

Identification des phénomènes prépondérants de transferts des métaux entre eaux de pluie et toitures végétalisées

Identification of key phenomena of metal transfers between rainwater and green roofs

Julie Schwager ^{1,4}, Véronique Ruban ², Jean Louis Morel ³, Rémy Claverie ^{1,4}, Amandine Irlès ¹, Jérémy Thiriat ¹

¹ CETE de l'Est – LRPC de Nancy

² IFSTTAR, Division Eau et Environnement LSE

³ ENSAIA-INRA / Université de Lorraine

⁴ GEMCEA

Julie.schwager@developpement-durable.gouv.fr

RÉSUMÉ

Dans un contexte de gestion à l'amont et de récupération des eaux de pluie, l'utilisation de toitures végétalisées pour obtenir une eau de meilleure qualité a fréquemment été envisagée. Cependant, les résultats mitigés obtenus à ce jour soulignent la nécessité de dimensionner ces structures en vue de cet objectif de dépollution, en choisissant notamment des matériaux rejetant peu de polluants et retenant une grande proportion des substances présentes dans les eaux de pluie. Une meilleure connaissance de ces matériaux et des mécanismes à l'œuvre dans ces structures est donc nécessaire pour une sélection pertinente des substrats et drainages utilisés. Cette étude vise à comparer les impacts sur les teneurs en éléments traces métalliques (ETM) (Cd, Cr, Cu, As, Ni, B, Pb, Zn) dans les eaux de deux drainages et trois substrats utilisés sur des toitures végétalisées grandeur nature. Ces quatre structures montrent des capacités épuratoires sur les flux d'ETM bien distinctes. Afin de mieux comprendre les mécanismes en jeu, l'évolution de la répartition entre phases dissoute et particulaire a été étudiée, permettant notamment d'identifier une forte capacité de rétention de la phase particulaire pour la majorité des ETM. En vue d'établir des critères de sélection de matériaux pertinents pour la dépollution des eaux pluviales, des comparaisons entre teneurs initiales, résultats d'extractions au CaCl₂ et rejets potentiels ont été effectuées.

ABSTRACT

With the development of upstream stormwater management and rainwater reuse, it has often been considered to use green roofs to improve water quality. However, the mixed results obtained up to now show that green roof structures must be designed to reach this goal, by choosing materials which release few pollutants and are able to retain metals present in rainwater. To select pertinent substrate and drainage layers, it is first necessary to better understand their behaviours. This study aims to compare the impacts on metal content from green roofs with two drainages and three substrates. These four structures show different metal purification rates. To better understand these mechanisms, the evolution of the distribution between dissolved and particular phases has been studied and it has shown a strong ability to retain the particular phase for the majority of metals. To establish selection criteria for materials suitable for rainwater purification, initial metal contents in material, results of CaCl₂ extractions and potential releases have been compared.

MOTS CLES

Eaux, Impact des matériaux, Métaux, Toitures végétalisées

1 INTRODUCTION

1.1 Enjeux de la qualité des eaux en sortie de toitures

Il est désormais avéré que les dépôts atmosphériques secs et humides ne sont pas exempts de polluants (Dembélé, 2010) et qu'ils représentent une part non négligeable de l'apport de polluants présents dans les rejets urbains de temps de pluie (Barraud *et al.*, 2009), identifiés comme une source importante de substances prioritaires définies par la Directive Cadre sur l'Eau 2000/60 CE pour le milieu aquatique (Lamprea et Ruban, 2008).

A l'amont du parcours de l'eau dans la ville, la toiture et la qualité de ses eaux en sortie représentent un enjeu particulier dans un contexte de gestion à la source des eaux pluviales (Chocat *et al.*, 2003 ; US EPA, 2005), où l'infiltration est souvent préconisée et la protection des nappes d'eau souterraines contre l'introduction de polluants reste une priorité. En outre, avec le développement de la récupération et utilisation des eaux de pluie, son impact sur la qualité pourra devenir l'un des critères de choix de la technique ou du matériau utilisé pour la réalisation de la couverture des bâtiments nouveaux ou rénovés.

1.2 Intérêts des toitures végétalisées

La végétalisation de toiture, marché en développement en France qui concerne aujourd'hui 5% des nouvelles toitures plates chaque année (Lassalle, 2012), pourrait répondre à ces exigences. Cette technique de construction pourrait être à même de retenir une partie des polluants présents dans les dépôts atmosphériques du fait de la présence d'un « sol » et de végétaux, éléments fréquemment utilisés pour la dépollution des eaux (Sansalone *et al.*, 1995 ; Greenway *et al.*, 1996 ; Raskin *et al.*, 1997). Cependant, outre le phénomène de rétention des polluants apportés via les dépôts atmosphériques par les végétaux, le substrat ou une couche sous-jacente, Köhler *et al.* (2003) ont identifié un second processus qui impacte également la qualité des eaux : le lessivage par les eaux de pluie de polluants initialement présents dans les matériaux constitutifs de la toiture. Ces deux phénomènes se produisant généralement simultanément, la capacité d'une toiture végétalisée à épurer des eaux de pluie nécessite une prédominance du premier processus sur le deuxième.

Si les résultats des premières études étaient positifs (Steusloff, 1998) et que cette technique a pu être une technique efficace de limitation des apports de nutriments à la Spree, rivière berlinoise, (Köhler *et al.*, 2003), l'impact des toitures végétalisées sur la qualité des eaux pluviales s'avère globalement mitigé (Czemiel Berndtsson, 2010). De même sur les toitures végétalisées étudiées dans cet article, les premiers résultats obtenus montrent également un impact mitigé sur les concentrations en ETM avec des valeurs majoritairement plus élevées pour As, B, Ni et Zn notamment. Cependant, cette unité ne prend pas en compte les capacités rétentrices importantes de ces structures (Mentens *et al.*, 2006). Ainsi, si l'on considère les flux de polluants (mg.m^{-2} en fonction du temps) plutôt que les concentrations, ces mêmes toitures diminuent systématiquement et sensiblement les flux de polluants en sortie par rapport à l'entrée pour Cd, Cr, Cu, Pb, Sb, et Zn (Schwager *et al.*, 2012). D'ailleurs, les articles exprimant leurs apports de métaux à la toiture végétalisée et sorties du système en flux (Köhler *et al.*, 2003 ; Czemiel Berndtsson *et al.*, 2005) ont des résultats plus fréquemment positifs que ceux qui les expriment en concentration (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2006 ; 2009 ; Bates *et al.* 2007 ; Vander Linden, 2008). Les toitures végétalisées peuvent donc retenir une partie des polluants apportés par les dépôts atmosphériques mais cette fonction n'est pas optimale à ce jour.

1.3 Construire une toiture végétalisée aux capacités épuratoires optimisées

Tout comme l'efficacité des zones humides construites en vue de la dépollution des eaux est plus importante que celle des zones humides naturelles (Horne, 2000; Mays *et al.*, 2001), des toitures végétalisées dimensionnées pour améliorer la qualité des eaux pourraient être plus efficaces que les structures disponibles aujourd'hui sur le marché (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2009) et dimensionnées essentiellement selon des critères pratiques, économiques et esthétiques.

L'objectif de ce projet est donc d'établir des préconisations en vue de la réalisation de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées vis-à-vis des éléments traces métalliques (ETM). Cela passera notamment par une meilleure compréhension du cycle de transfert des polluants dans la structure de végétalisation de toiture, encore peu étudié à ce jour (Vander Linden, 2008) afin d'établir quel matériau retient et rejette quels polluants. Les différentes toitures étudiées par la suite montrent en effet une grande variété de capacité épuratoire selon les substances, montrant bien l'impact

spécifique de chaque matériau utilisé. Ceci montre également qu'il est possible de construire une toiture à la capacité épuratoire optimisée si les phénomènes entrant en jeu pour la rétention de chaque polluant peuvent être identifiés et qu'un matériau couplant l'ensemble de ces critères est élaboré.

En outre, une meilleure connaissance des caractéristiques initiales des matériaux utilisés influençant le comportement épuratoire sur site réel et à long terme des matériaux utilisés est également nécessaire afin de pouvoir établir des critères de sélection sans avoir à réaliser des sites expérimentaux grandeur nature au préalable.

2 MATERIEL ET METHODES

2.1 Site expérimental

Neuf toitures végétalisées, recouvrant plus de 600m², et une toiture témoin en gravier ont été construites entre octobre 2010 et avril 2011 sur des toits plats du CETE de l'Est – LRPC de Nancy. Différentes associations de végétaux (sedums, naturellement présents dans les Vosges et sur les plateaux calcaires lorrains) ont été utilisées ainsi que trois types de substrats et deux drainages. Un drainage classique minéral, l'argile expansée (A.E.), a été utilisé ainsi qu'une structure synthétique stockante (S.S.S.) en polypropylène. Le substrat « extensif » est un mélange classique constitué essentiellement de pouzzolane, de tourbe blonde et d'écorce de pin. Le substrat « fibre de coco » est constitué de la même fraction minérale que l'« extensif » et de fibres de coco pour la fraction minérale. Enfin, le substrat « semi-intensif », sélectionné pour l'installation des végétaux lorrains, contient de multiples éléments dont de la brique recyclée, de la pouzzolane, de l'argile expansée, des scories de charbons et du compost. Afin d'évaluer l'impact des drainages et substrats sur la qualité des eaux, les structures utilisant ces différents matériaux avec des sedums sont étudiées par la suite (cf. tableau 1). Les teneurs totales en ETM de ces différents matériaux sont présentées dans le tableau 2.

Tableau 1 : Noms des parcelles et associations de matériaux correspondantes

<i>Nom de la parcelle</i>	<i>Drainage</i>	<i>Substrat</i>	<i>Végétation</i>
Stockage 40	Structure synthétique de stockage de 40mm de hauteur	Extensif	Sedums
Fibre coco	Argile expansée	Fibre de coco	Sedums
Semi-intensive	Argile expansée	Semi-intensif	Sedums
Extensive	Argile expansée	Extensif	Sedums
Gravier			

Tableau 2 : Teneurs totales en ETM dans l'argile expansée et les trois substrats

<i>ETM</i>	<i>Argile expansée (mg/kg de matière sèche)</i>	<i>Extensif (mg/kg de matière sèche)</i>	<i>Fibre de coco (mg/kg de matière sèche)</i>	<i>Semi-intensif (mg/kg de matière sèche)</i>
As	16,7	2,04	1,78	18,8
B	13	<1	1,27	12,2
Cr	12,6	38,9	40,4	155
Cu	24,5	26,8	28,2	48
Ni	24,3	32,7	33,3	168
Pb	<4,01	<4,01	<4,01	20,6
Zn	33,5	56	60	106
Cd	0,019	0,0602	0,288	0,172
Hg	<0,02	<0,02	<0,02	0,036

2.2 Instrumentation

Les dépôts atmosphériques de temps secs et de temps de pluie sont récupérés à l'aide d'un système composé d'un capteur de pluie permettant l'ouverture alternative de deux volets roulants placés au-dessus de bacs permettant ainsi de récupérer dans l'un d'eux les dépôts atmosphériques de temps secs (DATS) et dans l'autre les dépôts atmosphériques de temps de pluie (DATP), selon le système développé par Dembélé (2010). Les quantités de pluies mensuelles sont mesurées à partir des données pluviométriques horaires fournies par Météo France et établies grâce à un dispositif de mesure proche du site expérimental. Les volumes d'eaux en sortie de toitures végétalisées sont mesurés à l'aide de débitmètre à auget placés sur les gouttières à environ un mètre du sol et permettant de récupérer environ 1% du flux écoulé dans des bidons en PEHD.

2.3 Prélèvements et analyses des eaux en entrée et sortie de toitures

Pour récupérer les DATS, une fine lame d'eau distillée est introduite dans le bac afin d'éviter la remise en suspension des particules une fois déposées dans le bac. Ces dépôts sont récupérés une fois par mois. Dans un premier temps, les échantillons font l'objet d'une décantation. Le surnageant fait ensuite l'objet d'une centrifugation à 4000 tour/min pendant 40 min. Les dépôts issus de la centrifugation sont ensuite récupérés puis séchés à l'air ambiant. Enfin, le surnageant est passé à travers un filtre Millipore à 0.45 μm préalablement séché à l'étuve à 105°C et pesé, puis les filtres sont séchés à l'air ambiant. Le passage de la phase particulaire des DATS à la phase dissoute de l'eau distillée étant possible, l'eau est également conservée pour analyse par la suite, avec une acidification à 0,5% par HNO_3 Ultrapur.

Les protocoles de préparation pour les DATP et les eaux en sortie de toitures végétalisées sont les mêmes. Les échantillons sont prélevés plusieurs fois par mois suite à des événements pluvieux ayant engendré une quantité d'eau significative dans les différents systèmes de collecte (au moins 100ml pour les DATP et 20l pour les eaux en sortie de toitures). Puis chaque échantillon est filtré à 0,45 μm . Le filtre est ensuite séché à l'air ambiant et la phase dissoute acidifiée à 0,5% par HNO_3 ultrapur puis stockée.

Les phases particulières des DATP et DATS font ensuite l'objet d'attaques acides à l' HNO_3 et H_2O_2 pour mise en solution des ETM. Enfin l'ensemble des échantillons est ensuite analysé par ICP MS.

Les résultats présentés par la suite correspondent aux prélèvements réalisés entre mai et décembre 2011.

2.4 Grandeurs étudiées

Comme évoqué précédemment, les apports d'ETM à la toiture végétalisée et les rejets en sortie peuvent être exprimés de deux façons différentes : en termes de charge surfacique annuelle de polluants, exprimée en $\text{g}/\text{m}^2/\text{an}$, et en concentration de polluants, exprimée en mg/l . Ces deux pratiques sont complémentaires. La seconde a notamment pour intérêt de pouvoir comparer les eaux en sortie aux réglementations actuelles de qualité des eaux dans le domaine de la santé publique (Arrêté du 11 janvier 2007 relatif aux limites et références de qualité des eaux brutes et des eaux destinées à la consommation humaine) mais également des milieux aquatiques (Arrêté du 25 janvier 2010 relatif aux méthodes et critères d'évaluation de l'état écologique, de l'état chimique et du potentiel écologique des eaux de surface). La première permet quant à elle de prendre en compte la capacité de rétention d'eau de la toiture végétalisée et d'évaluer la quantité de polluants réellement rejetés ou retenus par les matériaux. Ces deux grandeurs sont donc évaluées dans le cadre du suivi de ces toitures expérimentales et utilisées par la suite.

Par ailleurs, la capacité épuratoire des toitures est calculée comme la différence entre l'apport et la sortie rapporté à l'apport, qu'il s'agisse de concentrations ou de flux. Une toiture végétalisée aura donc un effet épuratoire sur un élément si son efficacité épuratoire est supérieure à 0. Si celle-ci est égale à 1, cela signifie que la toiture a retenu 100% de la quantité d'élément apporté par les dépôts atmosphériques. Si celle-ci est inférieure à 0, il y a plus de métaux en sortie qu'en entrée et les matériaux constitutifs de la structure ont donc rejeté ces éléments.

3 RESULTATS ET DISCUSSION

3.1 Comparaisons des capacités épuratoires globales des différents matériaux

3.1.1 Drainage

Les toitures Stockage 40 et Extensif, composées du même substrat et de la même association de végétaux, permettent de comparer l'impact des deux types de drainage utilisés, les plaques synthétiques et l'argile expansée (cf. Figure 1). Pour As et Ni, les deux éléments pour les quels les flux sont supérieurs en sortie par rapport à l'entrée, les rejets sont considérablement plus importants pour l'argile expansée que pour les plaques synthétiques avec notamment une multiplication par près de 70 des flux d'arsenic, passant de 0.2mg/m² en entrée à 12.7mg/m² en sortie de la toiture extensive sur la période de mai à décembre 2011. Les deux toitures végétalisées étudiées ont ensuite un impact positif sur l'ensemble des éléments restants. L'impact de la structure avec drainage synthétique est significativement meilleur pour l'antimoine et le bore. Pour le zinc, la structure avec argile expansée a une très bonne capacité épuratoire (de l'ordre de 0.91), bien supérieure à celle de la parcelle gravier (0.64) et stockage 40 (0.38). Ceci corrobore les résultats obtenus lors d'une caractérisation via des essais en batch des capacités d'adsorption des différents matériaux (Schaal, 2011). La structure synthétique y montre une capacité d'adsorption du zinc très faible par rapport à celle de l'argile expansée. Enfin, les capacités épuratoires des toitures sont élevées (>0.9) et comparables pour les éléments restants : Cd, Cr, Cu et Pb. Lors des essais en laboratoire cités précédemment, l'argile expansée a pourtant montré des capacités de rétentions beaucoup plus importantes que la structure synthétique pour l'adsorption du Cu. Un captage du cuivre important dès le passage dans le substrat, limitant considérablement la quantité de cuivre arrivant dans le drainage, pourrait expliquer ce phénomène.

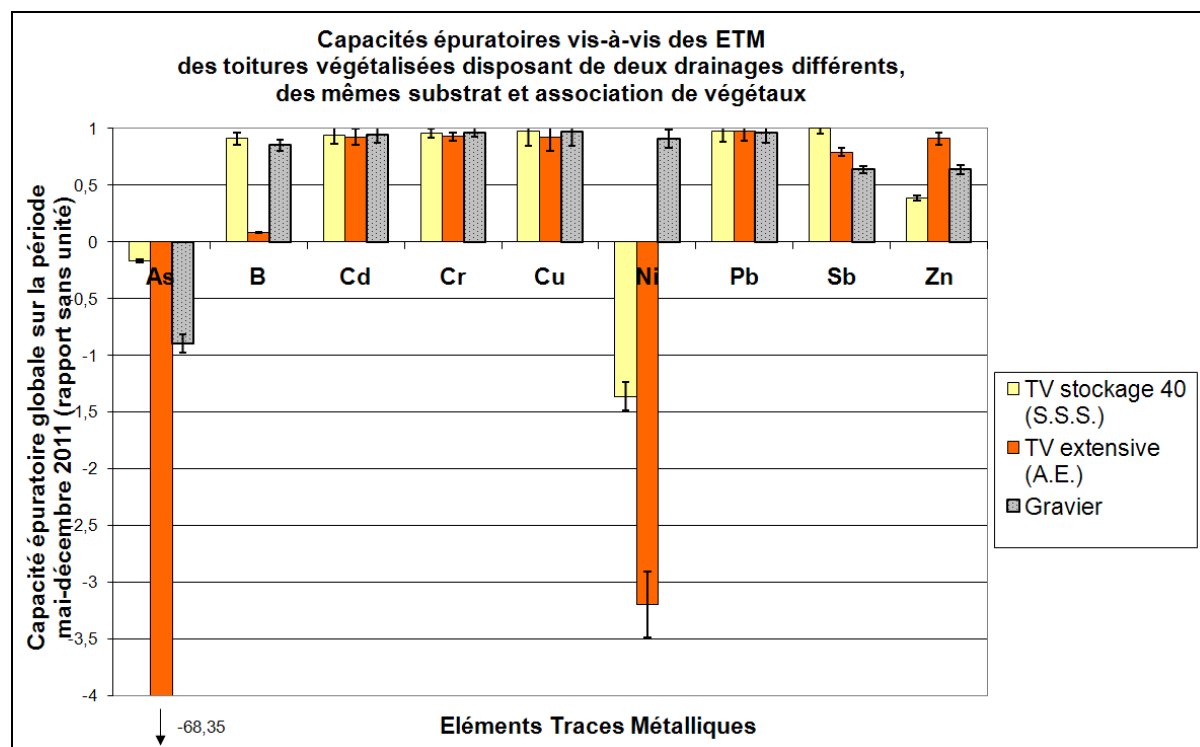


Figure 1 : Impacts des deux drainages sur la capacité épuratoire des toitures végétalisées vis-à-vis des éléments traces métalliques sur la période mai-décembre 2011.

3.1.2 Substrats

Les toitures Extensive, Semi-intensive et Fibre coco permettent de comparer l'impact des différents substrats, puisqu'elles disposent des mêmes associations de végétaux et du même drainage, l'argile expansée (cf. Figure 2). Les flux importants d'arsenic peuvent ainsi s'expliquer par la présence de ce drainage, comme identifié précédemment. On observe tout de même une différence significative entre le substrat Fibre de coco et les deux autres. Si cette différence se confirme par la suite, des investigations complémentaires seront nécessaires. Les eaux issues de ce substrat pourraient avoir

des caractéristiques physico-chimiques différentes des deux autres, qui auraient tendance à limiter la lixiviation de cet élément présent dans l'argile expansée.

Deux autres éléments sont rejetés par ces structures, le bore par la structure Semi-intensive et le nickel par l'Extensive et la Fibre coco. La structure Semi-intensive ayant une capacité épuratoire légèrement positive sur le nickel, cela implique que les rejets de nickel par l'argile expansée sont limités. En effet, on obtient une capacité épuratoire globale de cette structure proche de 0.4. Donc même en faisant l'hypothèse d'une capacité épuratoire optimale de 1 du substrat semi-intensif, l'argile expansée ne peut contribuer à hauteur de plus de 0.6 à l'apport de nickel. Ainsi, les rejets de nickel identifiés sur la figure 1 ne proviennent pas uniquement des systèmes de drainage mais également du substrat utilisé. On peut ensuite faire trois hypothèses pour expliquer la différence qui persiste entre les deux types de drainage. Soit l'argile expansée émet plus de nickel que la structure stockante synthétique, soit celle-ci retient mieux cet élément que l'argile expansée, ou encore les deux phénomènes se combinent.

Par ailleurs, le substrat extensif montre des résultats légèrement supérieurs pour l'épuration du zinc et légèrement inférieurs pour celle de l'antimoine que les deux autres substrats. Il est vrai que les écorces de pin maritime, l'un des matériaux constitutifs du substrat extensif, ont déjà démontré des capacités de rétention du zinc intéressantes (Nehrenheim *et al.*, 2008) alors qu'une affinité moindre de cet élément par rapport à d'autres métaux a été observée pour la fibre de coco non oxydée (Shukla *et al.*, 2006). Ces tendances seront à confirmer dans le cadre de la poursuite des essais de caractérisation en laboratoire. Enfin, les capacités épuratoires sont comparables et élevées pour Cd, Cr, Cu et Pb, tout comme avec les deux couches de drainage.

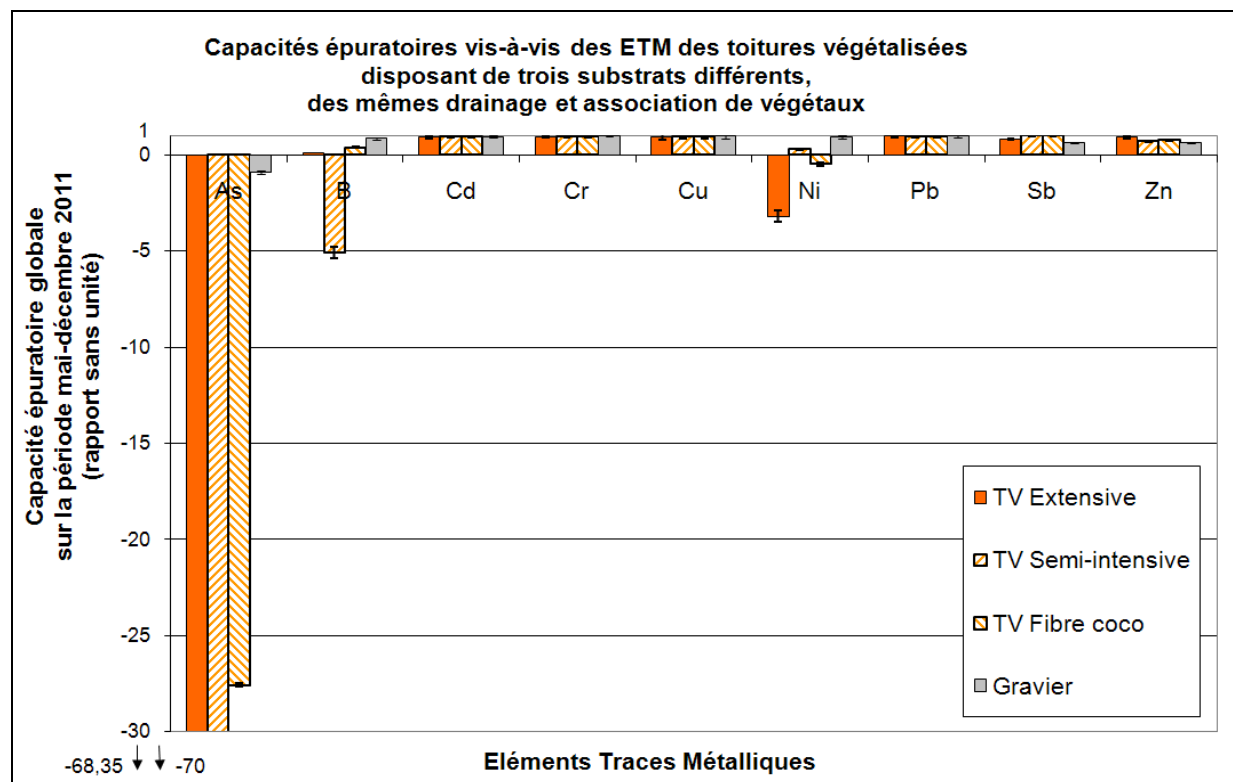


Figure 2 : Impacts des trois substrats sur la capacité épuratoire des toitures végétalisées vis-à-vis des éléments traces métalliques sur la période mai-décembre 2011.

3.2 Impacts des matériaux sur les phases dissoutes et particulaires

Afin de mieux comprendre l'impact de ces matériaux sur les eaux de pluie, il est intéressant d'identifier l'évolution de la répartition des ETM entre phases dissoute et particulaire (cf. figure 3). On observe des comportements similaires pour l'ensemble des parcelles végétalisées. Mis à part pour la toiture semi-intensive pour le plomb, où la proportion de phase particulaire diminue de près de 50%, l'ensemble des toitures montre une augmentation de la proportion de phase dissoute pour les ETM étudiés. Celle-ci est très importante pour l'arsenic et le chrome, celui-ci voit sa proportion de fraction dissoute multipliée par plus de 7 pour la majorité des toitures. Cette augmentation de la proportion de la phase dissoute peut provenir de deux principaux phénomènes : une lixiviation de métaux

initialement présents dans les matériaux constitutifs de la toiture induisant une augmentation de la phase dissoute ou une rétention de la phase particulaire des dépôts atmosphériques par la structure végétalisée.

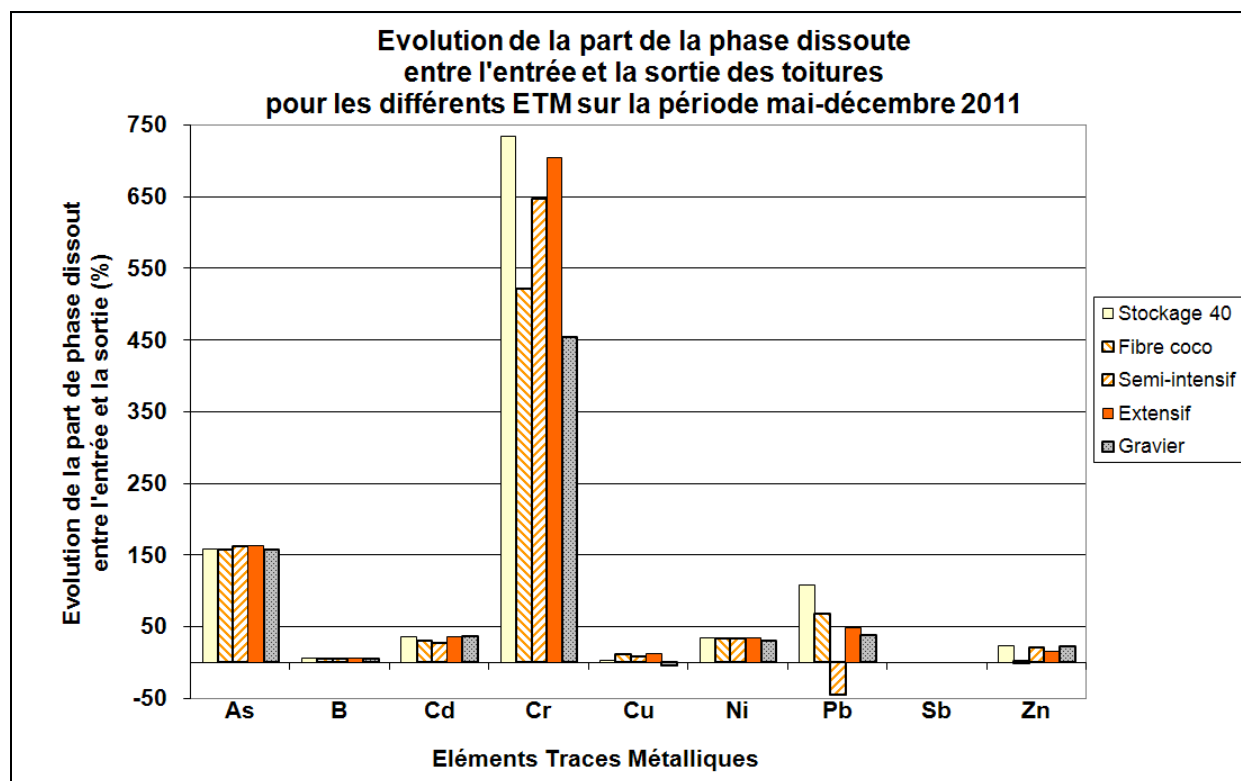


Figure 3 : Impacts des toitures végétalisées sur la répartition phase dissoute / phase particulaire entre l'entrée et la sortie.

Tableau 3 : Différences entre les capacités épuratoires sur les phases dissoutes et particulaires des toitures.

ETM	Phase	Stockage 40	Fibre coco	Semi-intensive	Extensive	Gravier
As	Dissoute	-2,03	-72,62	-185,63	-181,07	-3,90
	Particulaire	0,96	-0,13	0,72	0,72	0,93
B	Dissoute	0,91	0,35	-5,42	0,03	0,84
	Particulaire	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
Cd	Dissoute	0,92	0,97	0,96	0,90	0,93
	Particulaire	0,98	0,99	0,98	0,98	0,99
Cr	Dissoute	0,63	0,69	0,52	0,43	0,82
	Particulaire	0,99	0,97	0,97	0,97	0,98
Cu	Dissoute	0,97	0,96	0,93	0,91	0,97
	Particulaire	0,97	0,98	0,96	0,96	0,97
Ni	Dissoute	-2,18	-0,99	0,05	-4,64	0,88
	Particulaire	0,96	0,92	0,95	0,93	0,99
Pb	Dissoute	0,94	0,95	0,99	0,97	0,95
	Particulaire	0,99	0,98	0,97	0,99	0,97
Sb	Dissoute	sans objet	sans objet	sans objet	sans objet	sans objet
	Particulaire	1,00	1,00	1,00	0,79	0,64
Zn	Dissoute	0,24	0,76	0,63	0,90	0,56
	Particulaire	0,88	0,77	0,91	0,96	0,92

Pour aller plus loin, les capacités épuratoires des différentes structures sur les phases dissoutes et particulaires sont considérées séparément (cf. Tableau 3). On remarque alors que les métaux dont les

flux sont plus importants en sortie qu'en entrée de toitures végétalisées (As pour l'ensemble des structures, B pour la semi-intensive et Ni pour Stockage 40, Fibre coco et Extensive) sont quasiment systématiquement apportés par la phase dissoute. Une autre tendance générale se dégage, la forte capacité épuratoire de l'ensemble des structures sur la phase particulaire de tous les ETM étudiés (mis à part As avec Fibre coco). Tout comme dans les filtres plantés où le mécanisme de dépollution prépondérant est la rétention de la phase particulaire polluée par décantation (Walker *et al.*, 2002), l'impact principal de ces structures serait donc une filtration mécanique des particules arrivant dans le système. Ceci explique donc les fortes capacités épuratoires de ces structures sur les métaux essentiellement en phase particulaire dans les dépôts atmosphériques globaux à savoir Cr, Sb et Pb sur ce site expérimental. Par ailleurs, ces capacités épuratoires sur le particulaire étant comparable pour l'ensemble des structures, les différences observées doivent provenir essentiellement des capacités épuratoires sur le dissous. Différentes tendances sur ce paramètre apparaissent selon les ETM. Toutes les structures ont de fortes capacités épuratoires ($> 0,9$) sur le dissous, équivalentes à celles du particulaire, pour Cu, Cd et Pb. Ceci permet donc à ces structures d'obtenir de bonnes capacités épuratoires globales sur Cu et Cd également, pourtant majoritairement en phase dissoute en entrée de toiture. Pour Zn, les mêmes tendances qu'observées sur la figure 1 et dans le cadre des essais en batch sont visibles, notamment la capacité épuratoire de l'argile expansée plus importante que celle de la structure stockante synthétique. Les capacités épuratoires sur la phase dissoute pour Cr sont moyennes (entre 0,4 et 0,6) et variables selon les structures. Ceci peut provenir d'une capacité d'adsorption du Cr dissous limitée ou d'une lixiviation modérée de Cr disponible dans les matériaux constitutifs de la toiture.

3.3 Effets de la teneur initiale en ETM dans les matériaux sur la qualité en sortie

Les teneurs totales en ETM dans les substrats et l'argile expansée ont été évaluées et certains matériaux affichent des teneurs relativement importantes, les seuils d'anomalie naturelle fortes définis par Baize (2000) étant notamment dépassés pour Cr et Ni dans le substrat semi-intensif. Il est donc intéressant de regarder si ces teneurs totales initialement présentes dans les matériaux (cf. tableau 2) ont un impact sur leur capacité épuratoire.

Aucune corrélation n'apparaît entre teneurs dans les matériaux et capacité épuratoire pour Pb, Cr, Cd Cu, Sb et Ni. Pour ce dernier, la toiture Semi-intensive qui contient de loin le substrat avec la plus forte teneur de Ni (plus de 160mg/kg contre 30mg/kg pour les deux autres substrats), est d'ailleurs le seul des trois toitures végétalisées sur couche drainante argile expansée, à retenir cet élément. Même tendance pour le chrome, la structure Semi-intensive qui dispose du substrat le plus riche en cet élément (plus de 150mg/kg contre environ 40) a la meilleure capacité épuratoire sur Cr. La structure Fibre coco, avec un substrat légèrement plus riche en bore que la structure Extensive, montre une meilleure capacité épuratoire pour cet élément. Cependant la seule structure rejetant plus de bore que l'apport en entrée, la Semi-intensive, contient le substrat qui a une teneur significativement plus forte par rapport aux autres substrats pour cet élément (de l'ordre de 15g/kg). L'argile expansée des teneurs comparables, ce qui pourrait expliquer la capacité de rétention de B limité par la structure Extensive par rapport à la structure stockage 40. Pour l'arsenic, ce sont bien les deux substrats avec les plus fortes teneurs, extensif et semi-intensif, qui en libèrent le plus. Cependant, ils en libèrent à des niveaux comparables, or les teneurs initiales sont très différentes 2 mg/kg pour l'extensif (très proche du Fibre de coco) contre 18mg/kg pour le semi-intensif. Cette teneur est comparable à celle de l'argile expansée qui a été identifiée comme source d'arsenic dans les eaux en sortie de toitures végétalisées utilisant ce matériau. Le seul élément pour lequel une teneur plus importante dans le matériau initial correspond plus significativement à un matériau au capacité épuratoire moins importante est le zinc. Par ailleurs, les capacités d'adsorption sur le particulaire de la toiture Extensive étant inférieures à celle de la Stockage 40 (cf. tableau 3), on peut supposer que l'argile expansée est une source potentielle de Cr. La teneur en Cr dans ce matériau est pourtant la plus faible de tous les matériaux (de l'ordre de 15mg/kg).

En outre, la présence de matériaux recyclés dans l'un des substrats (briques et scories de charbon dans le semi-intensif), pourtant identifiée comme une source potentielle de dégradation de la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisées par Bates *et al.* (2007), n'implique pas ici une capacité épuratoire inférieure aux autres pour tous les éléments même si ce substrat est celui qui contient parmi les plus fortes teneurs d'ETM.

Des extractions au CaCl_2 ont également été réalisées. Celles-ci montrent une très faible disponibilité

de ces éléments avec cet extractant, mis à part pour Cd (Schwager *et al.*, 2012). Or les capacités épuratoires de ces structures sont parmi les plus performantes pour cet élément, impliquant que les rejets de Cd par les matériaux dans les eaux de pluie doivent être limités.

La teneur totale et l'extraction au CaCl_2 ne permettent donc pas d'évaluer la capacité épuratoire de ces matériaux par rapport aux ETM. Les matériaux contenant les teneurs d'ETM les plus élevées ne sont pas systématiquement ceux qui auront les moins bonnes capacités épuratoires sur ces éléments. Pourtant, en vue de la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées, il serait intéressant de disposer d'une méthode de caractérisation des matériaux permettant de disposer de ces informations, avant mise en œuvre sur site réel. Des essais complémentaires (essai de lixiviation selon la norme 12547-3, extraction au DTPA et NH_4NO_3) sont donc en cours de réalisation afin de trouver un paramètre qui permettrait d'obtenir une corrélation entre teneurs obtenues en laboratoire et comportements sur site réel.

4 CONCLUSION

Les toitures végétalisées étudiées dans cet article montrent des capacités intéressantes de rétention des flux de polluants de différents éléments traces métalliques selon les structures. Afin d'optimiser le pouvoir épuratoire de ce type de système, il est important de mieux comprendre l'impact des différents matériaux ainsi que les mécanismes à l'œuvre au sein de ceux-ci. Des corrélations ont notamment pu être observées entre capacités d'adsorption établies en laboratoire et résultats sur site réel. D'autres résultats nécessitent des investigations complémentaires pour comprendre le rôle de chacun des matériaux, en particulier lorsque des phénomènes concurrents de rétentions des ETM présents dans les dépôts atmosphériques et rejets potentiels des mêmes éléments par les matériaux de la toiture ont lieu en même temps. En termes de mécanisme, la filtration de la pollution particulaire semble le mécanisme prépondérant de rétention des flux d'ETM. L'impact sur les phases dissoutes est variable selon les matériaux et les éléments. Enfin, l'établissement de préconisations concrètes pour la construction de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées nécessitent la construction de critères de choix permettant de savoir si un matériau sera efficace ou non sans avoir à passer par une expérimentation grandeur nature. Deux paramètres ont été testés, la teneur totale initiale en ETM et leur extractibilité au CaCl_2 , sans montrer de résultats probants par rapport aux résultats disponibles à ce jour. En effet, un matériau riche en ETM n'aura pas systématiquement tendance à le rejeter dans les eaux et de faibles teneurs d'ETM dans un autre ne signifient pas qu'il sera à même de retenir ceux provenant des dépôts atmosphériques. Une poursuite des recherches sur le sujet est donc nécessaire et d'autres paramètres sont en cours d'analyses.

REMERCIEMENT

Nous remercions BATEC Lorraine, Comptoir du Bâtiment, Falienor, Nidaplast, OH Semence, Saint Gobain Weber Portugal et Végétoit pour leur contribution à la construction de ces toitures. Nos remerciements vont également au GIP Plante&Cit  ,    l'association Floraine et au Jardin Botanique de Nancy pour leur assistance dans le choix de la v  g  tation introduite ainsi qu'   M  t  o France qui fournit les donn  es pluviom  triques horaires. Merci enfin    la Direction de la Recherche et de l'Innovation du MEDDTL pour le financement de cette th  se ainsi qu'   au GEMCEA pour son assistance technique et financi  re sur ce projet.

BIBLIOGRAPHIE

- Arr  t   du 11 janvier 2007 relatif aux limites et r  f  rences de qualit   des eaux brutes et des eaux destin  es    la consommation humaine mentionn  es aux articles R. 1321-2, R. 1321-3, R. 1321-7 et R. 1321-38 du code de la sant   publique
- Arr  t   du 25 janvier 2010 relatif aux m  thodes et crit  res d'  valuation de l'  tat   cologique, de l'  tat chimique et du potentiel   cologique des eaux de surface pris en application des articles R.212-10, R.212-11 et R.212-18 du code de l'environnement.
- Baize D. (2000) Teneurs en m  taux lourds dans les sols fran  ais. R  sultats g  n  raux du programme ASPITET. Courrier de l'environnement de l'INRA 22, pp.39-54.
- Barraud S., Bacot L., Bedell J.P., Bertrand-Krajewski J.L., Cherqui F., Clozel B., Come J.M., De Becdeli  vre L., Delolme C., Desjardin-Blanc V., Gaboriau H., Gibert J., Herbreteau B., Kaskassian S., Lipeme Kouyi G., Malard F., Mermillod-Blondin F., Perrodin Y., Seron A., Soares I., Verjat J.L., Winiarski T. (2009) *Guide*

- technique: recommandations pour la faisabilité la conception et la gestion des ouvrages d'infiltration des eaux pluviales en milieu urbain.* Version 2, Programme Ecopluies, janvier 2009, 63 p (2009).
- Bates A., Greswell R., Mackay R., Sadler J., Tellam J. (2007) *Inaugural green roof research in Birmingham, UK: configuration and preliminary results.* 2nd SWITCH Scientific Meeting, Tel Aviv, Israel, 25-29 November 2007, 10p.
- Chocat B., Battaglia P., Blanchard M., Bouillon H., Guézo B., Norotte O., Thomazeau R. *La Ville et son assainissement.* CERTU, Ministère de l'Équipement, des Transports et du Logement, du Tourisme et de la Mer, 503p.
- Czemieli Berntsson J., Bengtsson L. (2005) *The influence of extensive vegetated roofs on runoff water pollution loads.* 10th International Conference on Urban Drainage, Copenhagen, Denmark, 8p.
- Czemieli Berntsson J., Emilsson T., Bengtsson L. (2006) *The influence of extensive vegetated roofs on runoff water quality.* Science of the Total Environment, Volume 355, Issues 1-3, Février 2006, p. 48-63.
- Czemieli Berntsson J., Bengtsson L., Jinno K. (2009) *Runoff water quality from intensive and extensive vegetated roofs.* Ecological Engineering, 35 (3) (2009), pp. 369-380.
- Czemieli-Berntsson J. (2010) *Green roof performance towards management of runoff water quantity and quality: a review.* Ecological Engineering 36 (2010), 351-360.
- Dembélé A. (2010) *MES, DCO et polluants prioritaires des rejets urbains de temps de pluie : mesure et modélisation de flux événementiels.* Thèse de doctorat, INSA de Lyon, 267p.
- Directive 2000/60/CE du Parlement européen et du Conseil du 23 octobre 2000 établissant un cadre pour une politique communautaire dans le domaine de l'eau, 44 p.
- Greenway M., Simpson J.S. (1996) *Artificial Wetlands for Wastewater Treatment, Water Reuse and Wildlife in Queensland, Australia.* Water Science and Technology, Vol. 33 (10-11), 221-229.
- Horne A. (2000) *Phytoremediation by constructed wetlands.* In Terry N. and Bañuelos G. (eds.) Phytoremediation of contaminated soil and water. Lewis Publishers, Boca Raton, FL, pp. 14-37.
- Lamprea K., Ruban V. (2008) *Micro pollutants in atmospheric deposition, roof runoff and storm water runoff of a suburban Catchment in Nantes, France.* 11th International Conference on Urban Drainage, Edinbourg, Ecosse, UK, 2008, 8p.
- Lassalle F. (2012) *Le marché des toitures végétalisées et son évolution en France.* 2ème rencontres Toitures Végétalisées, ARRDHOR, 23 mai 2012, La Rochelle.
- Mays P., Edwards G. (2001) *Comparison of heavy metal accumulation in a natural wetland and constructed wetland receiving acid mine drainage.* Ecological Engineering 16 (2001), pp. 487-500.
- Mentens J., Raes D., Hermy M. (2006) *Green roofs as a tool for solving the rainwater runoff problem in the urbanized 21st century?* Landscape and Urban Planning 77 (3), Août 2006, p. 217-226.
- Nehrenheim E., Gustafsson J.P. (2008) *Kinetic sorption modelling of Cu, Ni, Zn, Pb and Cr ions to pine bark and blast furnace slag by using batch experiments.* Bioresource Technology 99 (2008) pp. 1571–1577.
- Köhler M., Schmidt M. (2003) *Study of extensive Green Roofs in Berlin: Part III Retention of Contaminants.* http://www.roofmeadow.com/technical/publications/SWQuality_Berlin_MSchmidt.pdf. 10p. Dernière consultation le 14/12/2010.
- Raskin I., Smith R.D., Salt D. E. (1997) *Phytoremediation of metals : using plants to remove pollutants from the environment.* Current Opinion in Biotechnology 1997(8), 221-226.
- Sansalone J.J., Buchberger S.G. (1995) *An infiltration device as a best management practice for immobilizing heavy metals in urban highway runoff.* Water Science and Technology Vol. 32 (1), 119-125.
- Schaal L. (2011) *Caractérisation de l'adsorption du cuivre et du zinc par les matériaux de toiture végétalisée.* Mémoire de Master, Université de Bordeaux 1, 34p.
- Schwager J., Morel J.L., Ruban V., Claverie R., Irlès A., Thiriart J. (2012) *Rejets et rétentions d'éléments traces métalliques par les toitures végétalisées - Premiers résultats d'une expérimentation in situ.* Actes des 5ème Journées Doctorales en Hydrologie Urbaine, 16-17 octobre 2012, Strasbourg.
- Shukla S.R., Pai R.S., Shendarkar A.D. (2006) *Adsorption of Ni(II), Zn(II) and Fe(II) on modified coir fibres.* Separation and Purification Technology 47 (2006) 141–147.
- US EPA (2005) *National Management Measures to Control Nonpoint Source Pollution from Urban Areas.* US EPA, Office of Water, november 2005, 518p.
- Vander Linden W. (2008) *Wet Weather Performance of an extensive vegetated roof in Waterloo, Ontario.* Thèse de Master, Master of Environmental Studies in Planning, 140 p.
- Walker D.J., Hurl S. (2002) *The reduction of heavy metals in a stormwater wetland.* Ecological Engineering 18 (2002) pp. 407-414.