

Modélisation de la qualité de l'air : vers l'évaluation de l'exposition atmosphérique aux pesticides

FLORIAN COUVIDAT¹

CAROLE BEDOS²

ETIENNE QUIVET³

¹ Institut national de l'environnement industriel et des risques (Ineris)
Parc technologique ALATA
60550 Verneuil-en-Halatte
France
<florian.couvidat@ineris.fr>

² Université Paris-Saclay,
INRAE, AgroParisTech,
UMR ECOSYS
22, place de l'Agronomie
91120 Palaiseau
France
<carole.bedos@inrae.fr>

³ Aix Marseille Univ CNRS
LCE
3, place Victor Hugo - Case 29
CS 80249
13331 Marseille cedex 3
France
<etienne.quivet@univ-amu.fr>

Tirés à part :

F. Couvidat

Résumé. La détermination de l'exposition atmosphérique est critique pour évaluer l'impact sanitaire des pesticides mais peu d'outils permettent actuellement de réaliser une cartographie des concentrations à l'échelle nationale. Une méthode possible consisterait à utiliser des modèles de qualité de l'air comme le modèle CHIMERE pour simuler les concentrations de pesticides. Ce genre de modèle représente les processus physico-chimiques intervenant dans l'atmosphère pour calculer les concentrations de diverses substances. Une méthode a été récemment développée dans le modèle CHIMERE pour simuler les concentrations de pesticides en intégrant un modèle de calcul de flux de volatilisation afin de calculer les émissions dans l'air depuis les surfaces traitées.

Utiliser une telle méthode exigerait de connaître la distribution spatiale et temporelle des applications de pesticides. Si la spatialisation des données de la Banque nationale des ventes de produits phytopharmaceutiques par les distributeurs agréés spatialisée (BNVD-S) fournit une bonne indication sur la distribution spatiale des applications en France, peu d'informations existent sur les calendriers de traitement.

Bien que ce genre de modèles fonctionne à des résolutions de quelques kilomètres (ce qui ne permettrait pas une détermination fiable de l'exposition), il serait possible de déterminer des cartographies à haute résolution de pesticides sur l'ensemble de la France en utilisant des approches de descente d'échelle combinées à des résultats de modèles de dispersion à l'échelle locale.

Une telle méthode permettrait à terme de fournir des cartographies de concentrations de pesticides pour les études épidémiologiques.

Mots clés : pesticide ; exposition ; pollution de l'air ; modélisation.

Abstract.

Air quality modelling: towards the assessment of atmospheric exposure to pesticides

Determining atmospheric exposure is critical to assess the health impact of pesticides, but few tools currently exist to map pesticide concentrations at the national scale. One possible method would be to use air quality models such as the CHIMERE model to simulate pesticide atmospheric concentrations. This type of model represents the physicochemical processes occurring in the atmosphere to calculate concentrations of various chemicals. A method has recently been developed in the CHIMERE model to simulate pesticide concentrations by incorporating a volatilization flux model to calculate emissions to air from treated surfaces.

Using such a method would require knowledge of the spatial and temporal distribution of pesticide applications. While data from the Banque nationale des ventes de produits phytopharmaceutiques par les distributeurs agréés spatialisée (BNVD-S) provides a good indication of the spatial distribution of applications, little information exists on treatment schedules.

Although such models operate at resolutions of a few kilometers (which would not allow a reliable determination of exposure), it would be possible to determine high-resolution

Pour citer cet article : Couvidat F, Bedos C, Quivet E. Modélisation de la qualité de l'air : vers l'évaluation de l'exposition atmosphérique aux pesticides. *Environ Risque Santé* 2023 ; 22 (S1) : 58-63. doi : 10.1684/ers.2023.1760

doi: 10.1684/ers.2023.1760

pesticide maps over the whole France using downscaling approaches combined with results from local-scale dispersion models. Such a method would eventually provide maps of pesticide concentrations for epidemiological studies.

Key words: pesticide; exposure; air pollution; modeling.

Les différentes campagnes de mesures menées depuis plus de 20 ans par les associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA), et plus récemment lors de la Campagne nationale exploratoire des pesticides (CNEP [1]) menée par l'Agence nationale de sécurité sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail (Anses), l'Institut national de l'environnement industriel et des risques (Ineris) et le réseau des AASQA [2], montrent que de nombreuses substances actives entrant dans la composition des produits phytopharmaceutiques (PPP) sont présentes dans l'atmosphère. Cette contamination atmosphérique est susceptible de contribuer aux enjeux de santé publique en lien avec l'exposition aux pesticides. Il est donc nécessaire de développer des approches de cartographies afin de servir de bases à des approches épidémiologiques qui permettraient de relier les effets sanitaires aux concentrations de pesticides dans l'air. La tâche est complexe du fait des incertitudes sur le devenir des pesticides dans l'atmosphère et de la difficulté à déterminer les émissions de pesticides vers l'atmosphère.

Les PPP peuvent être émis dans l'atmosphère via deux mécanismes principaux. Le premier mécanisme appelé « dérive » est le transport des PPP pulvérisés sous forme de gouttelettes en dehors de la zone traitée sous l'action du vent (les PPP appliqués n'atteignant donc pas en totalité la cible souhaitée). Du fait de leurs tailles (majoritairement au-dessus de 10 µm), ces gouttelettes de dérive ont généralement une durée de vie dans l'atmosphère limitant leur dispersion à quelques dizaines (voire centaines) de mètres autour des parcelles traitées. Ce phénomène dépend du matériel de pulvérisation utilisé, lui-même dépendant du type de cultures et des conditions météorologiques. Le second mécanisme est la volatilisation des pesticides depuis le sol ou la plante sous forme de composés gazeux. Comme les pesticides peuvent persister dans le sol ou sur la plante pendant plusieurs jours (voire décennies pour certaines substances persistantes), ce mécanisme peut conduire à l'émission de pesticides sur une durée plus longue que celle de la dérive. Ce processus dépend notamment des propriétés physico-chimiques du composé. D'autres mécanismes (comme la remise en suspension de particules de sols) peuvent être également une source de pesticides dans l'atmosphère.

L'utilisation de modèles de qualité de l'air (modèles de chimie-transport) est l'une des approches possibles de cartographies. Ce sont des modèles déterministes qui visent à calculer, à partir de la prédiction de l'émis-

sion des composés, leurs concentrations atmosphériques en résolvant les équations régissant le transport dans l'atmosphère des substances, leur évolution chimique dans l'atmosphère ainsi que leur dépôt sur les surfaces. Ces modèles ont été développés dans les années 1970-1980 pour comprendre le cycle de formation de l'ozone ou étudier les processus d'acidification (via le dépôt d'acides, notamment l'acide sulfurique) et d'eutrophisation (via le dépôt de substances azotées) des écosystèmes. Ces modèles ont depuis continué à se développer pour intégrer l'ensemble des nouvelles connaissances sur la qualité de l'air avec, notamment, la modélisation de la formation des particules fines. L'utilisation de ces modèles a rendu également possible la prévision [3] et l'évaluation de politiques publiques d'amélioration de la qualité de l'air [4]. De plus, les cartographies basées sur les modèles permettent de calculer les effets sanitaires de la pollution. Ainsi, l'Agence européenne pour l'environnement (AEE) a estimé, sur la base de cartographies combinant résultats de modèles et observations, que 307 000 décès prématurés peuvent être attribués à l'exposition aux particules fines sur l'année 2019 à l'échelle européenne [5].

Une préoccupation actuelle porte sur l'exposition atmosphérique aux PPP des riverains de parcelles traitées via la dérive de pulvérisation ou la dispersion de la fraction volatilisée, ce qui a mené au développement d'approches de modélisation [6].

Quelques études se sont focalisées sur la modélisation du transport à moyenne et longue distances des pesticides. Le modèle CanMETOP (*Canadian Model for Environmental Transport of Organochlorine Pesticides*) et le modèle MEDIA (*Multicompartment Environmental Diagnosis and Assessment*) ont été utilisés pour fournir des preuves du transport intercontinental du lindane (CAS n° 58-89-9) [7]. Un système de modélisation basé sur les modèles de transport chimique CMAQ (*Community Multiscale Air Quality*) et PEM (*Pesticide Emission Model*) a été appliqué au transport du toxaphène (CAS n° 8001-35-2) depuis les sols fortement contaminés du sud des États-Unis et du Mexique vers l'océan Atlantique, le golfe du Mexique et les Grands Lacs [8]. Dans tous ces cas, un modèle de qualité de l'air a été couplé à un modèle d'émissions de pesticides. Ces études se sont focalisées sur un nombre restreint de substances avec des temps de vie importants dans l'atmosphère (de l'ordre de 20 jours pour le lindane) et persistants dans les sols (demi-vie de l'ordre

de plusieurs années pour le lindane) et dont l'usage n'est actuellement plus utilisé.

Couvidat *et al.* [9] ont proposé une méthode pour simuler les concentrations de pesticides en cours d'utilisation avec le modèle de qualité de l'air CHIMERE, méthode présentée ci-après, avec une illustration de résultats et une discussion sur les limites actuelles de l'approche.

Méthodologie

La figure 1 illustre la méthode utilisée pour simuler les concentrations atmosphériques de pesticides avec CHIMERE. Cette méthode est basée sur :

- la distribution spatio-temporelle des applications pour connaître les zones et périodes où la substance est appliquée ;
- la répartition de la pulvérisation au sein de la parcelle traitée entre le sol, la plante et l'atmosphère par pertes par dérive selon le type d'application et de matériel ;
- la volatilisation depuis le couvert végétal et le sol sur la base des propriétés du sol et des propriétés physico-chimiques de la substance ;

- la représentation des processus physico-chimiques influençant les concentrations atmosphériques de pesticides comme la dégradation chimique par les oxydants de l'atmosphère, le partage gaz/particule (les pesticides émis en phase gazeuse pouvant se condenser sur les particules atmosphériques existantes, limitant alors leur dégradation photochimique ainsi que leur dépôt, ce qui peut favoriser un transport à plus longue distance) et les dépôts sec et humide des pesticides dans les phases gazeuse et particulaire. Il est à noter que les vitesses de dépôt sont généralement plus fortes en phase gazeuse qu'en phase particulaire pour les particules secondaires submicroniques. La condensation de pesticides sur les particules peut non seulement empêcher sa dégradation photochimique mais aussi limiter le dépôt atmosphérique.

Étant donné la faible durée de vie des gouttelettes de dérive dans l'atmosphère, leur concentration n'est pas calculée avec le modèle. Il faudrait en effet des résolutions de quelques mètres pour pouvoir représenter de manière adéquate l'exposition aux gouttelettes de dérive.

La détermination de la distribution spatio-temporelle des applications ainsi que la simulation de la volatilisation sont les principales difficultés de la mise en place de

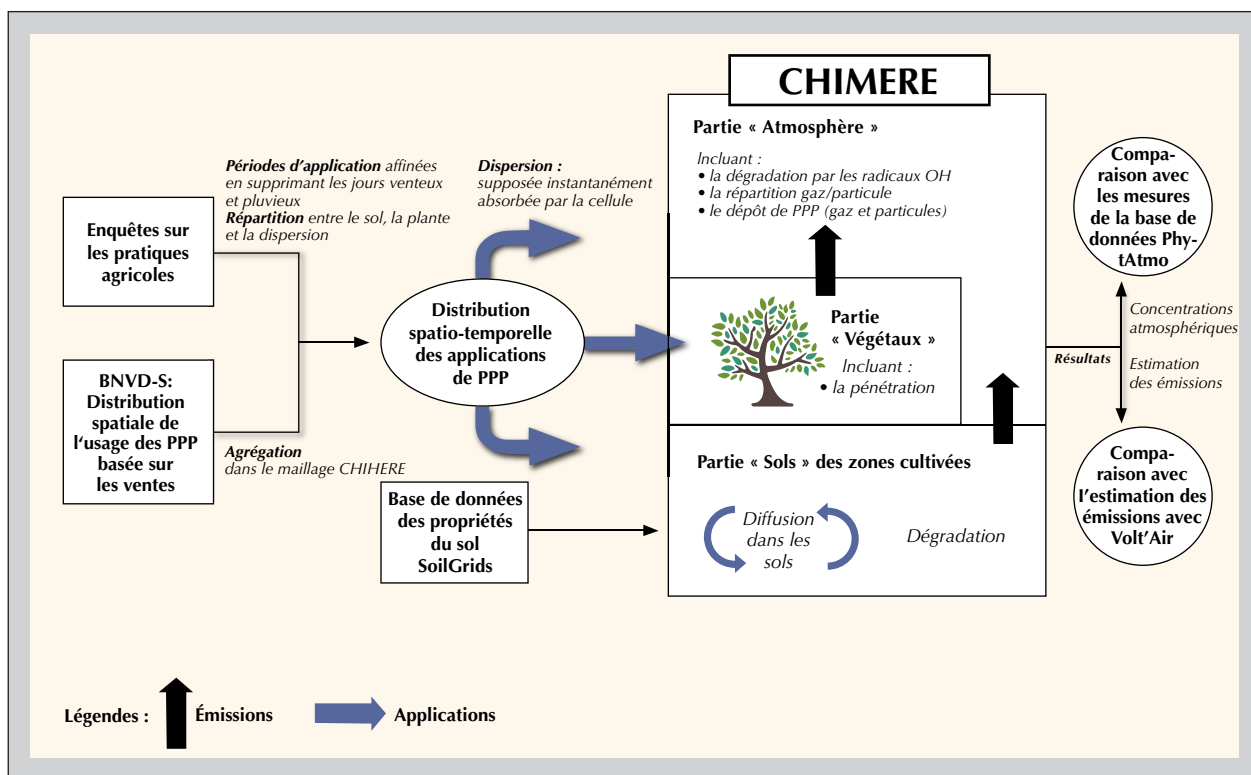


Figure 1. Schéma de l'approche utilisée par Couvidat *et al.* [9] pour simuler les concentrations par volatilisation de pesticides.

Figure 1. Diagram of the approach used by Couvidat *et al.* [9] to simulate pesticide volatilization concentrations.

cette approche (d'autres difficultés sont également listées par Couvidat *et al.* [9]).

La distribution spatiale des applications peut être estimée sur la base des données de la Banque nationale des ventes de produits phytopharmaceutiques par les distributeurs agréés spatialisée (BNVD-S) [10] (en supposant qu'il y ait correspondance entre les ventes et les usages de pesticides) (figure 2).

La temporalisation des applications est difficile à estimer de manière précise car aucune base de données centralisées ne répertorie les calendriers de traitements de pesticides sur la France. De fortes approximations sur les calendriers d'usage sont alors nécessaires. Couvidat *et al.* [9] ont choisi d'utiliser des enquêtes sur dires d'experts pour obtenir les périodes d'application des substances actives étudiées sur la région PACA et d'appliquer ces informations à l'échelle nationale.

Ces informations ont été retraitées pour retirer les jours pour lesquels le vent était supérieur à 19 km/h (interdiction d'utiliser des PPP) et les jours de pluie.

Le calcul des flux de volatilisation peut s'avérer aussi très incertain notamment du fait des incertitudes sur les paramètres physico-chimiques des substances, d'une méconnaissance sur les processus qui ont lieu sur les feuilles (pénétration, lessivage par la pluie, dégradation) et de la difficulté d'évaluer les résultats des modèles sur plusieurs semaines après l'application par manque de données à cette échelle. De tels jeux de données pourraient permettre d'ajuster certains paramètres. Une comparaison de flux d'émissions calculés par CHIMERE avec des mesures de flux a permis de montrer que CHIMERE est capable de reproduire le flux d'émissions de S-méto-

lachlore (CAS n° 87392-12-9) sur 3 jours avec un biais de 1 % sans calibration (Couvidat *et al.* [9], exemple suivant).

Résultats de simulations CHIMERE

Couvidat *et al.* [9] ont appliqué CHIMERE à la simulation des concentrations de deux substances actives :

- le S-métolachlore, un herbicide utilisé notamment dans la culture du maïs, représentatif de pesticides émis par volatilisation depuis le sol ;
- le folpel (CAS n° 133-07-3), un fongicide utilisé dans la culture des vignes, représentatif d'une volatilisation depuis le couvert végétal.

La BNVD-S étant seulement disponible pour l'année 2014 au moment de l'étude, les concentrations de ces pesticides ont été simulées uniquement pour cette année-là. Les résultats de simulation (à une résolution de $0,1^\circ \times 0,1^\circ$, soit autour de 10 km x 10 km) ont été comparés aux mesures de la base de données Phyt'Atmo [2].

Le modèle a réussi à reproduire la distribution spatiale des concentrations de S-métolachlore (corrélation spatiale sur la France de 0,79) avec un biais allant de -50 à 50 % pour la plupart des stations de mesures pendant la période d'application. Bien que le modèle ait réussi à calculer les concentrations de folpel avec le bon ordre de grandeur, la corrélation avec les mesures s'est avérée faible, ce qui pourrait être dû à un manque de précision dans la temporalisation des applications. Cette étude a mis en évidence que la distribution spatio-temporelle des applications est la première source d'incertitudes dans la modélisation des pesticides. Un exemple de résultats obtenus est présenté dans la figure 3.

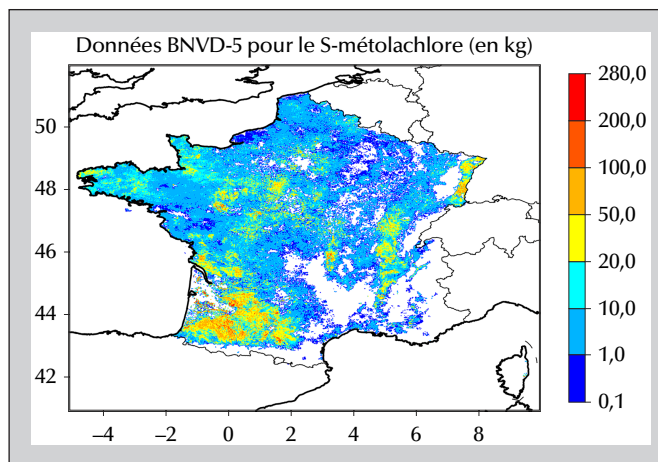


Figure 2. Données de vente de pesticides spatialisées (utilisées comme données d'usage de pesticides) sur la France agrégées à une résolution de $0,01^\circ \times 0,01^\circ$. D'après Couvidat *et al.* [9].

Figure 2. Spatialized pesticide sales data (used as pesticide use data) for France aggregated at a resolution of $0.01^\circ \times 0.01^\circ$. Adapted from Couvidat *et al.* [9].

Vers la détermination des concentrations à haute résolution

Une difficulté dans l'application d'un modèle de qualité de l'air pour la détermination de l'exposition aux pesticides est la faible résolution spatiale des simulations ne permettant pas de représenter la forte hétérogénéité des concentrations. Une résolution de quelques kilomètres pourrait s'avérer insuffisante pour déterminer de manière fiable l'exposition.

Une possibilité est d'utiliser des méthodes de descente d'échelle pour raffiner la résolution spatiale des résultats et contourner les limitations dues au temps de calcul élevé du modèle. Une telle méthode permettrait de calculer des concentrations de pesticides à une résolution de $0,004^\circ$ (résolution autour de 400 m) avec un temps de calcul raisonnable (figure 4).

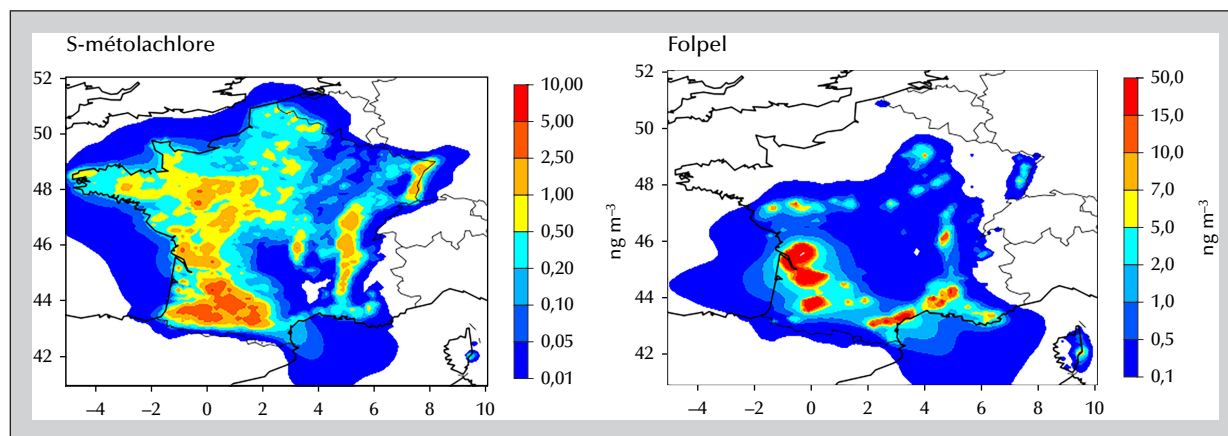


Figure 3. Concentrations atmosphériques en ng/m^3 simulées par CHIMERE à une résolution de $0,1^\circ$ durant les périodes d'application de S-métolachlore (à gauche, du 15 avril au 15 mai 2014) et de folpel (à droite du 1^{er} mai au 1^{er} juillet 2014). Source : Couvidat et al. [9].

Figure 3. Atmospheric concentrations in ng/m^3 simulated by CHIMERE at 0.1° resolution during application periods for S-metolachlor (left, April 15 to May 15, 2014) and folpel (right, May 1 to July 1, 2014). Source: Couvidat et al. [9].

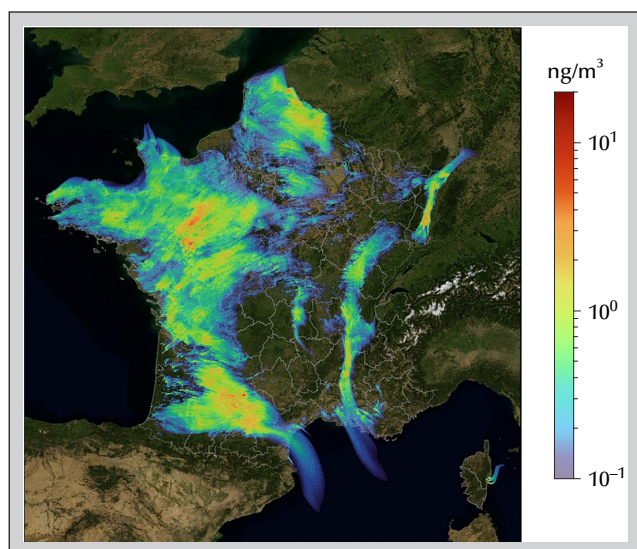


Figure 4. Exemple de concentrations atmosphériques simulées par descente d'échelle pour S-métolachlore à $0,004^\circ$ de résolution avec la méthode de Couvidat et al. [16].

Figure 4. Example of atmospheric concentrations simulated by downscaling for S-metolachlor at 0.004° resolution with the method of Couvidat et al. [16].

Une autre difficulté consiste à évaluer l'exposition aux gouttelettes de dérive qui nécessiterait de réaliser des simulations à des résolutions de quelques mètres. Atteindre une telle résolution reste extrêmement difficile avec un modèle de qualité de l'air même avec une approche de descente d'échelle. Cependant, les résultats de CHIMERE pourraient être combinés à des résultats de modèles de dispersion à l'échelle locale (de l'ordre de

quelques dizaines de mètres) comme des modèles gaussien [11] ou lagrangien [12], voire des modèles CFD (Computational Fluid Dynamics) [13]. L'utilisation de telles approches nécessiterait de représenter les propriétés des gouttelettes de dérive depuis leurs émissions (distribution en taille des gouttelettes, conditions d'émissions) en fonction des types de matériels de pulvérisation pour différents types de cultures.

Conclusions et discussions

L'utilisation de modèle de qualité de l'air permettrait à terme de déterminer l'exposition de l'ensemble de la population aux concentrations de pesticides en recourant à des approches de descente d'échelle combinées à des modèles de dispersion à l'échelle locale pour prendre en compte l'exposition aux gouttelettes de dérive. De tels résultats serviraient de base aux études épidémiologiques pour évaluer l'exposition atmosphérique aux pesticides puis leur potentiel impact sanitaire. L'une des principales limitations à cette approche de modélisation est la connaissance des calendriers d'application de pesticides et de matériel associé.

L'utilisation de modèles de qualité de l'air peut permettre également de prendre en compte les produits de transformation des pesticides. Il est en effet théoriquement possible qu'en s'oxydant dans l'atmosphère, certains des composés formés soient plus toxiques que la molécule-mère. Ce processus est d'autant plus important à prendre en compte pour les molécules-mères qui ont un faible temps de vie dans l'atmosphère. Par exemple, le S-métolachlore a une durée de vie dans l'atmosphère

de l'ordre de quelques heures. Même si cette molécule est dégradée rapidement, ses produits de transformation pourraient présenter des concentrations importantes qu'il convient de prendre en compte dans le calcul de l'impact sanitaire des pesticides. Les modèles pourraient prendre en compte la formation des produits de transformation en intégrant des mécanismes théoriques [14] et des

mécanismes chimiques sur la base de résultats obtenus en chambre expérimentale [15] et en laboratoire. ■

Remerciements et autres mentions

Liens d'intérêts : les auteurs déclarent ne pas avoir de lien d'intérêt.

Références

1. Agence nationale de sécurité sanitaire, de l'alimentation et de l'environnement. *Campagne nationale exploratoire des pesticides dans l'air ambiant Premières interprétations sanitaires (Rapport d'appui scientifique et technique No. Autosaisine n° 2020-SA-0030)*. Anses, 2020.
2. AtmoFrance. *Base de donnée de surveillance de pesticides dans l'air par les AASQA à partir de 2002*. AtmoFrance, 2019.
3. Peuch VH, Engelen R, Rixen M, et al. The copernicus atmosphere monitoring service: from research to operations. *Bull Am Meteorol Soc* 2022 ; 103 : E2650-68.
4. Schucht S, Colette A, Rao S, et al. Moving towards ambitious climate policies: monetised health benefits from improved air quality could offset mitigation costs in Europe. *Environ Sci Policy* 2015 ; 50 : 252-69.
5. European Environment Agency. *Air quality in Europe 2021*. Report No. 15/2021. ISBN 978-92-9480-403-7 - ISSN 1977-8449.
6. Figueiredo DM, Vermeulen RCH, Jacobs C, et al. OBOMod - Integrated modelling framework for residents' exposure to pesticides. *Sci Total Environ* 2022 ; 825 : 153798.
7. Zhang L, Ma J, Venkatesh S, et al. Modeling evidence of episodic intercontinental long-range transport of lindane. *Environ Sci Technol* 2008 ; 42 : 8791-7.
8. Li R, Scholtz MT, Yang F, et al. A multimedia fate and chemical transport modeling system for pesticides: II. Model evaluation. *Environ Res Lett* 2011 ; 6 : 034030.
9. Couvidat F, Bedos C, Gagnaire N, et al. Simulating the impact of volatilization on atmospheric concentrations of pesticides with the 3D chemistry-transport model CHIMERE: method development and application to S-metolachlor and folpet. *J Hazard Mater* 2022 ; 424 : 127497.
10. Martin P, Ramalanjaona L, Truche C, et al. Modelling the spatialisation of pesticide sales to monitor environmental policies in France. *J Clean Prod* 2023 ; 403 : 136880.
11. Caudeville J, Regrain C, Tognet F, et al. Characterizing environmental geographic inequalities using an integrated exposure assessment. *Environ Health* 2021 ; 20 : 58.
12. Djouhri, M. *Modélisation des processus de distribution et de dérive des pesticides lors de la pulvérisation et de leur contribution à l'exposition des passants : illustration en viticulture*. (Manuscrit de thèse). Montpellier (France) : Université de Montpellier. Ecole doctorale GAIA, 2022.
13. Hong S, Park J, Jeong H, et al. Fluid dynamic approaches for prediction of spray drift from ground pesticide applications: a review. *Agronomy* 2021 ; 11 : 1182.
14. Zhou Q, Sun X, Gao R, et al. Mechanism study on OH-initiated atmospheric degradation of the organophosphorus pesticide chlorpyrifos. *J Mol Struct THEOCHEM* 2010 ; 952 : 8-15.
15. Borrás E, Tortajada-Genaro LA, Ródenas M, et al. Gas-phase and particulate products from the atmospheric degradation of the organothiophosphorus insecticide chlorpyrifos-methyl. *Chemosphere* 2015 ; 138 : 888-94.
16. Couvidat, F, Bedos C, Martin P, Poméon T, Quivet E. An online downscaling method to simulate high resolution atmospheric concentrations of pesticides with the 3D chemistry-transport model CHIMERE: application and evaluation. *Atmos Environ* 2023 ; 314.