousset, 1994	80 à 110		

Illustration 9 : Valeurs de K_{OC} pour l'atrazine, la DEA et la DIA (d'après Moreau-Kervévan, 1997)

2.2.3 Formation de résidus liés

Les résidus liés, ou résidus non-extractibles sont les « résidus non extraits par les solvants organiques, non identifiables chimiquement et restant, après extraction exhaustive, au sein des fractions d'acides fulviques, humiques ou humines » (définition de l'US Environmental Protection Agency, 1975).

Les deux principaux mécanismes impliqués dans la formation de résidus liés sont :

- La formation d'une liaison covalente entre la molécule ou un produit de dégradation et la matière organique
- La séquestration de la molécule ou d'un produit de dégradation.

La matière organique est la plus active pour la formation des résidus liés mais les constituants minéraux (essentiellement les argiles) peuvent également diminuer l'extractibilité des pesticides (Barriuso et al., 1991).

Dans les expériences menées par Loiseau et Barriuso (2002), entre 10 et 40% de l'atrazine appliquée se retrouve sous forme de résidus liés, selon les capacités du sol à dégrader l'atrazine (notamment selon la présence ou l'absence de microflore capable de dégrader l'atrazine). La plupart des résidus liés se retrouvent dans la fraction la plus fine qui contient les acides humiques. Entre 20 et 50% des résidus liés dans la fraction <20µm a été identifié comme de l'atrazine intacte ou un de ses produits de dégradation, et donc a probablement été séquestré dans des vides de la matière organique. Entre 13 et 30% des résidus liés sont associés avec des acides humiques. La proportion importante de pesticides immobilisée dans la partie la plus fine du sol peut poser problème car cette fraction peut être mobilisée par ruissellement et lessivage, notamment lors de labours, ce qui peut entraîner une migration importante des résidus liés de l'atrazine (Barriuso et al, 1991).

La formation des résidus liés diminue la toxicité et la biodisponibilité des pesticides mais, d'après Jablonowski et al. (2009), peu d'études sur la bioaccessibilité des résidus liés d'atrazine dans le sol ont été réalisées. Quelques études ont montré l'effet de l'activité des vers de terre (Gevao et al., 2001) et de microorganismes (Khan et Behki, 1990) sur le relargage des résidus liés de l'atrazine, suggérant que l'atrazine sous forme de résidus liés peut être libérée avec le temps.

2.3. CONCLUSION

L'atrazine est un herbicide interdit en France depuis 2003. Il est toxique et peut être persistant dans certaines conditions. Sa dégradation s'accompagne de la formation de produits métabolites, également toxiques et persistants (déséthylatrazine notamment).

Le transfert de l'atrazine vers les eaux souterraines étant largement guidé par le type et les conditions physico-chimiques des sols dans lesquels elle transite, toute étude de la contamination sur site nécessite d'engager des analyses pédologiques approfondies. Connaître les caractéristiques des sols et de la zone non saturée permet d'estimer non seulement les capacités et la vitesse potentielle de dégradation de l'atrazine mais aussi sa possible rétention retardant d'autant le transfert vers les eaux souterraines.

3. Analyse des données disponibles

3.1. LA CONTAMINATION EN ATRAZINE A L'ECHELLE NATIONALE

D'après les données rapportées à la Commission Européenne le 22 mars 2010 par les districts hydrographiques, les pesticides sont la principale cause de dégradation de l'état chimique. Sur les 574 masses d'eau souterraines que compte le pays (DOM compris), 160 masses d'eaux sont en état chimique médiocre à cause de concentrations en pesticides dépassant les valeurs seuils. La déséthylatrazine, un des principaux métabolites de l'atrazine, est une des molécules le plus souvent en cause.

Une étude nationale de caractérisation de l'évolution de la qualité des eaux souterraines vis-à-vis de certains pesticides et métabolites en relation avec les changements majeurs de pratiques agricoles (Baran et Croiset, 2012) a mis en évidence une nette diminution du taux de dépassement du seuil 0,1µg/L² depuis 1995 (voir Illustration 10). Néanmoins, le taux de dépassement de ce seuil n'était cependant pas négligeable en 2010 (environ 4%), 7 ans après l'interdiction de l'utilisation de l'atrazine. Ces résultats tendent à confirmer, à l'échelle nationale, le caractère persistant de l'atrazine dans l'environnement, et notamment dans les eaux souterraines.

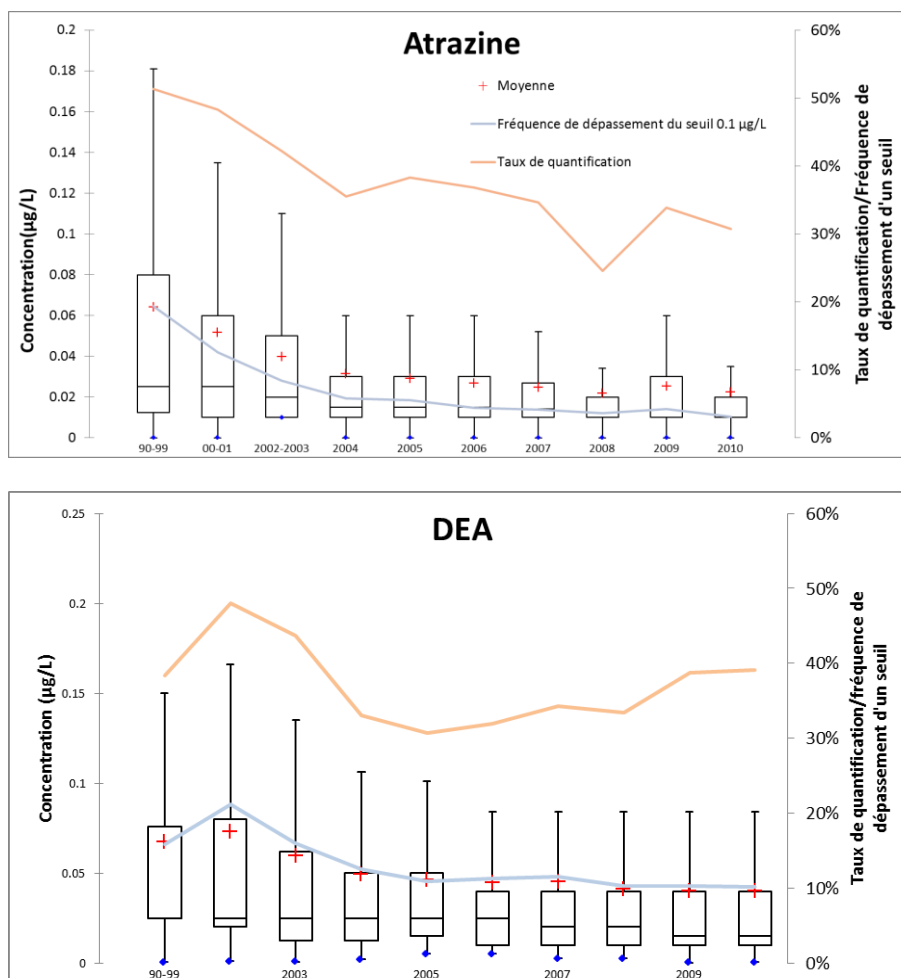


Illustration 10 : Représentation en boîte à moustaches des concentrations en atrazine et en DEA en France entre 1990 et 2010.

² Le taux de dépassement du seuil est calculé comme le nombre d'analyses au point > 0,1 µg/L divisé par le nombre total d'analyse au point

Dans cette étude, les variations saisonnières des fréquences de dépassement du seuil 0.1 µg/L ont également été analysées. Les résultats (Illustration 11) mettent en évidence que les variations saisonnières de la concentration en atrazine sont assez marquées, jusqu'en 2012. Ces variations ne peuvent pas être liées à l'usage (supposé inexistant ou presque) mais elles peuvent être expliquées par les variations saisonnières des cycles hydrogéologiques.

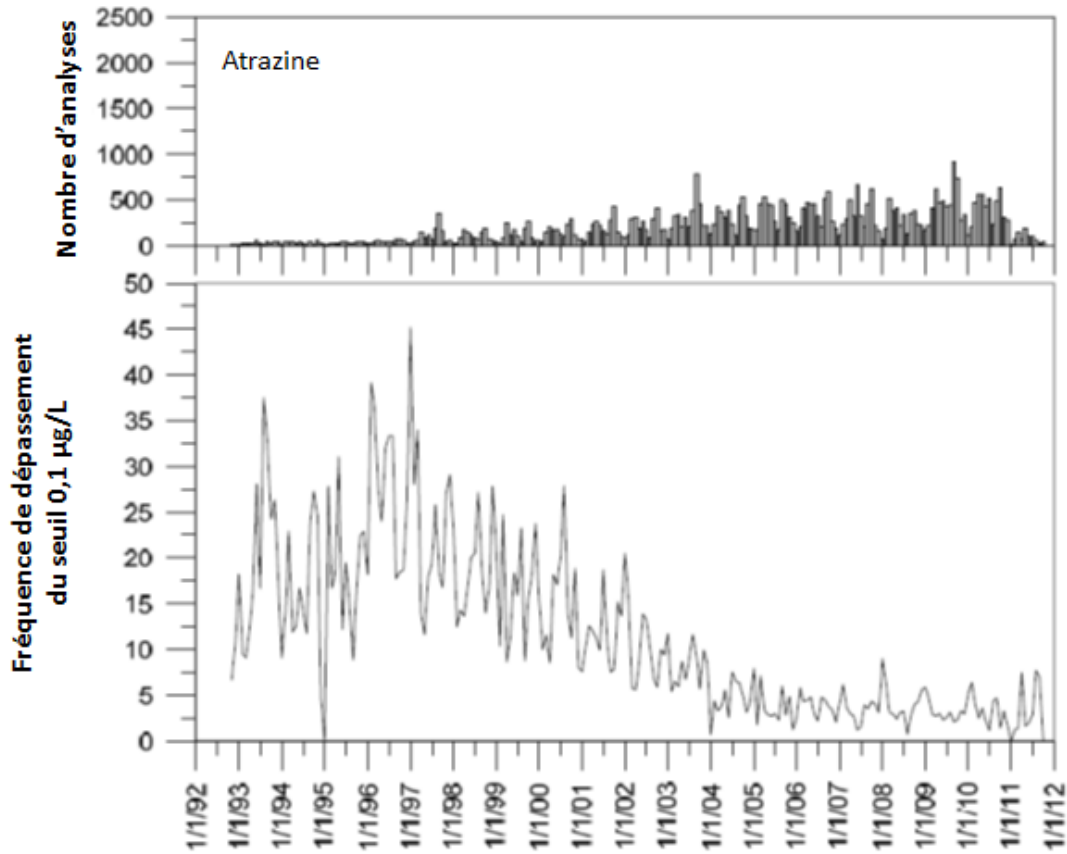


Illustration 11 : Evolution du taux de dépassement du seuil 0,1µg/L et nombre d'analyses pour l'atrazine pour les masses d'eau ayant plus de 10% de leur surface cultivée en maïs.

Des résultats semblables ont été obtenus en Allemagne, où l'usage de l'atrazine a été interdit en 1991. En 2000, près de 10 ans après l'arrêt de l'usage, la déséthylatrazine et l'atrazine étaient encore les deux molécules les plus quantifiées (Tappe, 2002).

3.2. ANALYSES CHIMIQUES AU CAPTAGE DE LA REPESSERIE ET DANS LES CAPTAGES ALENTOURS

3.2.1 Captage de la Repesserie

Au captage de la Repesserie, l'atrazine, la déséthylatrazine (DEA), le déisopropylatrazine (DIA) et l'hydroxyatrazine sont suivies depuis 1999 à une fréquence d'une analyse tous les deux ans environ. La déisopropylatrazine et l'hydroxy-atrazine ont également été analysées mais jamais quantifiées. En raison des concentrations importantes mesurées à partir de 2007, l'atrazine et la déséthylatrazine ont été suivies de manière plus régulière à partir de 2011 et ont été systématiquement quantifiées à partir de 2009 à des concentrations atteignant 0,2 µg/L (Illustration 12).

Pour rappel, la norme a été fixée à 0,1 µg/L (décret 2001-1220 du 20 décembre 2001).

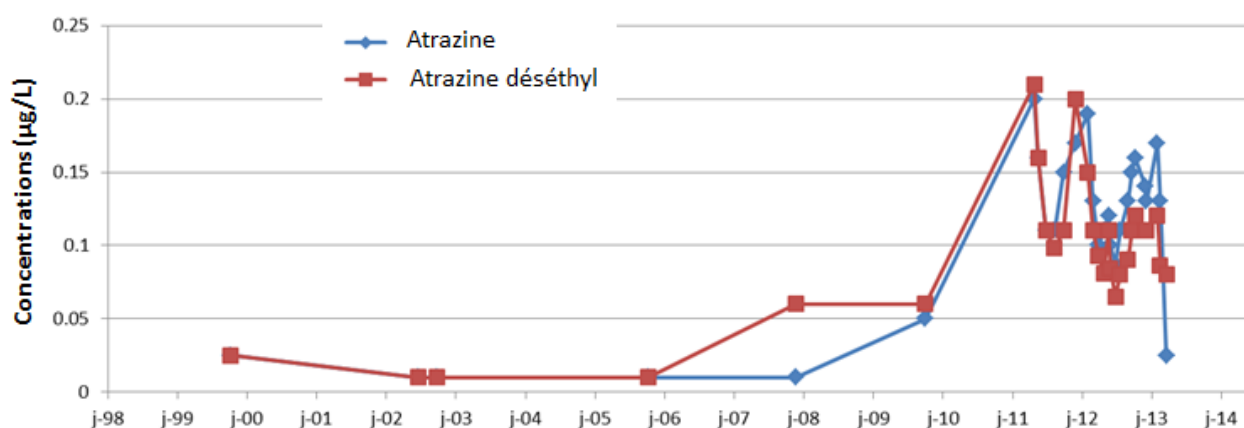


Illustration 12 : Evolution des concentrations en atrazine et en déséthylatrazine à la station de la Repesserie

Les concentrations en atrazine et en DEA ont des valeurs proches et sont bien corrélées. Le rapport entre les concentrations en DEA et en l'atrazine (appelé DAR, *déséthylatrazine-atrazine ratio*) est proche de 1 pour l'ensemble des données. Ce rapport permet de caractériser le transfert du pesticide jusque dans les eaux souterraines. Il est généralement faible au moment de l'épandage à cause des fortes concentrations en atrazine dans les eaux, il est ensuite de plus en plus élevé dans le temps après la période d'application en raison de la dégradation progressive de l'atrazine en DEA. Un rapport assez faible, proche de 1, comme observé à la Repesserie pourrait s'expliquer soit par une utilisation récente et un transfert rapide d'atrazine vers les eaux souterraines, soit par une utilisation plus ancienne accompagnée d'un transfert et d'une dégradation très lente de ce pesticide.

Les variations de concentrations entre 2011 et 2013 tendent à montrer que les concentrations les plus élevées sont observées pendant la période annuelle de recharge, tandis que les concentrations les plus faibles sont observées en été. Ce type de fonctionnement pourrait correspondre au lessivage de l'atrazine vers les eaux souterraines par les eaux d'infiltration en période de recharge. Ce constat ne permet néanmoins pas d'indiquer si l'atrazine est stockée dans le sol ou dans la zone non saturée.

3.2.2 Captages alentours

Des analyses en atrazine et ses produits de dégradation sont disponibles sur plusieurs captages AEP alentours (Illustration 13 et Tableau 1). La concentration indiquée ci-dessous dans chaque figuré correspond à la concentration maximale atteinte par au moins l'un des deux pesticides entre 1994 et 2013.

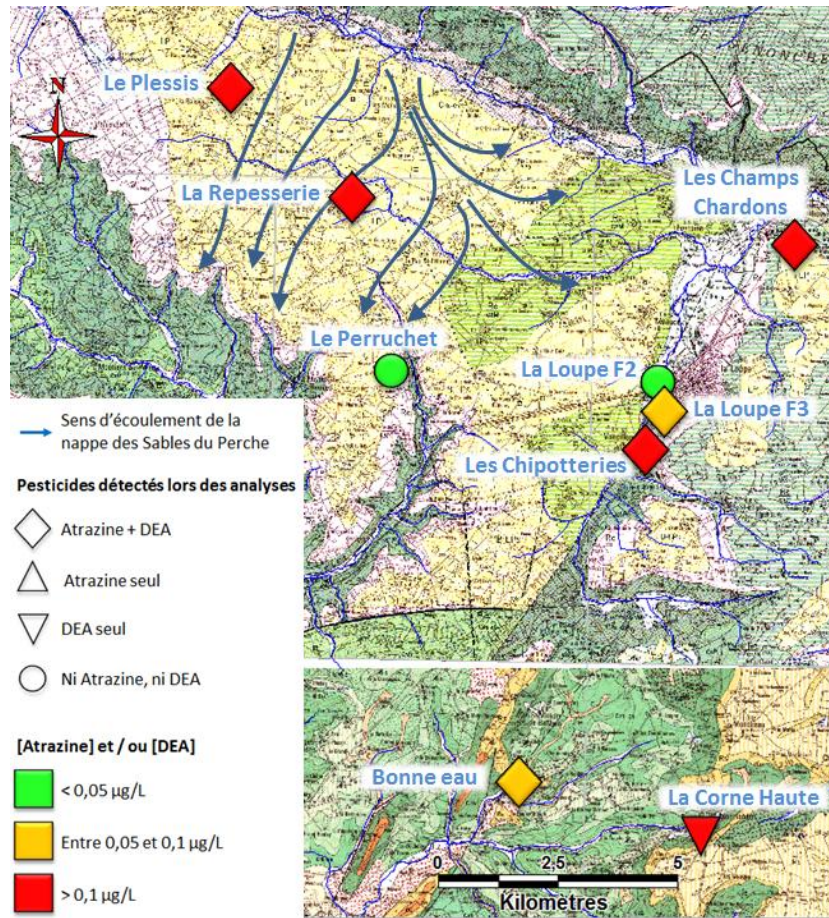


Illustration 13 : Localisation des captages situés aux alentours de la Repesserie pour lesquels des analyses d'atrazine et de DEA sont disponibles et concentrations maximales enregistrées pour l'atrazine ou la DEA

Nom du captage	Commune	Numéro BSS
Le Plessis	Neuilly-sur-Eure	02532X0011
Perruchet	Bretoncelles	02537X0010
Les Champs Chardons	Belhomert-Guehouville	02538X0007
La Loupe/F2	La Loupe	02538X0001
La Loupe/F3	La Loupe	02538X0003
Les Chipotteries	Saint-Eliph	02538X0059
Bonne Eau	Saint-Victor-de-Buthon	02894X0006
La Come Haute	Saint-Victor-de-Buthon	02894X0016

Tableau 1: Liste des captages pour lesquels des analyses d'atrazine et de DEA sont disponibles aux alentours du captage de la Repesserie

Lorsque des coupes géologiques sont disponibles pour les captages, les formations rencontrées sont les mêmes qu'à la Repesserie : argiles à silex et sables du Perche, surmontés éventuellement de craie Turonienne.

Les concentrations mesurées en atrazine et en DEA sur les différents forages sont présentées sur l'illustration 14.

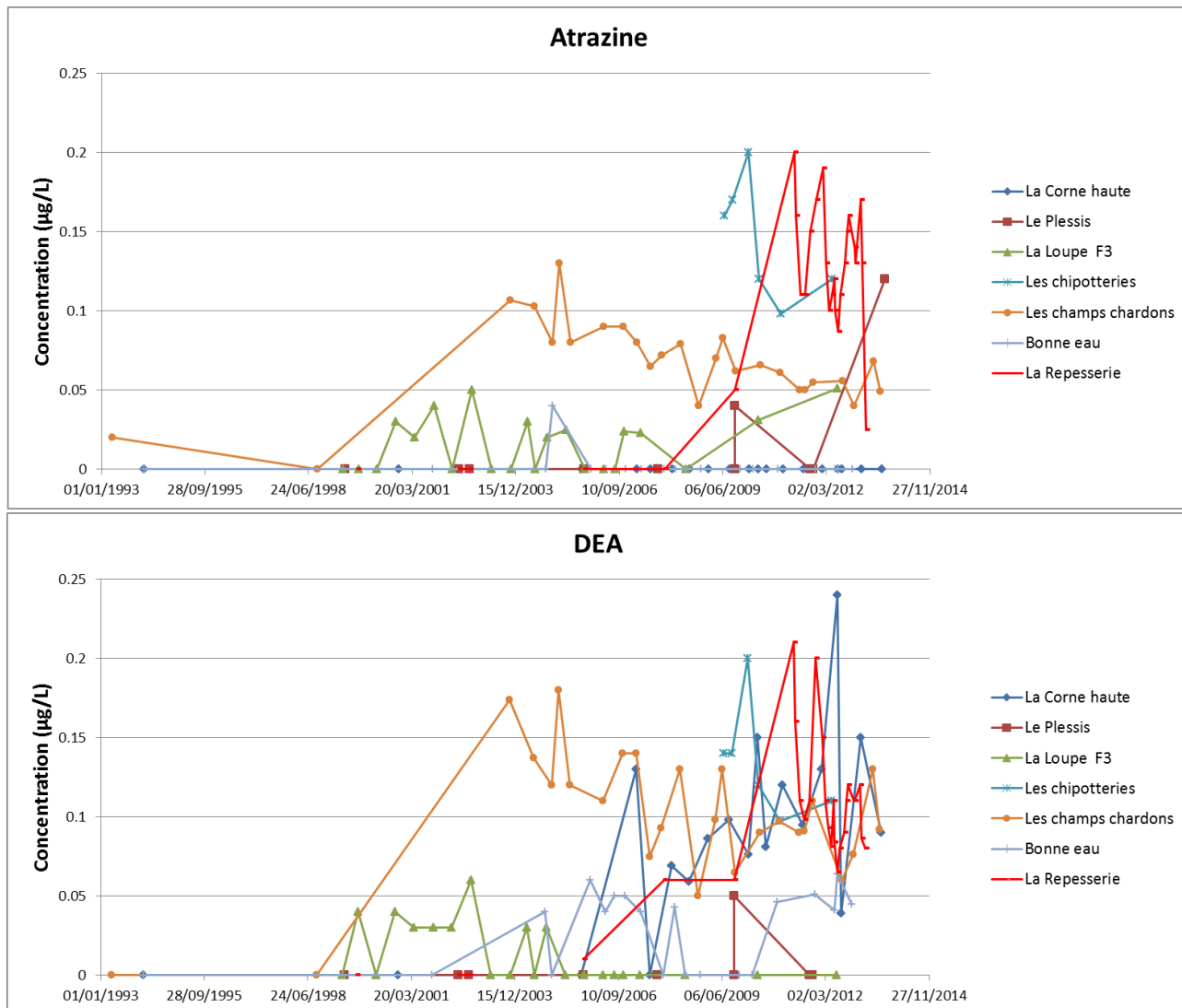


Illustration 14 : Evolution des concentrations en atrazine et en DEA pour différents captages AEP situés aux alentours du captage de la Repesserie

Les graphiques mettent en évidence que la contamination en atrazine et en DEA est étendue. Seuls deux captages situés dans le secteur ne semblent pas concernés par la pollution en atrazine : le captage de Perruchet et le captage F2 de la Loupe. Les évolutions observées dans les différents captages ne se ressemblent pas toutes :

- Aux captages des Champs Chardons, du Plessis et des Chipotteries, les concentrations en atrazine et en DEA sont du même ordre de grandeur et corrélées, comme à la Repesserie. Au captage des Champs Chardons, une diminution lente mais régulière des concentrations en atrazine est observée depuis 2003.
- Au captage de la Corne Haute et de Bonne Eau, la DEA est beaucoup plus souvent quantifiée que l'atrazine. A la Corne Haute, les concentrations en DEA sont très élevées et présentent une nette tendance à la hausse depuis 2006.

Les données géologiques et hydrogéologiques actuellement disponibles ne permettent pas de comprendre le fonctionnement hydrodynamique de l'aquifère et l'hétérogénéité observée dans la partie nord de la zone d'étude, notamment entre les deux captages de la Loupe et celui des Chipotteries pourtant géographiquement très proches. Le fait que les deux captages les plus à l'aval hydraulique du système, le captage de la Corne Haute et celui de Bonne Eau, présentent des rapports DEA/atrazine plus élevés que les autres captages suggère que les processus de dégradation sont plus importants aux alentours de ces captages. Ceci pourrait avoir différentes causes :

- soit l'atrazine (que ce soit une utilisation récente ou un relargage récent après une immobilisation prolongée de l'atrazine dans le sol ou la zone non saturée) provient uniquement d'une zone située à l'amont hydraulique de ces captages. Le temps de transfert entre la source d'atrazine et les captages est plus important, et donc, même si les processus de dégradation ne sont pas plus rapides, la dégradation a plus de temps pour se produire ;
- soit il existe également une source d'atrazine au droit de ces captages mais les processus de dégradation sont plus rapides dans cette zone, à cause de conditions physico-chimiques plus favorables.

3.3. ETUDE DES DONNEES PLUVIOMETRIQUES ET PIEZOMETRIQUES

3.3.1 Evolution du niveau piézométrique au captage de la Repesserie

La chronique piézométrique du captage de la Repesserie montre un fonctionnement de la nappe assez inertiel au niveau du captage : les cycles saisonniers sont peu marqués et un cycle pluriannuel de période 6 à 7 ans semble s'individualiser. Ce comportement tend à montrer qu'il n'y a pas de circulations rapides des eaux du sol vers la nappe.

Depuis 2004, les niveaux piézométriques au captage de la Repesserie semblent suivre une tendance à la baisse, inverse de celle des concentrations en atrazine.

Le suivi piézométrique s'est arrêté en 2010 ; il aurait été intéressant de disposer de mesures entre 2010 et 2013, afin de pouvoir comparer les évolutions piézométriques aux évolutions actuelles des teneurs en atrazine et DEA mesurées au captage.

3.3.2 Comparaison de la pluviométrie et des concentrations en atrazine

La pluviométrie journalière à la station de Longny-au-Perche (située à environ 12 km à l'Ouest du captage de la Repesserie) a été fournie par le SDE de l'Orne. En première approche, aucune corrélation n'apparaît entre la pluviométrie mesurée à Longny-au-Perche et les concentrations mesurées à la Repesserie.

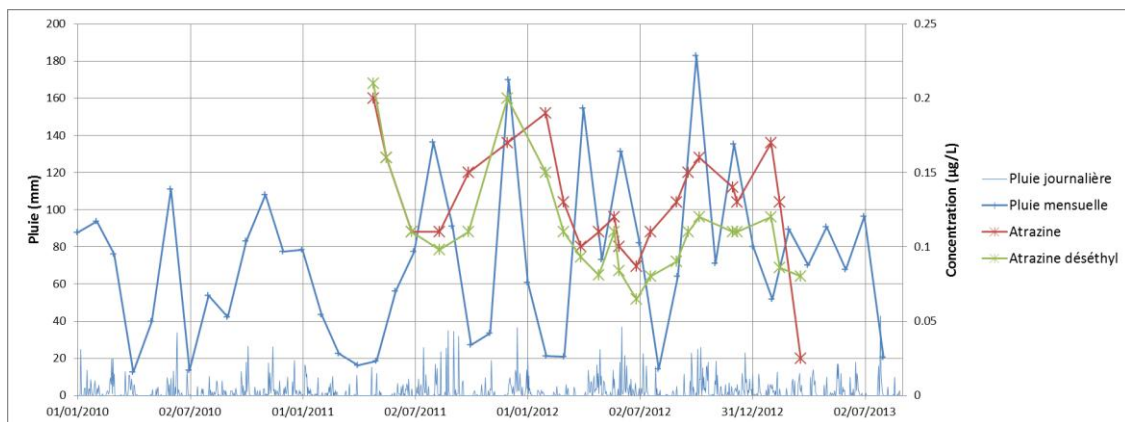


Illustration 15 : Pluviométrie à la station de Longny-au-Perche et évolution des concentrations en atrazine et DEA au captage de la Repesserie

4. Hypothèses et recommandations

4.1. HYPOTHESES

Deux hypothèses peuvent être avancées pour expliquer les importantes concentrations en atrazine et DEA mesurées au captage de la Repesserie depuis 2010.

La contamination en atrazine et en DEA pourrait être due soit :

- à l'utilisation du produit avant 2003. L'atrazine a été stockée dans le sol et/ou le sous-sol et est relarguée et dégradée progressivement ;
- à l'utilisation illégale récente d'atrazine dans l'environnement proche du captage.

Etant donnée l'étendue spatiale de la contamination, l'hypothèse d'une utilisation illégale d'atrazine impliquerait une utilisation étendue sur un secteur de plusieurs dizaines de km² (voir la carte en Illustration 13 pour la localisation des captages impactés par la pollution).

L'hypothèse d'une contamination due à utilisation passée paraît plausible. En effet, la synthèse des connaissances sur les processus de transferts de l'atrazine dans le sol et le sous-sol montre que des concentrations élevées en atrazine peuvent encore être retrouvées dans le sous-sol et dans les eaux souterraines une dizaine d'années après la dernière application. Cette hypothèse suppose que l'atrazine ait été stockée dans un ou des compartiment(s) du sol et du sous-sol sans y être beaucoup dégradée et qu'elle atteigne aujourd'hui les eaux prélevées dans le captage. Cette immobilisation prolongée puis ce relargage pourraient être dus soit à une vitesse de transfert lente de l'atrazine du sol vers le captage, soit à un relargage soudain sous l'effet d'un changement des conditions physico-chimiques (pH, conditions d'oxydo-réduction...) qui avaient permis le stockage de l'atrazine jusqu'à présent.

Afin de valider l'hypothèse d'une contamination due à un usage antérieur à 2003, il serait nécessaire de s'intéresser aux formations géologiques potentiellement impliquées dans le stockage de l'atrazine. Compte tenues des formations rencontrées dans les différents forages, le stockage pourrait être envisagé soit dans le sol, soit dans la couche d'argiles à silex, soit dans les sables du Perche.

Le stockage dans le sol est assez peu probable, au vu de la synthèse bibliographique : même si les conditions peuvent être favorables à la sorption, les conditions de dégradation sont aussi favorables. A notre connaissance, il n'existe pas d'étude montrant une persistance de l'atrazine aussi longue dans le sol. Le stockage dans la couche des sables du Perche apparaît également peu probable étant donné le faible taux de matière organique et d'argiles supposés dans cette formation. La couche d'argiles à silex coiffant les sables du Perche sur une grande partie du secteur nous semble être le lieu le plus propice à un stockage d'atrazine sans dégradation importante.

A notre connaissance, aucune étude ne s'est intéressée en détail au rôle que peuvent jouer les argiles à silex sur les transferts de pesticides. L'hypothèse d'un stockage dans cette couche, pour être validée, demanderait des investigations complémentaires.

4.2. RECOMMANDATIONS

La synthèse des données existantes soulève plusieurs questions auxquelles il n'est pas possible de répondre avec certitude sans acquérir et analyser des données complémentaires :

- Quelle est l'origine et la source de la pollution en atrazine ?
- Quelle est l'extension du panache ?
- Quel est l'ordre de grandeur de la durée potentielle de la pollution ?
- Quels points d'eau, aujourd'hui non contaminés, peuvent à l'avenir voir leur qualité être dégradée par la présence d'atrazine ?

Afin de répondre à ces questions, plusieurs actions, détaillées dans les paragraphes suivants, devraient être engagées.

Il est possible de travailler à différentes échelles spatiales : aux environs du captage de la Repesserie seulement, sur l'ensemble des captages du secteur identifiés dans l'étude et sur lesquels une pollution en atrazine a été détectée, ou alors à l'échelle de la nappe des sables du Perche.

4.2.1 Historique des pratiques culturales des parcelles situées à proximité du captage

Les seules données sur les pratiques agricoles dans cette zone sont celle du recensement agricole de 2000 : environ 40% de la surface agricole utile du canton de Longny-au-Perche (dans lequel se situe le captage) est une surface de prairie toujours en herbe. Les terres labourables sont principalement utilisées pour la production de blé, d'oléagineux, d'orge et de maïs.

La collecte de données complémentaires est indispensable. L'historique des cultures pendant les 20 dernières années ainsi que les dates des éventuels labours et retournements de prairie sont des éléments importants. L'historique des usages permettrait d'avoir une idée des pesticides qui ont pu être utilisés. Les retournements de terre provoquent un changement important de la structure et de la composition physico-chimique des sols (oxygénation, minéralisation de la matière organique du sol) et pourraient donc jouer un rôle sur la remobilisation de l'atrazine, alors relarguée vers la ZNS et les eaux souterraines.

4.2.2 Diagnostic du forage de la Repesserie

Un diagnostic du forage pourrait être réalisé afin de préciser si l'eau contaminée en atrazine provient bien de la nappe des sables du Perche.

En premier lieu, un passage caméra dans le forage permettrait de connaître l'état du forage et notamment de vérifier qu'il n'y a pas de défaut du tubage qui autoriserait des venues d'eau dans la partie cimentée de l'ouvrage. Cette vérification pourrait s'accompagner d'un contrôle de la cimentation par diagraphie CBL.

Une diagraphie chimique et des prélèvements multi-niveaux permettrait de vérifier si, en fonction de la profondeur, les eaux captées par le forage ont des compositions différentes.

4.2.3 Caractérisation des relations entre l'Eure et la nappe et analyses chimiques de l'eau de la rivière

L'Eure étant en position haute par rapport à la nappe dans le secteur du captage de la Repesserie, les eaux superficielles de cette rivière peuvent être une source de pollution du captage.

La caractérisation des échanges entre la nappe et la rivière depuis sa source jusque dans le secteur des Menus, où la rivière est en position drainante par rapport à la nappe, permettraient de préciser l'origine de la pollution. Des jaugeages différentiels pourraient être réalisés afin d'identifier les zones dans lesquelles la rivière alimente la nappe et celles dans lesquelles la rivière est alimentée par la nappe. Ces jaugeages seraient réalisés à différentes périodes climatiques afin d'estimer la variabilité des échanges dans le temps.

Les concentrations en atrazine et ses métabolites dans la rivière depuis la source jusqu'au secteur d'étude devraient être régulièrement suivies.

4.2.4 Etude approfondie des contextes hydrogéologiques des captages situés aux alentours de la Repesserie

Afin de comprendre les différentes évolutions constatées sur les captages aux alentours de la Repesserie, il serait nécessaire d'étudier en détail le contexte hydrogéologique de cette zone.

Tout d'abord, il serait nécessaire d'établir un inventaire exhaustif des forages existants et de collecter un maximum de données piézométriques afin de préciser et compléter, notamment pour le secteur de la Loupe, la carte piézométrique établie dans le cadre de l'étude de vulnérabilité et d'évaluation des risques de pollution du captage de la Repesserie (Aster, 1994) présentée en Illustration 2.

Si après cette phase de collecte, il s'avère que les données ne sont pas suffisantes pour bien caractériser les écoulements souterrains dans le secteur, des piézomètres supplémentaires devraient être installés.

D'autre part, la collecte des éléments suivants permettrait de caractériser l'environnement de chaque captage :

- épaisseur des argiles à silex ;
- épaisseur de la ZNS ;
- perméabilité des sables du Perche ;
- captivité éventuelle de la nappe des sables du Perche sous les argiles.
- ...

4.2.5 Suivi des principaux paramètres physico-chimiques et des concentrations en atrazine dans les eaux souterraines

Quelles que soient les causes de la pollution, le suivi des concentrations en atrazine et en déséthylatrazine ainsi que l'analyse des autres métabolites importants de l'atrazine (DIA, DEDIA et hydroxyatrazine) au captage de la Repesserie et dans les captages alentours permettrait de suivre la chaîne de dégradation.

Les principaux paramètres physico-chimiques (température, pH, pe, ions majeurs) devraient également être analysés lors des prélèvements, en effet, la synthèse bibliographique a montré, que ces paramètres peuvent jouer un rôle important sur le transport et la dégradation de l'atrazine.

Une information sur l'âge de l'eau dans la nappe des sables du Perche permettrait également de mieux comprendre le fonctionnement hydrodynamique du système. Pour cela, des traceurs chimiques comme les CFC (chlorofluorocarbones) ou SF6 (hexafluorure de soufre) pourraient être utilisés.

Cette étude pourrait s'accompagner d'une recherche sur les données de concentrations en atrazine disponibles sur l'ensemble de l'extension de la nappe du Perche et de la couche d'argiles à silex afin de déterminer si la pollution observée à la Repesserie reflète la situation régionale.

4.2.6 Evaluation de la quantité d'atrazine appliquée

Les quantités d'atrazine qu'il aurait fallu appliquer pour expliquer les concentrations mesurées dans le captage de la Repesserie devraient être évaluées. Pour cela une méthode basée sur les connaissances du fonctionnement hydrodynamique de la nappe des sables du Perche devra être développée.

Ces résultats permettraient de vérifier si la pollution observée ne peut être due qu'à une utilisation massive de l'herbicide ou si elle peut être causée par une utilisation plus occasionnelle.

4.2.7 Echantillonnage et analyses chimiques dans les sols et la zone non saturée

Des carottages pourraient être réalisés pour disposer d'un ordre de grandeur des stocks d'atrazine et de ses métabolites présents dans les sols et la zone non saturée et de leur répartition sur la hauteur du profil ainsi que d'une estimation des temps de transfert dans la zone non saturée.

On cherchera à échantillonner à plusieurs endroits de la zone d'étude, dans le secteur de la Repesserie, dans le secteur de la Loupe et en amont hydraulique des captages, près de la vallée de l'Eure afin d'avoir une idée de la variabilité spatiale pouvant exister. Le choix des sites d'échantillonnage se fera après l'étude des pratiques agricoles afin de cibler en priorité des parcelles sur lesquelles de l'atrazine a vraisemblablement été utilisée. L'eau interstitielle et le solide seront analysés :

- une méthode isotopique sera mise en œuvre sur l'eau interstitielle afin d'avoir une idée des temps de transfert de l'eau dans cette couche. On pourra par exemple utiliser le couple Oxygène 18 et deutérium, sensible aux variations de température ;
- les concentrations en atrazine et ses métabolites seront mesurées en solution ;
- sur la phase solide, des extractions séquentielles seront réalisées afin de déterminer les quantités d'atrazine et de ses métabolites présents et sous quelle forme ils sont immobilisés.

Ces éléments sont indispensables pour pouvoir anticiper l'évolution des concentrations en atrazine et ses métabolites dans les années à venir.

Il serait très intéressant de profiter de ces carottages pour effectuer également des analyses sur d'autres pesticides et notamment les herbicides utilisés depuis 2003 en remplacement de l'atrazine (métolachlore, alachlore...), qui pourraient éventuellement causer une dégradation de la nappe à l'avenir.

5. Bibliographie

- Aster (1994) – Etude de vulnérabilité et d'évaluation des risques de pollution du captage de la Repesserie dans la commune du Pas-Saint-l'Homer.
- Baran N., Croiset N. (2013) – Analyse des niveaux de contamination des eaux souterraines par les produits phytosanitaires en lien avec l'évolution des autorisations de mise sur le marché. Rapport final. BRGM/RP-61810-FR.
- Barcelo D., Hennion M-C. (1997). Trace determination of pesticides and their degradation products in water. *Techniques and Instrumentation in Analytical Chemistry*, vol. 19. Elsevier, Amsterdam, p. 542.
- Barriuso E., Schiavon M., Andreux F., Portal JM. (1991). Localization of atrazine non-extractable (bound) residues in soil size fractions. *Chemosphere*, 22, pp1131-1140.
- DeLaune R.D., Devai I., Mulbah C., Crozier C., Lindau C.W. (1997). The influence of soil redox conditions on atrazine degradation in wetlands. *Agriculture, Ecosystems and Environment* 56, pp41-46.
- Dousset S., Mouvet C., Schiavon M. (1993). Dégradation et immobilisation de l'atrazine dans trois sols de la région Centre. Rapport BRGM R36780.
- Gevao B., Mordaunt C., Semple K.T., Pearce T.G., Jones K.C. (2001). Bioavailability of nonextractable (bound) pesticide residues to earthworms. *Environmental Science and Technology* 35, pp 501-507.
- Gish T.G., Shirmohammadi A., Wienhold B.J. (1994). Field-scale mobility and persistence of commercial and starch-encapsulated atrazine and alachlor. *Journal of Environmental Quality*, 23, pp355-359.
- Jablonowski N.D., Köppchen S., Hofmann D., Schäffer A., Burauel P. (2009). Persistence of ¹⁴C-labeled atrazine and its residues in a field lysimeter soil after 22 years. *Environmental Pollution* 157, pp2126-2131.
- Juignet P. (1995) – Définition des périmètres de protection du forage de la Repesserie au Pas-Saint-l'Homer.
- Jury W.A., Focht D.D., Farmer W.J. (1987). Evaluation of pesticide groundwater pollution potential from standard indices of soil-chemical adsorption and biodegradation. *Journal of Environmental Quality* 16, pp 422-428.
- Khan S.U., Behki R.M., (1990). Effects of *Pseudomonas* species on the release of bound ¹⁴C residues from soil treated with [¹⁴C]atrazine. *Journal of Agricultural and Food Chemistry* 38, pp 2090-2093.
- Kruger E.L., Somaasundaram L., Kanwar R.S., Coats J.R. (1993). Persistence and degradation of ¹⁴C atrazine and ¹⁴C deisopropylatrazine as affected by soil depth and moisture conditions. *Environmental Toxicology Chemistry* 12, pp1959-1967.
- Loiseau L., Barrisuo E. (2002). Characterization of the Atrazine's Bound (Nonextractable) Residues Using Fractionation techniques for Soil Organic Matter. *Environmental Science and Technology*, 36, pp 683-689.
- Mills M.S., Thurman E.M. (1994). Preferential dealkylation reactions of s-triazine herbicides in the unsaturated zone. *Environmental Science and Technology* 28, pp 600-605.
- Moreau-Kervévan C. (1997). Adsorption et désorption de l'atrazine, la dééthylatrazine et l'hydroxyatrazine au contact de sols, de solides aquifères et de constituants isolés des sols. Thèse de l'université d'Orléans.
- Mouvet C., Elsass P., Dictor M.C., Baran N. (1999). Devenir de phytosanitaires (en particulier les s-triazines) au-delà de la zone racinaire. Rapport BRGM R40928)
- Pelizzeti E., Maurino V., Minero C., Carlin C., Pramauro E., Zerbinati O (1990). Photocatalytic Degradation of Atrazine and Other s-Triazine Herbicides. *Environmental Science and Technology*, 24, pp 1559-1585.

Quesnel F. (1993) – Les formations résiduelles à silex de l'Ouest du Bassin Parisien Nouvelles méthodes d'investigation et de synthèse.

Rodriguez C.J., Harkin J.M. (1997). Degradation of Atrazine in Subsoils, and Groundwater mixed with Aquifer Sediments. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology* 59, pp728-735.

Schiavon M. (1988). Studies of the leaching of atrazine, of its chlorinated derivatives, and of hydroxyatrazine from soil using ¹⁴C ring-labeled compounds under outdoor conditions. *Ecotoxicology and Environmental Safety* 15(1), pp 46-54

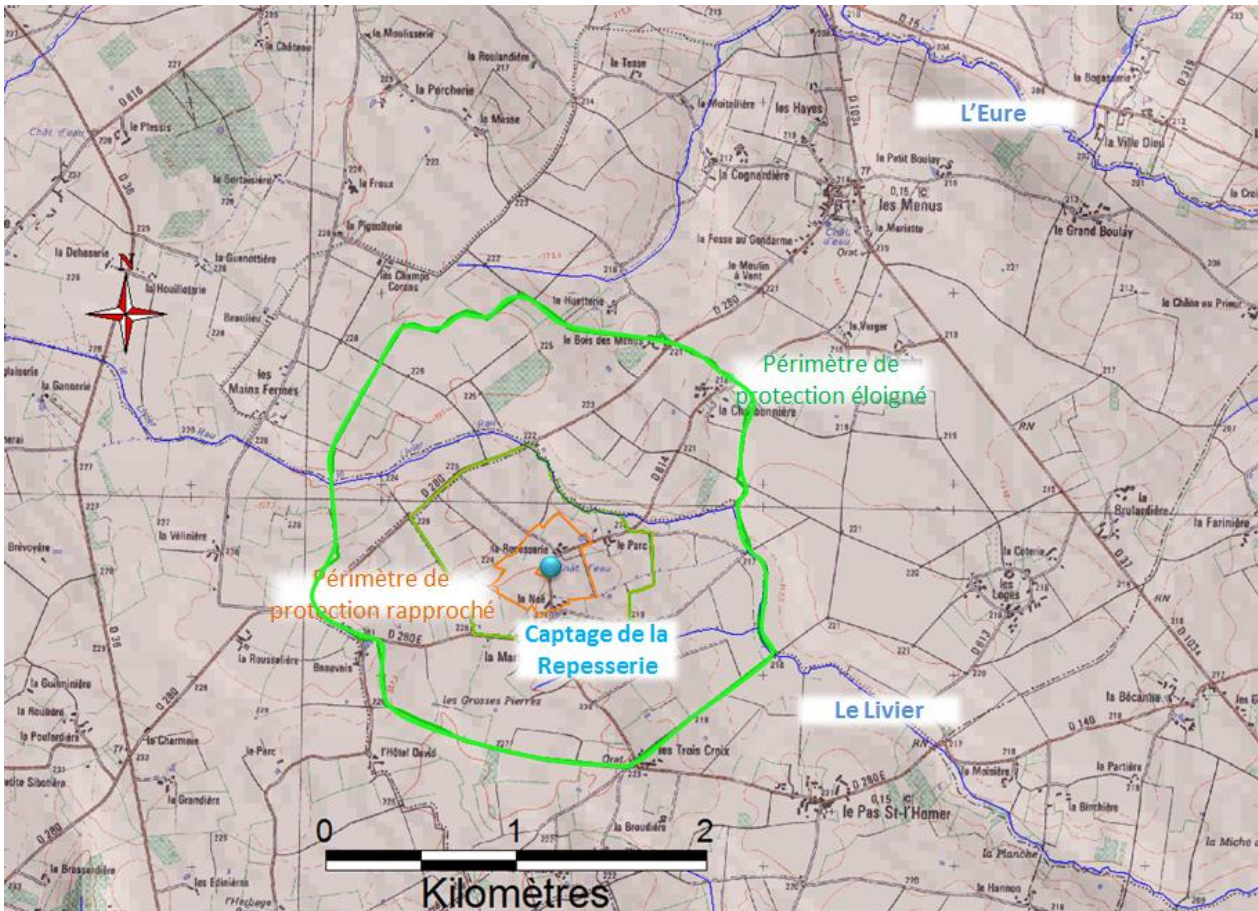
Tappe W, Groeneweg J., Jantsch B. (2002). Diffuse atrazine pollution in German aquifers. *Biodegradation* 13, pp 3-10.

U.S. Environmental Protection Agency, (1975). *Federal Register*, 40, 26802.

Winckelmann D.A., Klaine S.J. (1991). Degradation and bound residue formation of four atrazine metabolites, deethylatrazine, deisopropylatrazine, dealkylatrazine and hydroxyatrazine, in a western tennessee soil. *Environmental Toxicology and Chemistry*

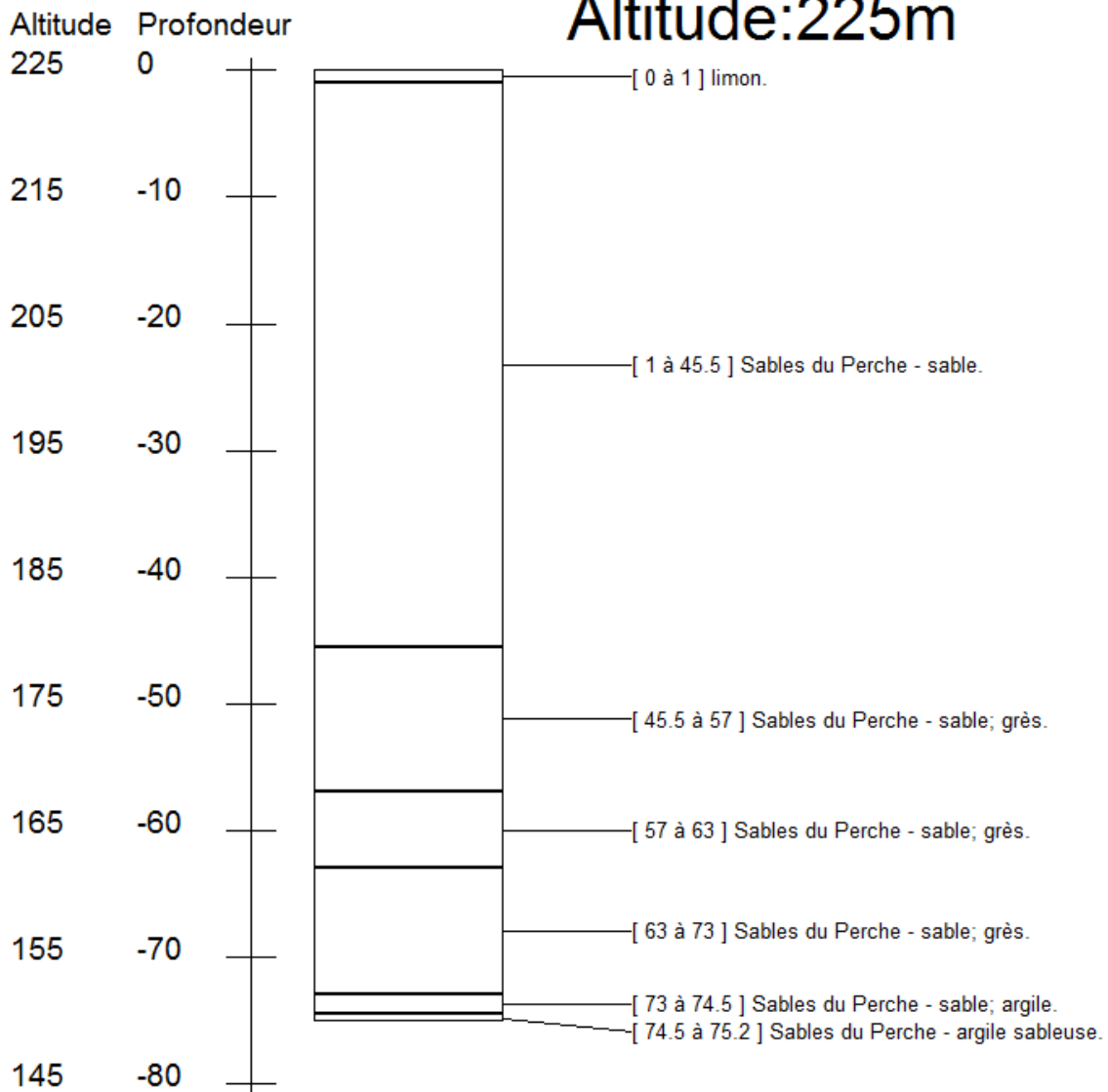
6. Annexes

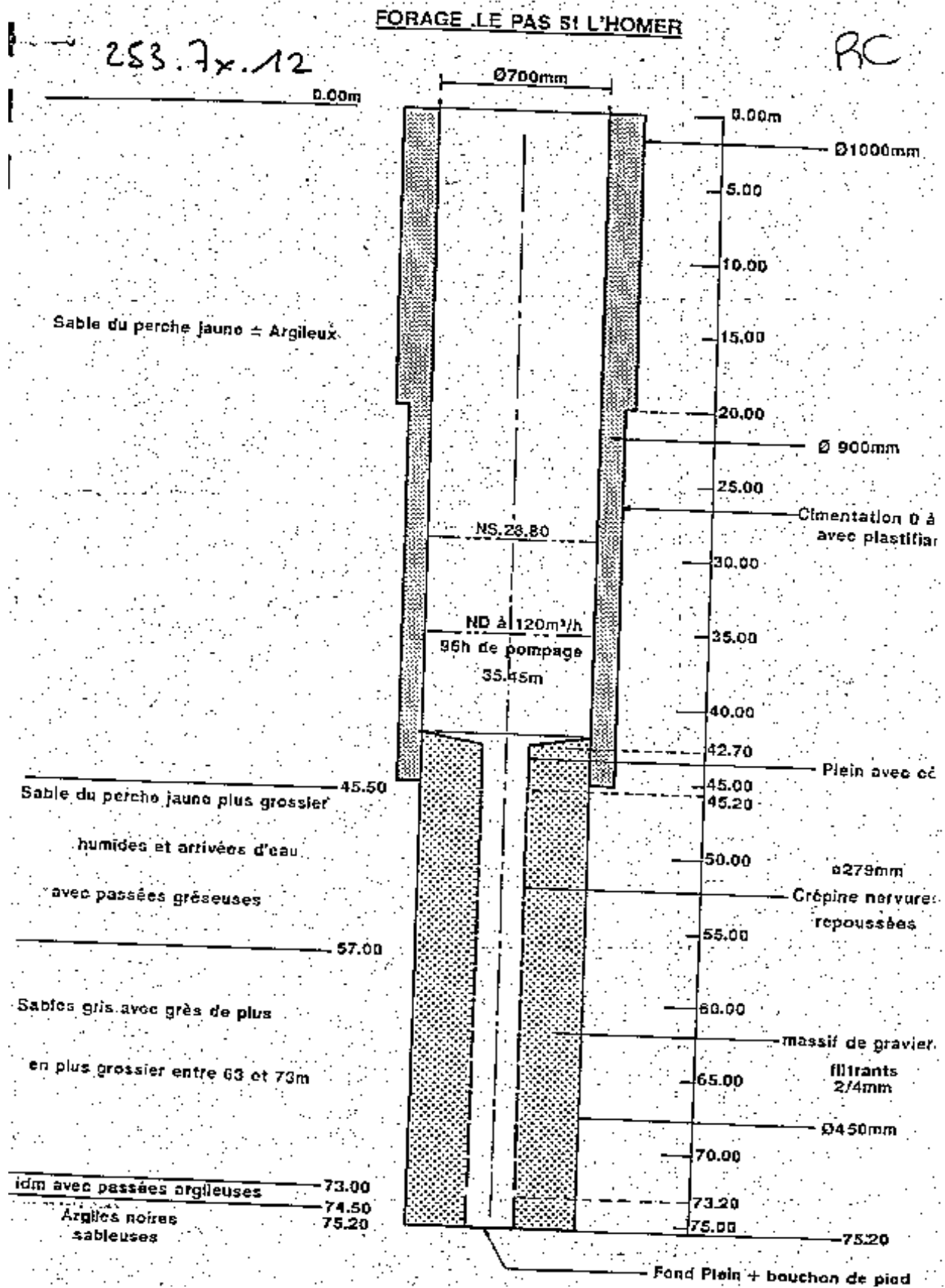
Annexe 1 : Localisation du captage de la Repesserie sur fond IGN



**Annexe 2 : Coupes géologique et technique du forage de la Repesserie
(02537X0012/F)**

02537X0012/F
Log géologique vérifié
Altitude:225m







Géosciences pour une Terre durable

brgm

Centre scientifique et technique
3, avenue Claude-Guillemin
BP 36009 - 45060 Orléans Cedex 2 - France
Tel. 02 38 64 34 34

Direction Régionale de Basse-Normandie
Citis Odyssée, 4 avenue de Cambridge
14200 – Hérouville-Saint-Clair
Tél. : 02 31 06 66 40