AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

UNIVERSITE DE LORRAINE

ECOLE DOCTORALE RESSOURCES, PROCEDES, PRODUITS ET ENVIRONNEMENT
ECOLE NATIONALE SUPERIEURE D'AGRONOMIE ET DES INDUSTRIES ALIMENTAIRES
LABORATOIRE SOLS ET ENVIRONNEMENT UL-INRA UMR 1120

Thèse
présentée en vue de l'obtention du titre de Docteur de l'Université de Lorraine
Spécialité : Sciences agronomiques.

Par Julie SCHWAGER – GUILLOUX

Les toitures végétalisées, puits et sources d'éléments en traces métalliques

Soutenue le 26 juin 2014 devant le jury composé de :

Rapporteurs	
Marie-Christine GROMAIRE	Chargée de recherche, LEESU - Ecole Nationale des Ponts et Chaussées.
Mathieu JAVAUX	Professeur à l'Université Catholique de Louvain, ELIE.
Examinateurs	
Cécile DELOLME	Ingénieur divisionnaire, LEHNA - Ecole Nationale des Travaux Publics de l'Etat.
Maeva SABRE	Docteur, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment.
Invités	
Rémy Claverie	Chargé de Recherche, Cerema – Direction territoriale Est.
Marie-Odile SIMONNOT	Professeur à l'Université de Lorraine, LRGP.
Directeur de thèse	
Jean-Louis MOREL	Professeur à l'Université de Lorraine, LSE.
Co-directeur	
Véronique RUBAN	Directrice de recherche, GERS - Institut Français des Sciences et Technologies des Transports, de l'Aménagement et des Réseaux.

AVANT-PROPOS

L'encadrement scientifique de cette thèse a été réalisé par Jean-Louis Morel, Professeur au Laboratoire Sols et Environnement sous tutelle de l'Université de Lorraine et de l'Institut National de la Recherche Agronomique (INRA), et Véronique Ruban, Directrice de recherche à l'Institut Français des Sciences et Technologies des Transports, de l'Aménagement et des Réseaux (IFSTTAR). Le temps passé de la doctorante a été financé par la Direction de la Recherche et de l'Innovation du Ministère de l'Ecologie du Développement Durable et de l'Energie. Intégrée à l'opération de recherche « Gestion des eaux pluviales en zone urbaine » dirigée par la Direction Technique Territoire et Ville du Cerema et l'IFSTTAR, cette thèse a bénéficié du financement d'une assistance technique dans le cadre de ce projet. La Direction territoriale Est du Cerema a financé la construction et l'instrumentation des structures expérimentales dans le cadre d'une convention de partenariat avec les différents professionnels impliqués dans la construction de ces toitures végétalisées : BATEC Lorraine, Comptoir du Bâtiment, Falienor, Nidaplast, OH Semence, Saint Gobain Weber Portugal et Végétoit. Le GEMCEA a fourni des financements pour l'instrumentation, la réalisation des analyses et l'embauche de stagiaires ainsi qu'une assistance technique.

REMERCIEMENTS

Dans un premier temps, je souhaiterais sincèrement remercier les personnes qui ont aidé au montage de ce projet il y a près de 5 ans et sans qui rien n'aurait été possible : Hubert Perrier, Nathalie Le Nouveau et Rémy Claverie.

J'adresse tous mes remerciements à mon Directeur et ma co-Directrice de thèse pour l'encadrement de ces travaux. Merci à Jean-Louis Morel de m'avoir fait partager sa passion, son enthousiasme et ses grandes connaissances dans les domaines des sols et de leurs interactions avec les végétaux. Il a également su m'initier progressivement au monde complexe de la recherche. Merci également Véronique Ruban de m'avoir fait profiter de son riche savoir dans le domaine de l'hydrologie urbaine et des polluants des eaux pluviales et surtout pour son soutien et sa disponibilité tout au long de ce projet. Je les remercie tous deux pour leur confiance et l'autonomie qu'ils ont su me laisser au cours de ces travaux ainsi que pour les contacts qu'ils m'ont aidé à établir auprès de certains de leurs confrères.

Je remercie Marie-Christine Gromaire, Mathieu Javaux, Maeva Sabre, Cécile Delolme, Marie-Odile Simonnot et Rémy Claverie d'avoir accepté et pris le temps de juger ces travaux. Un grand merci également pour leur caractère constructif de leurs remarques et leurs conseils pour la valorisation de ces travaux par la suite.

Un grand merci à l'ensemble des partenaires industriels et scientifiques qui ont aidé à la construction de ces toitures végétalisées expérimentales : BATEC Lorraine, Comptoir du Bâtiment, Falienor, Nidaplast, OH Semence, Plante&Cité, Saint Gobain Weber Portugal, Végétoit, Jardin botanique de Nancy, Association Floraine. Si ce premier projet se termine, ces structures sont toujours en place et pour de nombreuses années encore. J'espère que cela nous permettra de développer de nouveaux projets dans les années à venir. Merci plus particulièrement à Nicolas Fourré et Pascal Barret pour les nombreux échanges très enrichissants que nous avons pu avoir.

J'adresse également mes remerciements à la Direction technique Territoires et villes du Cerema et à l'IFSTTAR, plus particulièrement à Nathalie Le Nouveau et Fabrice Rodriguez, pour avoir intégré ce projet de thèse à l'opération de recherche « Gestion durable des eaux pluviales en milieu urbain », aidant ainsi au financement de l'appui technique de cette thèse. Merci à la Direction de l'Eau et de la Biodiversité du Ministère en charge de l'Ecologie pour le soutien financier fourni à ces travaux et en particulier à Bénédicte Tardivo pour l'intérêt qu'elle porte à la gestion des eaux pluviales en général. Merci à la Direction de la Recherche et de l'Innovation pour le financement de mon temps passé sur ce projet.

Merci aux Directions de la Direction territoriale Est du Cerema et du Laboratoire de Nancy, respectivement François Hurson et Hubert Perrier dans un premier temps, puis Hervé Mangnan et Georges Kuntz ces dernières années et mois, pour avoir validé le montage de ce projet de thèse « à temps partiel ». Merci également pour l'attention portée à ces travaux et de m'avoir notamment permis de participer à de nombreux congrès permettant de valoriser ces travaux.

Je remercie également le GEMCEA pour l'appui technique et financier apporté à ce projet. Merci en particulier à ses directeurs, Philippe Battaglia puis Rémy Claverie, pour l'intérêt porté à ces travaux, Dominique Favory pour les démarches administratives de recrutement de stagiaires et d'achats et enfin Xavier France pour la réalisation de certains essais.

Je remercie Marie-Odile Simonnot de m'avoir fait découvrir les essais de sorption en batch et en colonne et tout ce qu'ils peuvent apporter à la compréhension des mécanismes permettant la rétention des éléments traces sur un matériau. Ces techniques ont été très utiles dans le cadre de ce projet et j'espère pouvoir les valoriser par la suite sur d'autres matériaux. Merci également de m'avoir accueilli au LRGP, pour ses conseils dans la rédaction d'un article scientifique et sa relecture attentive de mon manuscrit.

J'adresse également mes remerciements à Françoise Watteau pour m'avoir fait découvrir les toitures végétalisées à une échelle que je n'avais pas envisagée au départ. L'étude des lames minces a probablement été l'une des approches les plus enrichissantes de ce projet et ouvre de multiples perspectives pour l'avenir. Merci pour sa relecture attentive de mon manuscrit, sa disponibilité, sa sympathie et ces échanges dans la pénombre de la salle du MET. J'en profite également pour remercier Jean-Claude Bégin pour la réalisation de ces lames minces, qui relève autant d'un art que d'une science, qu'il maîtrise à merveille.

Je remercie Julien Laurent et Adrien Wanko pour leur grand investissement dans le développement de l'approche modélisation de ce projet. Nous n'en sommes qu'au début et j'espère bien poursuivre ces travaux avec eux dans les années à venir. Merci à tous deux pour le partage de leurs connaissances, leur bonne humeur et leur disponibilité.

J'adresse tous mes remerciements aux personnes de SOLEO de la Direction territoriale Est du Cerema qui ont participé activement à la réalisation de ce projet. Plus particulièrement merci à Jérémy Thiriat pour la mise en place de l'instrumentation et la récolte des données issues de ces différents capteurs tout au long du projet. Et surtout un grand merci à Amandine Ouros pour la réalisation de toutes ces manips de prélèvements d'eau, de sedums, de suivi de développement des plantes, de minéralisation etc. Sans son sérieux et sa forte implication dans ce projet, je n'aurais pas pu en arriver là. Merci à Fabrice Arki pour sa compréhension face aux spécificités et problématiques associées à mon statut de « doctorante/responsable d'activité » et de m'avoir aidé à mener à bien ce projet jusqu'à son terme dans les meilleures conditions.

Je tiens également à remercier les stagiaires qui ont contribué à la réalisation de ce projet : Antoine Ernewein, Laurence Schaal, Eléonore Muia, Axel Saly, Céline Mazzini et Alexandre Tisserand. J'ai eu la chance d'encadrer des personnes sympathiques et très investies dans leur projet.

Je remercie Dominique Demare, Romain Goudon, Lucie Framont-Terrasse et leurs collègues de l'IFSTTAR, du LSE et de la Direction territoriale Est du Cerema pour l'analyse des (nombreux) échantillons que je leur ai transmis, leur rigueur et leur disponibilité.

Je remercie sincèrement l'ensemble des membres du LSE pour leur accueil chaleureux et la place qu'ils m'ont toujours faite dans leurs bureaux ou sur leurs paillasses. Merci notamment à Adeline Bouchard et Alain Rakoto pour leur accueil « métrologie, sécurité, informatique », Catherine Sirguey pour ses conseils dans la réalisation des minéralisations et analyses à l'ICP AES, Stéphanie Ouvrard pour son aide dans la réalisation des analyses de COD, Geoffroy Séré pour les échanges dans le domaine de la végétalisation de toiture et son aide au montage de nouveaux projets, Frédéric Reis pour les échanges initiaux sur l'instrumentation des toitures puis par la suite sur les essais en colonne et batch, Apolline Auclerc qui m'a fait découvrir sous un jour nouveau les toitures végétalisées grâce à ses petites bêtes et notamment ses coquilles d'escargots ! Un merci particulier à Hermine Huot pour sa sympathie, sa disponibilité et sa générosité. Je ne saurais compter le nombre de fois où elle m'a apporté des informations essentielles au bon déroulement de ce projet, aussi bien d'un point de vue scientifique qu'administratif.

J'adresse mes remerciements à l'ensemble des membres du groupe de travail sur les toitures végétalisées, initialement basés sur les équipes du « RST » et qui s'élargit progressivement au gré des montages de projets, pour les échanges enrichissants qui ont lieu lors de nos rencontres. Je pense notamment à Bernard de Gouvello, Martin Seidl, Marie-Christine Gromaire, Pierre-Antoine Versini, Maeva Sabre, Cécile Demunck (merci au passage à Météo France pour la transmission des données horaires de pluviométrie), Rémy Claverie, Julien Bouyer, David Ramier, Emmanuel Berthier, Fabrice Rodriguez et Claude Joannis.

Passons maintenant aux agents du Laboratoire de Nancy de la Dter Est. Je suis très reconnaissante envers l'ensemble des membres du groupe SOLEO pour la bonne ambiance qui règne au sein de notre groupe et qui fait que venir travailler avec vous est toujours un plaisir. Cela nécessite véritablement un investissement de chacun pour créer une telle cohésion sur le long terme. Un merci particulier à mes co-locataires de bureaux, Manuel Collongues et Philippe Gastaud, pour la bonne humeur du premier, les ronchonneries du second et leur humour à tous les deux. Merci Philippe également pour le carburant chocolaté que tu as pu me fournir ces derniers mois ! Merci à Thierry Devillard et Sébastien Thiery qui m'ont souvent sorti de nombreuses impasses informatiques et m'ont fourni bon nombre de « trucs et astuces » fort utiles. Merci Thierry également pour le fond musical qui, bien que pas toujours à mon goût, apportait une distraction à certaines longues journées. Merci à Claudie Olleviers pour l'impression de ces nombreux manuscrits. Merci à Charlotte Mucig et Aurélie Gerolin pour nos échanges « stratégiques », scientifiques et aussi non professionnels, toujours dans la bonne humeur. Merci à Rémi Wagner pour le partage de son riche savoir dans le domaine de l'hydrologie. Merci à Gwenaël Jouannic, mon « collègue chercheur » de SOLEO pour ses conseils et son humour. Merci à Laurent Sylvestre de m'avoir transmis les coordonnées de Nicolas et d'avoir partagé avec moi un peu de sa « sagesse professionnelle ». Merci également à la Chimie, notamment Laurent Joly, Lucie Framont-Terrasse et Karine Rondeau, de nous avoir accueilli dans leur labo, pour leur disponibilité, leur sympathie et leurs conseils de chimistes. Merci à Patrick Lieugaut pour son aide au quotidien dans la réalisation des travaux ou encore la mise en place de manips. Merci à Guy Henryon et Emilie Berthier de m'avoir accueilli dans leur village pour des pesées et essais de granulo. Merci à Pascal Naudin de veiller à ce que le ciel ne nous tombe pas sur la tête. Merci à Roxane Barottin pour son encadrement «Hygiène, qualité et sécurité » de l'ensemble des travaux réalisés en laboratoire et sur les toitures expérimentales. Merci à Chantal Dupont pour la veille scientifique et technique, l'impression de normes, les inscriptions au congrès. Merci à ICE, plus particulièrement Mario Marchetti, Rémy Claverie, Guillaume Derombise, Ryad Bouzouidja, Julien Bouyer et Ivana Durickovic pour les échanges sur les toitures végétalisées et la recherche en général. Merci aux agents de CEMI de m'avoir laissé végétaliser une partie de leurs toits et d'avoir toléré quelques fuites dans leur locaux lors de la réfection de l'étanchéité... Enfin un grand merci à tous ceux et toutes celles qui dans leur bureau, au café ou sur les toitures, par des paroles, un sourire ou encore un gateau au chocolat, m'ont apporté leur soutien dans les moments difficiles que j'ai pu rencontrer du début jusqu'à la toute fin de ce projet, ils se reconnaitront (N.B. ce n'est pas parce que vous avez déjà été cité précédemment que vous n'êtes pas là aussi !).

Je souhaiterais également remercier mes amis qui directement ou indirectement mon soutenu dans ce projet. Attention, la liste qui suit n'est pas exhaustive ! Merci dans un premier temps à Gaëlle et Arnaud, avec qui j'ai pu partager mes difficultés d'ITPE en poste et en thèse à temps partiel. Encore félicitations à la première pour l'aboutissement de son projet ! Bon courage au second pour la dernière ligne droite ! Merci à Aurélie pour son soutien en toute circonstance et à toute heure (au moins un avantage du décalage horaire !), ses coups de fil qui me changent les idées et son blog qui me fait bien rire. Merci à la bande des « Gros » pour tous les bons moments partagés avec eux qui font toujours oublier les soucis, et notamment ces dernières vacances au ski. Relire mon manuscrit en observant Nihad nous préparer un gâteau restera l'un des souvenirs les plus marquants et amusants de ma période de rédaction !

Je souhaiterais remercier de tout mon cœur mes parents qui m'ont aidé à me construire, m'ont incité à la poursuite de mes études et surtout ont su m'apprendre le plaisir d'apprendre.

Mille mercis à mon époux pour le soutien inconditionnel qu'il m'a apporté chaque jour de ce long parcours semé d'embuches.

Merci enfin à ma fille, le petit arc-en-ciel qui égaye ma vie par temps sec comme par temps de pluie !

SOMMAIRE

LISTE DES FIGURES 15

LISTE DES TABLEAUX 20

INTRODUCTION 23

PARTIE I

EVALUATION DE L'IMPACT DES TOITURES VEGETALISEES EXTENSIVES SUR LA QUALITE DES EAUX 29

CHAPITRE 1 : UNE CONCEPTION ACTUELLE DES TOITURES VEGETALISEES NON-ADAPTEE A UNE DIMINUTION DES REJETS DE POLLUANTS 30

1.1 Enjeux de la qualité des eaux en sortie de toitures 30

1.1.1 Les éléments en traces métalliques 30

1.1.2 Phénomènes induisant la contamination des eaux pluviales en ETM 32

1.1.3 Devenir des eaux de toitures 36

1.2 Le rôle des toitures végétalisées dans la gestion des eaux pluviales 40

1.2.1 Les toitures végétalisées en France 40

1.2.2 Gestion quantitative 43

1.2.3 Gestion qualitative 46

1.3 Potentialités d'amélioration des capacités épuratoires des toitures végétalisées 60

1.3.1 Des pistes déjà identifiées dans le domaine de la végétalisation de toitures 60

1.3.2 La Science du Sol pour aider à une meilleure compréhension des flux de polluants dans les structures 62

1.4 Synthèse et questionnements 63

CHAPITRE 2 : MATERIEL ET METHODES 65

2.1 Elaboration des toitures végétalisées en vraie grandeur 65

2.1.1 Principe de sélection des matériaux 65

2.1.2 Matériaux utilisés 66

2.1.3 Installation et vie courante des structures 69

2.2 Instrumentations et suivis in situ 72

2.2.1 Sélections des polluants étudiés 72

2.2.2 Caractérisation initiale et finale des structures végétalisées 73

2.2.3 Entrées du système 78

2.2.4 Sortie du système 79

2.2.5 Analyses des ETM dans les eaux et les végétaux par ICP MS 80

2.3 Essais en laboratoire 82

2.3.1 Essais en batch 82

2.3.2 Essais en colonne 84

2.4 Synthèse de la démarche expérimentale 87

CONCLUSION 89

PARTIE II

HYPOTHESES SUR LES CAPACITES DE RETENTION ET D'EMISSION DES STRUCTURES A PARTIR DES CARACTERISTIQUES INITIALES DES DIFFERENTS MATERIAUX 91

CHAPITRE 1 : CARACTERISTIQUES INITIALES DES STRUCTURES EXPERIMENTALES DE VEGETALISATION DE TOITURES 92

1.1 Caractéristiques de la végétation 92

1.1.1 Dimensions des plantes et teneurs en ETM 92

1.1.2 Discussion : un faible couvert végétal initial 93

1.2 Caractéristiques des matériaux de drainage et des substrats 94

1.2.1 Caractéristiques générales des matériaux minéraux et organiques 94

1.2.2 Teneurs en ETM 97

1.2.3 Discussion : impact des structures sur la qualité des eaux 101

CHAPITRE 2 : CAPACITE DE RETENTION DES SUBSTRATS ET DES DRAINAGES UTILISES VIS-A-VIS DES ETM 104

2.1 Caractérisation en batch des capacités de sorption et de désorption du Cu et du Zn sur les trois substrats et les deux drainages 104

2.1.1 Isothermes de sorption 104

2.1.2 Cinétique de sorption 108

2.1.3 Isotherme de désorption 111

2.1.4 Discussion : des cinétiques lentes mais des capacités de rétention significatives, surtout pour l'argile expansée 111

2.2 Influence du pH, de la granulométrie et de la proportion de chaque matériau dans un mélange sur les capacités de rétention 115

2.2.1 Isothermes et cinétiques de sorption sur matériaux entiers 115

2.2.2 Isothermes de sorption à pH contrôlé 116

2.2.3 Cinétiques et isothermes de sorption des différents matériaux constitutifs du substrat extensif 117

2.2.4 Discussion : les caractéristiques physiques et chimiques de chaque matériau influent sur le fonctionnement global de la structure 118

2.3 Essais en colonne de sorption du Zn sur l'argile expansée et le substrat extensif 121

2.3.1 Comparaisons des résultats obtenus pour l'argile expansée et le substrat séparément 121

2.3.2 Comparaisons des courbes de sorption de Zn^{2+} et de désorption de Ca^{2+} 123

2.3.3 Impacts de la hauteur de matériaux 124

2.3.4 Impacts de la superposition substrat/drainage 124

2.3.5 Désorption du Zn 125

2.3.6 Discussion : des modifications significatives induites par la dynamique de l'écoulement et la superposition des matériaux 127

CONCLUSION 131

PARTIE III

CONCENTRATIONS ET FLUX DE POLLUANTS DANS LES EAUX ISSUES DES TOITURES VEGETALISEES 133

CHAPITRE 1 : ENTREES DU SYSTEME 134

1.1 Dépôts atmosphériques 134

1.1.1 Précipitations 134

1.1.2 Caractéristiques physico-chimiques des retombées totales 135

1.2 Apports anthropiques 137

1.3 Discussion : des apports potentiels via les engrais à ne pas négliger 137

CHAPITRE 2 : EAUX EN SORTIE DES PARCELLES EXPERIMENTALES 139

2.1 Caractéristiques physico-chimiques 139

2.2 Concentrations en ETM 141

2.3 Flux 146

2.4 Discussion : une capacité épuratoire effective pour certains ETM 149

CONCLUSION 153

PARTIE IV

EVOLUTION DES STRUCTURES 155

CHAPITRE 1 : APPROCHE GLOBALE PAR PARCELLE 156

1.1 Végétaux 156

1.1.1 Développement des végétaux sur les différentes parcelles 156

1.1.2 Teneurs en ETM 158

1.1.3 Discussion : des teneurs en ETM dans les végétaux fortement influencées par les teneurs des substrats 164

1.2 Evolution des caractéristiques des compartiments non végétaux 165

1.2.1 Caractéristiques physico-chimiques 165

1.2.2 Evolution des teneurs totales en ETM sur les profils de substrats et dans l'argile expansée 167

1.2.3 Discussion : Une évolution à court terme qui interroge sur l'évolution à long terme 171

CHAPITRE 2 : CHANGEMENT D'ECHELLE, ZOOM SUR LA TOITURE EXTENSIVE 175

2.1 Caractéristiques physico-chimiques aux différents points de prélèvement 175

2.1.1 Caractéristiques physico-chimiques 175

2.1.2 Variabilité des teneurs en ETM 178

2.1.3 Discussion : des caractéristiques variables pour certains paramètres, en particulier en l'absence de végétaux 178

2.2 Observation de l'évolution du substrat sur lames minces 180

2.2.1 Caractéristiques générales 180

2.2.2 Caractéristiques de la végétation 187

2.2.3 Activité de la faune 190

2.2.4 Discussion : un rôle important de la flore et de la faune dans l'évolution du substrat 191

2.3 Observation de coupes de végétaux 193

2.3.1 Morphologie de S. spurium 193

2.3.2 Interaction avec le substrat 197

Présence de micro-organismes 199

2.3.3 Discussion : Une rétention temporaire des ETM dans les végétaux 200

CONCLUSION 202

PARTIE V

MECANISMES INFLUENÇANT LA QUALITE DES EAUX EN SORTIE DE TOITURES VEGETALISEES..... 203

CHAPITRE 1 : RETENTION DES ETM PAR LES DIFFERENTS COMPARTIMENTS 204

1.1 Végétaux 204

1.1.1 Evaluation du stock 204

1.1.2 Comparaison des stocks dans les végétaux aux flux en entrée et sortie de toiture ... 206

1.2 Evolution dans les substrats et drainages 208

1.2.1 Cas de Cd, Cr et B 208

1.2.2 Cas de Cu, Pb et Ni 209

1.2.3 Cas de Zn 210

1.3 Rôle du filtre 210

1.4 Discussion 211

CHAPITRE 2 : ESTIMATION DU POTENTIEL D'EMISSION DES MATERIAUX 215

2.1 Corrélation entre les flux émis par les structures et la disponibilité initiale des ETM 215

2.2 Evolution de la disponibilité des ETM 218

2.2.1 Diminution au cours du temps de la part extractible des ETM des structures 218

2.2.2 Augmentation des émissions au cours du temps : deux principaux mécanismes impliqués 218

2.2.3 Origine de l'arsenic émis par l'argile expansée 219

2.3 Discussion : des mécanismes d'émissions complexes et évolutifs 220

CONCLUSION 224

DISCUSSION GENERALE

LES TOITURES VEGETALISEES SONT-ELLES UN PUITS OU UNE SOURCE D'ELEMENTS EN TRACES METALLIQUES ? 225

1. VARIABILITE DES FLUX ET CONCENTRATIONS EN SORTIE SELON LES ELEMENTS ET LES STRUCTURES 226

2. RETENTION D'ETM AU SEIN DES STRUCTURES 226

2.1 Mécanismes 226

2.2 Caractérisation des potentiels de rétention des matériaux 227

2.3 Est-il envisageable de diminuer les concentrations en sortie de toitures végétalisées par rapport à celles observées sur ces parcelles expérimentales ? 228

3. EMISSION D'ETM PAR LES DIFFERENTS MATERIAUX 229

3.1 Mécanismes 229

3.2 Caractérisation des potentiels d'émissions des matériaux 230

4. UN BILAN GLOBAL DE GESTION DES EAUX PLUVIALES QUI DOIT DEPASSER L'ANALYSE DU COMPORTEMENT DES MATERIAUX DE LA STRUCTURE VEGETALISEE A COURT TERME 231

4.1 Une forte hétérogénéité des caractéristiques des matériaux 231

4.2 D'autres sources et polluants à considérer 232

4.3 Une étude à long terme nécessaire 232

4.4 Perspectives pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires 233

CONCLUSION *234*

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES *238*

ANNEXES *251*

ANNEXE I *252*

Caractérisation d'essentialité et de toxicité de différents ETM chez les êtres vivants. 252

ANNEXE II *254*

Tableau récapitulatif des caractéristiques des différentes toitures végétalisées ayant fait l'objet d'une analyse globale des concentrations et flux de nutriments et métaux en entrée et sortie de toitures végétalisées. 254

ANNEXE III *257*

Recensement des structures existantes sur le territoire de la Communauté Urbaine du Grand Nancy 257

ANNEXE IV *260*

Les toitures végétalisées et la réglementation 260

ANNEXE V *262*

Compositions des substrats utilisés sur les structures expérimentales 262

ANNEXE VI *263*

Listes des végétaux introduits sur les différentes parcelles végétalisées 263

ANNEXE VII *264*

Protocoles de minéralisation des différents types d'échantillons 264

Végétaux 264

Filtres ayant récupéré la phase particulaire des dépôts atmosphériques et des eaux en sortie de toitures 269

Eaux de lavage des végétaux 270

Matériaux synthétiques (structure stockante, filtre, étanchéité)..... 271

ANNEXE VIII 272

Fiches techniques des sondes de teneurs en eau et potentiel matriciel 272

ANNEXE IX 274

Blancs réalisés sur les débitmètres à auget 274

ANNEXE X 275

Limites de quantification et incertitudes d'analyses à l'ICP OES 275

ANNEXE XI 276

Essais de modélisation des transferts de Cu et Zn en phase dissoute par le logiciel Hydrus-1D. 276

Conclusion 288

RESUME..... 292

LISTE DES FIGURES

Figure 1 - Processus d'émission et de rétention influençant la qualité des eaux issues de la toiture végétalisée 24

Figure 2 - Plan schématisé du rapport de thèse 27

Figure 3 – Répartition et évolution de la biodisponibilité des ions dans le sol au cours de la période de croissance de la plante. Adapté de Morel (1997 a et b) 32

Figure 4 - Structure multicouches d'une toiture végétalisée 40

Figure 5 - Evolution du marché français de la végétalisation de toiture depuis 2002. Source : ADIVET 42

Figure 6 - Segmentation du marché de la végétalisation de toitures selon le type de végétalisation : exemple sur le territoire du Grand Nancy. Source : Ernewein (2010) 42

Figure 7 - Analyses des volumes de pluie retenus recensés dans le cadre de différentes études de toitures végétalisées. Source : Gregoire & Clausen, 2011 44

Figure 8 - Illustrations des deux principaux mécanismes influençant la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisées : a. source de polluants présents dans les matériaux ; b. puits de polluants apportés par les dépôts atmosphériques ; c. couplage 46

Figure 9 - Matériaux utilisés en couche de drainage sur les toitures végétalisées expérimentales : a. argile expansée ; b. structure synthétique stockante 67

Figure 10 – Substrats utilisés sur les toitures expérimentales a. extensif, b. semi-intensif, c. fibre de coco 68

Figure 11 - Trois parcelles expérimentales du Laboratoire de Nancy munies des trois mélanges de végétaux en mai 2012 : a. extensive (mélange de sedums), b. plateaux calcaires lorrains, c. Vosges . 69

Figure 12 - Répartition des différentes structures végétalisées sur les toits du Laboratoire de Nancy (Cerema – Direction territoriale Est) 70

Figure 13 - Substrat versé directement sur la toiture depuis le « big bag » 71

Figure 14 - Prélèvement du substrat extensif dans une boîte de Kubiena 77

Figure 15 - Entonnoir permettant la récupération des dépôts atmosphériques. 78

Figure 16 - Exemple d'une carte de contrôle établie à l'aide des CQI. Source : Lamprea, 2009 ... 82

Figure 17- Photo de la colonne dans le cadre de l'essai de sorption de Zn TV sim 86

Figure 18 – Courbe de percée classique présentant les différentes étapes d'évolution des concentrations au sein de la colonne en fonction du volume écoulé à travers la colonne. Adapté de Taty Costodes et al., 2005 86

Figure 19 - Micro-mottes de S. reflexum introduites en avril 2011 93

Figure 20 - Comparaison des teneurs initiales en ETM dans S. album et S. reflexum g. 93

Liste des Figures

Figure 21 – Répartition du nombre de pores en fonction de leur diamètre dans les trois substrats et l'argile expansée par analyse de la porosité au mercure 96

Figure 22 - Teneurs initiales en ETM dans les différents matériaux constitutifs des toitures végétalisées comparées à des seuils d'anomalie naturelle et une norme relative aux supports de culture (*Baize, 2000) 98

Figure 23 - Variation des teneurs en ETM dans les fractions granulométriques des trois substrats et l'argile expansée 98

Figure 24 - Extractibilité des ETM sur les trois substrats, l'argile expansé et l'étanchéité selon différentes méthodes 100

Figure 25 - Evolution de la sorption de Cu et Zn sur les trois substrats et les deux drainages en fonction de la concentration à l'équilibre 105

Figure 26 - Evolution de la sorption de Cu et Zn sur les trois substrats et l'argile expansée au cours du temps 109

Figure 27 - Evolution de la quantité de Cu et Zn sorbée au cours du temps sur l'argile expansée et le substrat extensif non concassé 116

Figure 28 - Evolution de la capacité de sorption pour Cu et Zn de l'argile expansée et du substrat extensif non concassé en fonction de la concentration à l'équilibre à différents pH 116

Figure 29 - Evolution de la capacité de sorption du Cu par les principaux matériaux constitutifs du substrat extensif considérés individuellement et en mélange 118

Figure 30 - Evolution de C/C_0 pour le Zn et du pH par rapport à V/V_p pour l'argile expansée et le substrat extensif en configuration similaire au ratio de hauteur des toitures végétalisées expérimentales 121

Figure 31 - Evolution du rapport C/C_0 de Ca^{2+} et Zn^{2+} pour l'argile expansée (AE) et le substrat extensif en fonction du volume écoulé sur le volume poreux de la colonne 123

Figure 32 - Impact de la hauteur d'argile expansée sur la courbe de percée de Zn 124

Figure 33 - Impacts de la superposition du substrat et de l'argile expansée sur l'évolution du rapport C/C_0 en fonction du volume écoulé 125

Figure 34- Comparaisons des courbes de sorption et désorption des différents matériaux en fonction de V/V_p 127

Figure 35 - Pluviométrie mensuelle d'avril 2011 à avril 2013 et comparaison avec les minimums, moyennes et maximums mensuels de 2005 à 2009 135

Figure 36 - Concentrations en ETM en phases dissoutes et particulaires dans les dépôts atmosphériques sur la période de suivi des toitures végétalisées expérimentales 136

Figure 37 - Evolution du pH en entrée et sortie de toitures entre décembre 2011 et avril 2013 140

Figure 38 – Diminution des concentrations totales en B en sortie des toitures végétalisées Vosges, Plateaux calcaires et Semi-intensive entre mai 2011 et avril 2013 144

Figure 39 – Comparaison de l'évolution des concentrations totales en arsenic en sortie des toitures végétalisées Vosges et Extensive entre mai 2011 et avril 2013 145

Figure 40 - Comparaisons des concentrations totales en cadmium dans les dépôts atmosphériques et les eaux en sortie des toitures Vosges, Extensive et Graviers 145

Figure 41 – Comparaison des flux d'ETM moyen annuel en entrée et sortie des différentes toitures 146

Figure 42 - Evolution du pourcentage de recouvrement par la végétation des différentes toitures d'avril 2011 à avril 2013 157

Figure 43 - Part des différents végétaux dans le recouvrement des toitures végétalisées en avril 2013 157

Figure 44 - Evolution de la hauteur moyenne des plants de S. reflexum germanium selon les associations de substrats et drainages de juillet 2011 à avril 2013 158

Figure 45 - Evolution du diamètre moyen des plants de S. reflexum germanium selon les associations de substrats et drainages de juillet 2011 à avril 2013 158

Figure 45.a – Evolution des teneurs en ETM dans les S.album et reflexum g. sur les différentes parcelles végétalisées d'avril 2011 à avril 2013 159

Figure 45.b – Evolution des teneurs en ETM dans les S.album et reflexum g. sur les différentes parcelles végétalisées d'avril 2011 à avril 2013 160

Figure 46.c – Evolution des teneurs en ETM dans les S.album et reflexum g. sur les différentes parcelles végétalisées d'avril 2011 à avril 2013 161

Figure 47 - Teneurs moyennes en As dans les principaux végétaux présents sur les toitures en avril 2013 selon les substrats 162

Figure 48 - Evolution des paramètres globaux sur les profils des différentes toitures végétalisées entre octobre 2010 et avril 2013 166

Figure 49 - Evolution de la répartition granulométrique entre octobre 2010 et avril 2011 dans les substrats et l'argile expansée 167

Figure 50 - Présence de particules de substrat en surface et dans le filtre géosynthétique (prélèvement d'avril 2013 - toiture des Vosges) 168

Figure 51 - Evolutions des teneurs en ETM sur les profils de substrat des parcelles expérimentales 169

Figure 52 - Evolution des teneurs en ETM dans le filtre géosynthétique 170

Figure 53 - Evolution des teneurs en ETM dans la structure synthétique stockante entre le matériau initial et celui prélevé en avril 2013 170

Figure 54 - Evolution des teneurs en ETM dans les couches de drainage constituées d'argile expansée 170

Figure 55 - Variabilité du pH entre les différents points de prélèvements sur la toiture Extensive176

Figure 56 - Variabilité de la CEC et de la teneur en matière organique entre les différents points de prélèvements sur la toiture Extensive 176

Figure 57 - Variabilité des teneurs en ETM entre les différents points de prélèvements sur la toiture Extensive 177

Figure 58 - Lames minces de substrat extensif prélevées aux points de prélèvements 1 (S. spurium) et 2 (S. floriferum) sur la toiture Extensive 181

Figure 59 - Lames minces de substrat extensif prélevées aux points de prélèvement 3 (S. album) et 4 (S. reflexum) sur la toiture Extensive 182

Figure 60 – Dégradation progressive et hétérogène de la matière organique initialement présente dans le substrat (point de prélèvement 2) 183

Figure 61 - Racines de S. reflexum vivantes et mortes avec différents stades d'avancement de dégradation (point de prélèvement 4) 184

Figure 62 - Colmatage progressif de vides intra-particulaires (vésicules) par des particules fines et notamment de la matière organique (point de prélèvement 3) 185

Figure 63 - Formation d'agrégats dans des vides inter-particulaires (point de prélèvement 2) . 185

Figure 64 - Observation à plus fort zoom des agrégats et de leurs associations avec la surface de la pouzzolane (point de prélèvement 4) 186

Figure 65- Orientation de particules dans un vide inter-particulaire pouvant indiquer un lessivage de celles-ci (point de prélèvement 3) 186

Figure 66 – Agrégation et accumulation de particules au-dessus de racines de S. spurium (haut) et S. floriferum (bas) (points de prélèvement 1 et 2) 188

Figure 67 - Racines de S. floriferum introduites dans les porosités d'un grain de pouzzolane (point de prélèvement 2) 189

Figure 68 - Racine de S. floriferum introduite entre deux grains de pouzzolane probablement en contact au préalable (point de prélèvement 2) 189

Figure 69 - Racine de S. floriferum en contact direct avec un grain de pouzzolane semblant induire un fractionnement de petites particules de pouzzolane dans la zone de contact (point de prélèvement 2) 189

Figure 70 – Exemples de boulettes fécales de diamètre proche de 125 µm dans une racine morte de S. spurium (a) et de l'ordre de 500 µm dans les vides interparticulaires (b, c, d) (points 2 et 3) 190

Figure 71 – Structure primaire d'une racine de S. spurium observée à la loupe binoculaire 194

Figure 72 - Cellule périphérique et écorce de S. spurium observées au MET 194

Figure 73 - Cellules du stèle. Observation au MET d'une coupe transversale de S. spurium 194

Figure 74 - Petite racine de la coupe tranversale de S. spurium observée au MET 195

Figure 75 – Evaluation de la quantité d'ETM présents par sonde EDX dans les différents tissus racinaires de S. spurium 195

Figure 76 - Spectres obtenus par analyse élémentaire par EDX dans différentes zones de la lame de S. spurium (résine témoin en haut, cellule contenant un complexe polyphénol-protéines en bas) .. 196

Figure 77 - Spectres obtenus par analyse élémentaire par EDX dans différentes zones de la lame de S. spurium (paroi cellulaire) 197

Figure 78- Adhésion de minéraux, de bactéries et de résidus organiques en surface et à l'intérieur des cellules externes de la racine de S. spurium 198

Liste des Figures

Figure 79- Observation au MET d'une lame de substrat extensif et emplacement des mesures à la sonde EDX 198

Figure 80 - Micro-organismes présents dans les cellules externes de la racine de S. spurium ... 199

Figure 81 - Bactéries présentes autour et dans la racine dégradée de S. spurium 200

Figure 82 - Biomasse surfacique racinaire et aérienne en avril 2013 des quatre espèces de sedum les plus présentes sur les toitures expérimentales 204

Figure 83 - Estimation du stock d'arsenic par parcelle végétalisée réparti entre les principales espèces présentes 206

Figure 84 - Teneurs en ETM dans le compartiment végétal de la toiture extensive en avril 2013206

Figure 85 - Corrélations entre les différences de flux sortie-entrée et les quantités d'ETM totales et extractibles dans les différentes structures végétalisées 217

Figure 86 - Schéma récapitulatif des principaux mécanismes induisant une rétention et une émission d'ETM au sein d'une structure de toiture végétalisée 236

Figure 87- Synthèse des préconisations techniques pour une diminution des flux d'ETM en sortie de toiture végétalisée 237

Figure 88 : Comparaisons des teneurs en eau observées et simulées via différents modèles avec le logiciel HYDRUS-1D sur janvier 2012 282

Figure 89 : Comparaisons des flux cumulés à l'exutoire pour différents modèles en janvier 2012283

Figure 90 : Comparaison de l'évapotranspiration calculée et des précipitations réelles sur 2012284

Figure 91 : Evolution des flux de zinc en sortie de toitures au fur et à mesure des cycles de simulation 286

Figure 92 : Impact de la hauteur de drainage sur les flux de zinc cumulé en sortie de toiture .. 286

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 - Flux (t an^{-1}) et sources d'ETM dans l'atmosphère 33

Tableau 2 - Variations des concentrations en ETM dans les eaux météoriques sur deux sites Lyonnais 34

Tableau 3 - Variabilité des flux atmosphériques globaux annuels d'ETM en France 34

Tableau 4 - Gammes de concentrations en ETM en sortie de toitures 35

Tableau 5 - Seuils et normes de qualité environnementales pour les métaux dans différentes réglementations en lien avec l'eau 37

Tableau 6- Caractéristiques des trois types de toitures végétalisées 41

Tableau 7 - Gamme de flux de nutriments et métaux en sortie de toitures végétalisées (min-max obtenus sur l'ensemble des sites recensés dans la littérature) 51

Tableau 8 – Gamme de concentrations en nutriments dans les eaux en sortie de toitures végétalisées comparées à celles de toitures classiques et à la réglementation (min-max obtenus sur l'ensemble des sites recensés dans la littérature) 52

Tableau 9 – Gamme de concentrations en métaux dans les eaux en sortie de toitures végétalisées comparées à celles de toitures classiques et à la réglementation (min-max obtenus sur l'ensemble des sites recensés dans la littérature) 53

Tableau 10 - Tendances principales vis à vis des métaux en sortie de toitures végétalisées 54

Tableau 11 - Impacts des substrats sans matériau de récupération sur les teneurs en métaux ... 58

Tableau 12 - Impacts des substrats avec matériaux de récupération sur les teneurs en métaux. 58

Tableau 13 - Incertitudes et biais de mesure liés à l'analyse des teneurs en ETM dans les substrats et l'argile expansée 74

Tableau 14 - Limite de quantification et incertitude relative à 95% dans le cadre des mesures de concentrations en ETM à l'IFSTTAR Nantes 81

Tableau 15 - Concentrations molaires et massiques de Cu et Zn utilisées dans le cadre des essais d'isothermes de sorptions en batch 83

Tableau 16 - Nature et épaisseur de matériau utilisé dans le cadre des différents essais en colonne 85

Tableau 17 – Types d'essais réalisés et informations attendures pour la compréhension du comportement des toitures végétalisées vis-à-vis des ETM. 88

Tableau 18 - Caractéristiques générales des substrats et de l'argile expansée 96

Tableau 19 – Identification des principaux minéraux présents dans les substrats et l'argile expansée par diffraction aux rayons X 97

Tableau 20 - Capacités de sorption maximales des matériaux étudiées et biosorbants relevés dans la littérature 106

Tableau 21 - Coefficients de Langmuir pour la modélisation des isothermes de sorption du Cu et du Zn 107

Tableau 22 - Coefficients de Freundlich pour la modélisation des isothermes de sorption du Cu et du Zn 108

Tableau 23 - Coefficients d'Elovich pour la modélisation des cinétiques de sorption du Cu et du Zn par les trois substrats 110

Tableau 24 - Coefficients du modèle de pseudo-second ordre pour la modélisation des cinétiques de sorption du Cu et du Zn par l'argile expansée 111

Tableau 25 - Caractéristiques des courbes de percées de l'argile expansée et du substrat extensif selon les différentes modalités testées 123

Tableau 26 - Teneur en ETM et en éléments majeurs dans l'engrais incorporé en avril 2010 et équivalent en apport surfacique par m² 137

Tableau 27- Ratio concentration en MES en sortie / concentration en MES en entrée en sortie des différentes toitures au cours du temps 140

Tableau 28 - Concentrations ($\mu g\ L^{-1}$) en ETM dans les phases dissoute et particulaire des dépôts atmosphériques et des eaux en sortie de toitures expérimentales 142

Tableau 29 - Concentrations totales ($\mu g\ L^{-1}$) en ETM dans les dépôts atmosphériques et les eaux en sortie de toitures expérimentales 143

Tableau 30 - Evolutions des capacités épuratoire des différentes toitures de 2011 à 2013 et moyenne sur cette période 148

Tableau 31 - Différences entre les capacités épuratoires sur les phases dissoutes et particulaires des toitures 149

Tableau 32 - Coefficients de Pearson entre les teneurs initiales en ET dans les substrats et les teneurs dans les racines des végétaux ayant poussés dans ces substrats, prélevés en avril 2013 163

Tableau 33 - Ratio teneurs dans les végétaux / teneurs initiales dans les substrats 163

Tableau 34 - Corrélation entre les résultats obtenus à la sonde EDX pour les particules minérales et organiques sur la coupe de S. spurium et sur la lame de substrat extensif 199

Tableau 35 - Répartition des stocks d'ETM dans les différents compartiments des végétaux sur le substrat semi-intensif (% à +/- 10% près) 205

Tableau 36- Rapport entre quantités d'ETM stockées dans les plantes et différences de flux entrée/sortie sur les toitures expérimentales, quantités d'ETM totales et en phase dissoute apportées par l'atmosphère (% à +/- 10% près) 208

Tableau 37 - Coefficient de Pearson entre l'évolution au cours du temps des teneurs en matière organique et en ETM sur les profils des substrats des différentes parcelles végétalisées 209

Tableau 38 - Quantité d'ETM retenue sur les filtres géosynthétiques rapportées à la différence flux entrant - sortant des parcelles expérimentales (% à +/- 10% près) 211

Tableau 39 - Evolution des quantités extraites lors des deux étapes du test de lixiviation NF 12452 – 3 sur les matériaux et ETM montrant des émissions potentielles sur les toitures expérimentales ... 216

Tableau 40 - Teneurs totales et lixiviables d'ETM dans les argiles expansées présentes sur les toitures végétalisées expériementales, fabriquées en 2012 au Portugal et issues d'un site de production danois 220

Tableau 41 : Paramètres utilisés pour la modélisation des phénomènes hydrodynamiques 278

Tableau 42 : Paramètres utilisés pour la modélisation des phénomènes de transport 279

Tableau 43 : Paramètres utilisés pour la modélisation des phénomènes physico-chimiques 280

Tableau 44 : Jeux de paramètres hydrodynamiques obtenus par calage sur différentes périodes282

Tableau 45 : Performances des modèles C1 et C2 sur les différentes périodes de calage et de validation 284

INTRODUCTION

La gestion à la source des eaux pluviales est essentielle pour maîtriser la qualité de l'eau circulant dans la ville (Chocat *et al.*, 2003 ; US EPA, 2005). L'infiltration est souvent préconisée, or la protection des nappes d'eau souterraines contre l'introduction de polluants organiques et inorganiques reste une priorité. De plus, le développement de la récupération et de l'utilisation des eaux de pluie augmente les exigences de qualité et pose le problème de l'influence des techniques et des matériaux utilisés pour la couverture des bâtiments nouveaux ou rénovés. Les dépôts atmosphériques secs et humides n'étant pas exempts de polluants (Percot, 2012), des solutions permettant une rétention des ces éléments sont nécessaires.

A l'amont du parcours de l'eau dans la ville, les toitures jouent un rôle primordial sur cette qualité. La végétalisation de toiture, marché en développement en France, concerne aujourd'hui 5% des nouvelles toitures plates chaque année (Lassalle, 2012). La présence d'un « sol » et de végétaux, dont les capacités d'interception de polluants sont fréquemment utilisées pour le traitement des eaux (Sansalone *et al.*, 1995 ; Raskin *et al.*, 1997), pourrait favoriser la rétention des polluants apportés par l'atmosphère. Le lessivage par les eaux de pluie de polluants initialement présents dans les matériaux constitutifs de la toiture peut aussi influencer la qualité de l'eau en sortie (Köhler & Schmidt, 2003). Ainsi, la capacité d'une toiture végétalisée à épurer des eaux de pluie nécessite la prédominance du premier processus sur le second.

Un effet positif des toitures végétalisées sur la qualité de l'eau a été observé antérieurement (Steusloff, 1998), avec une limitation efficace des apports de nutriments aux cours d'eau (Köhler *et al.*, 2003). Mais l'impact des toitures végétalisées sur la qualité des eaux entrant dans le réseau pluvial n'est pas clairement démontré (Czemiel Berndtsson, 2010).

Les structures de végétalisation de toitures présentes aujourd'hui sur le marché sont dimensionnées essentiellement selon des critères pratiques, économiques et esthétiques. Si elles étaient conçues avec pour objectif la rétention des polluants atmosphériques, leur capacité d'interception de la pollution serait probablement plus importante (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2009). Ce constat a déjà pu être effectué sur des structures comparables, comme les zones humides où les structures construites pour la dépollution des eaux sont plus efficaces que les zones humides naturelles (Horne, 2000 ; Mays *et al.*, 2001). A ce jour, les publications dédiées à l'impact des toitures

végétalisées se sont attachées à caractériser la qualité des eaux en entrée et en sortie sans étudier les transferts de polluants au sein de la structure.

L'ensemble des processus de rejet et de rétention des polluants en toiture végétalisée est présenté dans la Figure 1. La compréhension de ces processus et mécanismes associés est essentielle pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées. Il en découle alors une série de questions scientifiques à l'amont des problématiques opérationnelles :

- *Les matériaux utilisés pour les toitures végétalisées sont-ils à l'origine de l'émission de polluants ?*
- *Quels mécanismes d'émission entrent en jeu et quelle est leur évolution attendue ?*
- *Quelles fonctions ont les couches de la toiture végétalisée dans la rétention des polluants ?*
- *La capacité de rétention est-elle compatible avec la durée de vie de la toiture ?*
- *Comment tester simplement la capacité de rétention et émission de ces matériaux?*

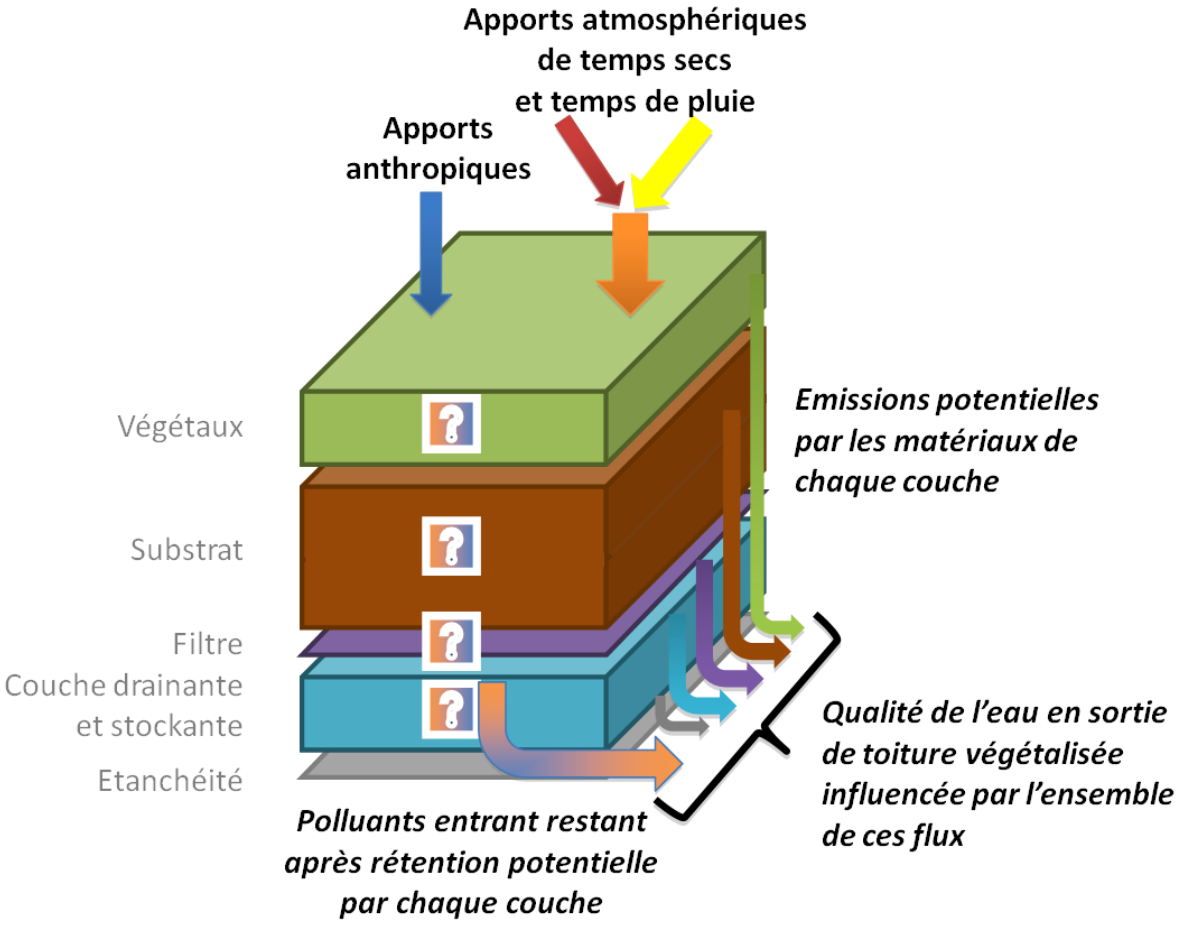


Figure 1 - Processus d'émission et de rétention

influençant la qualité des eaux issues de la toiture végétalisée

Pour aborder les différentes questions posées par la végétalisation des toits, le choix s'est porté sur certains éléments en traces métalliques (ETM), représentatifs des polluants inorganiques retrouvés dans les eaux pluviales urbaines. Les questions qui ont été étudiées étaient destinées à :

- comprendre les interactions entre les polluants et les matériaux, d'une part, et la circulation des eaux de pluie et les matériaux, d'autre part, qui induisent l'émission et la rétention d'ETM,
- déterminer l'origine de la capacité des matériaux à retenir ou rejeter des polluants, en prenant en compte l'évolution des matériaux au cours du temps,
- établir des préconisations techniques pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées à partir d'expérimentations in situ et en laboratoire.

Ce manuscrit est organisé en cinq parties (Figure 2).

Le premier chapitre de la **partie I** décrit, à partir de la littérature, le contexte de l'évolution de la gestion des eaux pluviales en rappelant les problématiques et les enjeux associés. Le potentiel des toitures végétalisées en tant qu'ouvrage de gestion quantitative et qualitative des eaux pluviales est étudié. Les connaissances sur la qualité des eaux en sortie de toiture ont été recensées pour évaluer l'impact des structures végétalisées. La synthèse bibliographique a permis d'identifier et de sélectionner les questions scientifiques exposées plus haut. Le second chapitre de cette partie présente la démarche expérimentale suivie pour répondre à ces questionnements. Les toitures expérimentales sur lesquelles est fondée l'approche *in situ* sont présentées. L'instrumentation, les prélèvements et les analyses réalisés sont détaillés tout comme les essais complémentaires conduits en laboratoire.

La **partie II** permet d'établir des hypothèses sur la capacité d'émission et de rétention des matériaux utilisés. Le premier chapitre présente les paramètres physico-chimiques généraux ainsi que des teneurs totales et extractibles en ETM des matériaux constitutifs de la structure. Un parallèle est établi avec les préconisations données dans le domaine de l'infiltration des eaux pluviales pour limiter le transfert de polluants vers les nappes souterraines. Ces hypothèses sont ensuite testées dans le second chapitre à partir d'essais fondés sur des techniques dérivées de la Science du Sol et du Génie des Procédés. La capacité de rétention du Cu et du Zn par les substrats et les matériaux de drainage est mesurée à partir d'essais en batch et en colonnes.

La **partie III** caractérise les concentrations et les flux d'ETM entrant et sortant des structures expérimentales, permettant ainsi d'évaluer l'impact réel des toitures végétalisées sur la qualité des eaux sur une période de deux ans. Cette partie a permis d'identifier le comportement des matériaux en tant que source ou puits d'ETM.

Des prélèvements de matériaux ont été réalisés en avril 2013 afin de caractériser l'évolution des structures sur cette période. Les résultats issus de cette campagne programmée en même temps que l'interruption du suivi de la qualité des eaux sont présentés dans la **partie IV**. Le premier chapitre est dédié à l'observation de l'évolution du couvert végétal des structures et des caractéristiques physico-chimiques des différents matériaux à l'échelle de la parcelle. Le chapitre suivant effectue un zoom sur une des parcelles végétalisées et complète les résultats précédents par des observations aux échelles mésoscopique et microscopique, permettant ainsi d'identifier certains paramètres responsables de l'évolution des structures.

Le croisement des résultats issus des toitures expérimentales avec les observations réalisées en laboratoire permet de mettre en avant dans le premier chapitre de la **partie V** les différents mécanismes induisant des rejets et rétentions d'ETM par les différents matériaux des structures expérimentales. Des hypothèses peuvent également être avancées par rapport à la durabilité des capacités de sorption et à l'évolution des rejets au cours du temps.

Enfin, la **discussion générale** permet de synthétiser l'ensemble de ces résultats en représentant le cycle des ETM au sein de la structure, en précisant les mécanismes mis en jeu et les évolutions envisageables. Des paramètres complémentaires à prendre en compte dans l'évaluation de l'impact des toitures végétalisées sur la qualité des eaux pluviales et des perspectives de poursuites des travaux sont également présentés. L'ensemble des préconisations techniques issues de ces résultats qui aideront à la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées est récapitulé dans cette dernière partie.

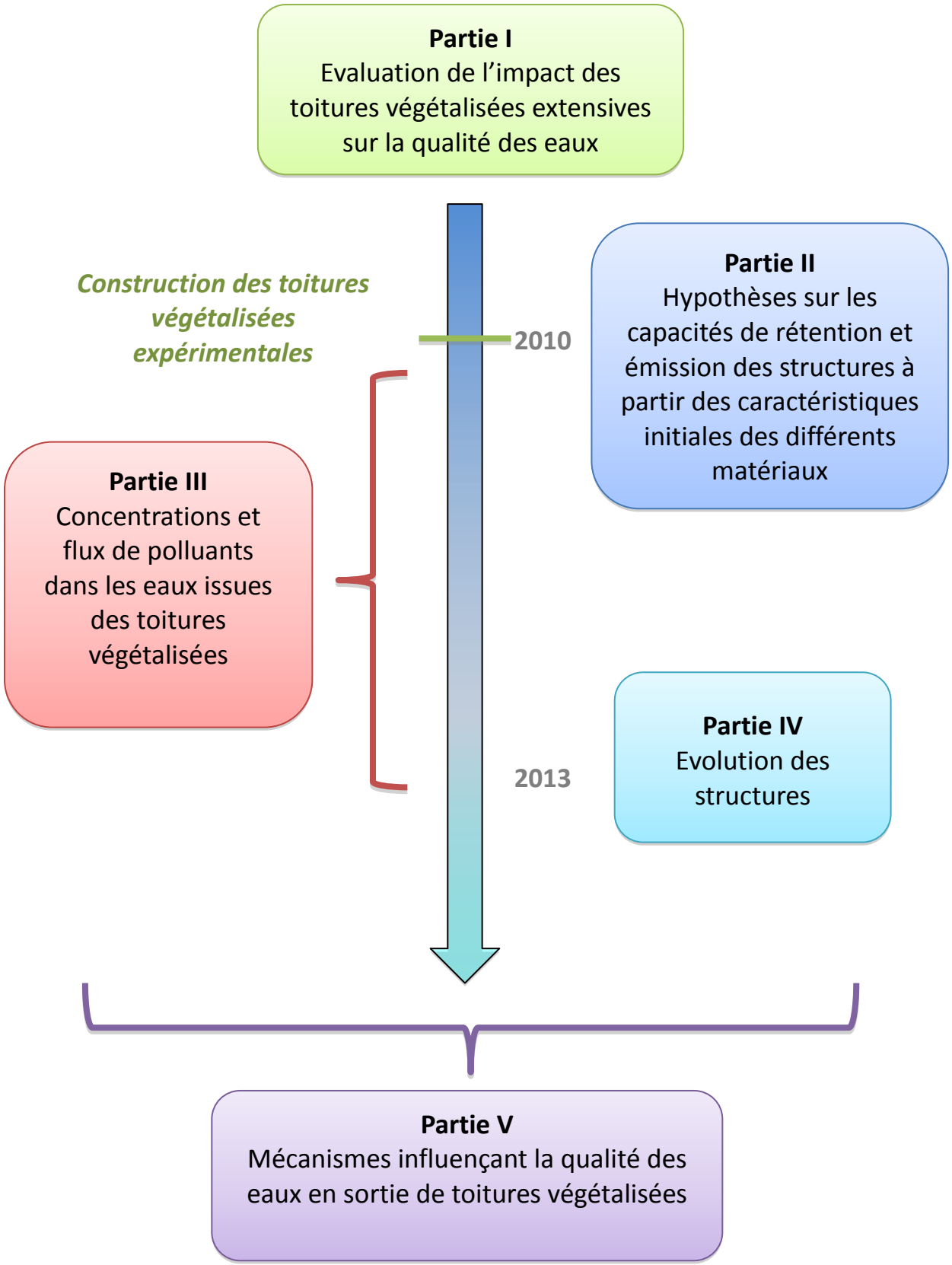


Figure 2 - Plan schématisé du rapport de thèse

PARTIE I

EVALUATION DE L'IMPACT DES TOITURES VEGETALISEES EXTENSIVES SUR LA QUALITE DES EAUX

Cette première partie proposera dans un premier de faire un état de l'art en termes d'impacts des toitures végétalisées sur la qualité des eaux pluviales et de replacer cette thématique dans le contexte plus générale de la gestion quantitative et qualitative des eaux pluviales en milieu urbain. Cette première étape permettra d'identifier les problématiques scientifiques auxquelles il faudra répondre pour concevoir des toitures végétalisées permettant d'améliorer la qualité des eaux. Les parcelles expérimentales, l'instrumentation et les expérimentations réalisées pour y répondre seront présentées dans le second chapitre de cette partie.

Chapitre 1 : Une conception actuelle des toitures végétalisées non-adaptée à une diminution des rejets de polluants

Afin d'atteindre les objectifs ambitieux de bon état chimique des eaux introduits en Europe par la Directive Cadre sur l'Eau 2000/60/CE, le contrôle des flux de polluants est essentiel. Les rejets urbains sont en effet reconnus comme une source majeure de polluants dans les eaux de surface et les dépôts atmosphériques peuvent représenter une part non négligeable de ces flux pour certains polluants comme le zinc (Lamprea & Ruban, 2008 ; Percot, 2012). 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.

La végétalisation de toiture se développe de façon importante en France depuis le début des années 2000. Beaucoup de professionnels du domaine avancent comme argument la capacité de gestion quantitative et qualitative des eaux pluviales. 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], des fonctions de rétentions des polluants atmosphériques sont fréquemment attendues. Pour que les politiques publiques puissent appuyer le développement de cette technique en se basant sur ces fonctions, il est important de vérifier qu'elles soient véritablement démontrées. Cela peut se baser sur une comparaison par rapport aux objectifs présents dans les réglementations concernées mais également par rapport aux couvertures classiques présentes sur les toitures.

1.1 Enjeux de la qualité des eaux en sortie de toitures

1.1.1 Les éléments en traces métalliques

Définition

Les éléments en traces sont les 68 éléments minéraux présents dans la croûte terrestre avec une concentration inférieure à 0,1% pour chacun d'entre eux, représentant au total 0.6% de sa composition, le reste étant constitué de 12 éléments majeurs. Parmi eux se trouvent notamment les éléments parfois appelés « métaux lourds ». Cette dénomination à la connotation péjorative n'est pas pertinente

notamment du fait de la présence de métalloïdes comme As et d'espèces de faible masse volumique (Baize, 1997).

Certains de ces éléments sont des contaminants stricts, non nécessaires aux êtres vivants pour assurer leur développement comme Pb, Cd et Hg pour l'homme. D'autres sont des oligo-éléments, indispensables aux êtres vivants, et différents pour les animaux (Cu, Zn, Se, Cr et Mo pour l'homme) et les végétaux : B, Co, Cu, Mo, Ni et Zn (Chassin *et al.*, 1996). Cependant, une exposition à forte dose ou chronique à ces oligo-éléments peut également s'avérer toxique (Tremel-Schaub et Feix, 2005). Bien que contenant également des métalloïdes comme l'arsenic (As), ces éléments sont généralement regroupés sous l'appellation « éléments en traces métalliques » (ETM) qui sera également utilisée par la suite.

Impacts des ETM sur le vivant

L'impact de ces ETM sur la faune et la flore dépendra bien entendu de leur toxicité mais également de leur biodisponibilité.

La biodisponibilité d'une substance correspond à sa capacité à être prélevée par les organismes vivants (Juste, 1988). Celle-ci dépend de la spéciation de l'élément considéré dans le milieu, qui est influencée par de nombreux paramètres physico-chimiques comme le pH, le Eh, la concentration en ions majeurs ou encore la concentration en matière organiques dissoute (Tack *et al.*, 2008). Dans le cas d'une plante par exemple, les ions assimilables sont ceux présents en solution et la part des ions susceptibles de passer en solution, via des mécanismes d'échange d'ions notamment, au cours de la période de croissance de la plante (Figure 3).

La toxicité des ETM dépend de l'organisme (Annexe I) et de la quantité à laquelle il est soumis ponctuellement ou de façon chronique. Chez l'homme, les métaux peuvent être responsables de maladies cardiovasculaires, de pathologies immunologiques, d'affections dermatologiques, de perturbations des systèmes endocriniens et reproducteurs ainsi que d'atteintes du système nerveux central pouvant avoir des effets neurologiques et psychiatriques (Huss, 2011). Beaucoup ont également des effets cancérigènes (Ghorbel Ben Abid, 2012).

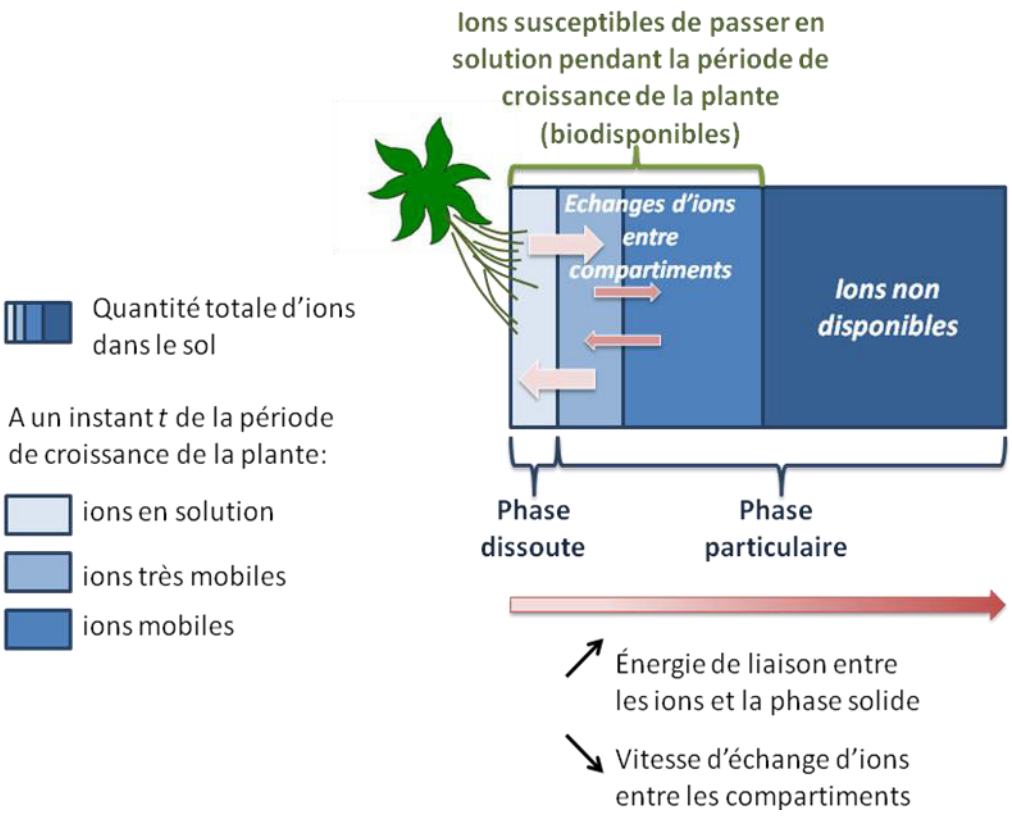


Figure 3 – Répartition et évolution de la biodisponibilité des ions dans le sol au cours de la période de croissance de la plante. Adapté de Morel (1997 a et b)

1.1.2 Phénomènes induisant la contamination des eaux pluviales en ETM

Lors du passage dans l'atmosphère

Origine et flux de polluants atmosphériques

Les polluants présents dans l'atmosphère peuvent être d'origines naturelles ou anthropiques.

Les sources naturelles sont l'érosion de la croûte terrestre qui peut contenir des teneurs non négligeables en ETM, le volcanisme (de 20 à 40% selon les ETM) et les feux de forêts (>10% dans certaines régions du monde (Nriagu *et al.*, 1988 ; Robert-Sainte, 2009)).

La part prépondérante des polluants dans l'atmosphère provient des activités anthropiques (Nriagu, 1990). Selon les éléments, les sources principales sont la combustion pour la production de chauffage et d'électricité, la production de métaux non ferreux et ferreux, la production de ciment et l'incinération de déchets et la circulation automobile (Tableau 1), (Legret, 2001). La combustion d'essence a été longtemps une source importante de plomb, jusqu'à l'apparition de l'essence sans plomb depuis le début des années 2000. Pour autant les émissions ne sont pas totalement supprimées, les essences n'étant pas totalement exemptes de plomb (Pacyna *et al.*, 2007).

Tableau 1 - Flux (t an^{-1}) et sources d'ETM dans l'atmosphère

		As	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Echelle mondiale	***Flux annuels naturels à l'échelle mondiale***	12000	1300	44000	54000	30000	12000	86000
	Flux annuels anthropiques à l'échelle mondiale	19000	7600	30000		56000	332000	
Echelle européenne	***Flux annuels anthropiques à l'échelle européenne en 2000***	763	590	2700	2111*	3795	1623	7393*
	Production d'électricité et de chauffage	51,2	62,2	51,4	61,6	79,1	12,3	25,7
	Production de métaux non ferreux	17,3	8,8	2,0	27,1	1,0	11,2	49,0
	Production de fer et d'acier	14,9	7,8	21,0	2,5	3,6	17,3	10,5
	Incinération de déchets	0,3	1,5	0,0	0,0	0,3	0,9	7,4
	Cimenterie et autres sources	16,3	19,7	25,5	8,9	16,0	6,8	7,4
	Combustion de l'essence	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	51,5	0,0

**Données de 1995 (Pacyna & Pacyna, 2001)*

Source : ***NRIAGU et al. (1988) ; NRIAGU (1990) ; PACYNA et al. (2001 ET 2007)***

Les ETM se trouvent dans l'atmosphère essentiellement en phase particulaires. Selon les conditions météorologiques, la nature et surtout la taille des particules, le temps de résidence dans l'atmosphère (quelques min à 10 jours) et la distance de transport sont fortement variables (quelques m à des milliers de km) (Azimi, 2004).

Contamination des eaux de pluie

Les particules peuvent contaminer l'eau de pluie via deux processus distincts : le « *rain-out* », qui correspond à la capture des aérosols par les gouttelettes d'eau nuageuses en cours de formation, et le « *wash-out* », ou piégeage des particules lors d'un événement pluvieux par capture à la suite de chocs ou par entraînement de l'air déplacé lors de la chute des gouttes (Flament, 1985 dans Azimi, 2004).

Du fait de la variabilité des sources et des temps de séjours dans l'atmosphère ou encore de la variabilité saisonnière de sources comme le chauffage (Azimi *et al.*, 2003), les teneurs en ETM dans les eaux de pluie fluctuent dans le temps et dans l'espace (Dembélé *et al.*, 2008). Ces auteurs ont observé sur deux sites expérimentaux en région lyonnaise des teneurs non négligeables en Cu et Zn (Tableau 2).

Ainsi, le passage dans l'atmosphère peut représenter de 15 à 25% des apports de polluants aux rejets urbains de temps de pluie (Barraud, 2009 ; Percot, 2012) voire même 30% pour Zn (Gasperi *et al.*, 2014).

Tableau 2 - Variations des concentrations en ETM dans les eaux météoriques sur deux sites Lyonnais

Concentrations min et max observées dans les eaux météoriques (µg L^{-1})	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Sb	Zn
Chassieu	0,2-2	2,1-4	0,04-0,4	1-10,5	30-50	2,1-7	3-17	0,5-2	50-400
Ecully	0-0,2	0-7	0-0,2	0,2-2,5	20-175	0,5-8	0-20	0,2-1	20-27

*Source : **DEMBELE et al. (2008**).*

Lors du ruissellement sur la toiture

Lessivage des dépôts atmosphériques secs

Les particules atmosphériques qui ne sont pas emportés par la pluie quittent l'atmosphère sous forme de retombées sèches. C'est d'ailleurs le mode de dépôts préférentiel pour la majorité des ETM et notamment Cd, Cu, Pb et Zn (Garnaud *et al.*, 2001 ; Azimi, 2004). Les toitures accumulent donc une certaine quantité d'aérosols déposés par temps sec qui seront lessivés lors de la pluie suivante et contribueront à la contamination de cette eau pluviale.

Les flux cumulés de dépôts de temps secs et de temps de pluie sont très variables, pour les mêmes raisons que celles expliquant la variabilité des teneurs dans les eaux météoriques seules, et peuvent également représenter des apports considérables en ETM de l'ordre de plusieurs dizaines de mg L^{-1}, même en France où la plupart des émissions de polluants réalisées restent contrôlées (Tableau 3).

Tableau 3 - Variabilité des flux atmosphériques globaux annuels d'ETM en France

Flux atmosphérique global annuel (mg m^{-2} an^{-1})	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Paris (Garnaud et al., 2001)	1,10		24,7	11,3	1,4	112,9
Vouzon – 41 (Azimi, 2004)			0,5		0,4	3,3
Nantes (Lamprea, 2009)	0,15	2,9	3,4	2,1	0,7	23,7

Apports de polluants par les matériaux de la toiture

Les matériaux utilisés en couverture de bâtiments et les produits utilisés pour leur entretien peuvent constituer des sources de polluants emportés par les eaux. Les couvertures métalliques, particulièrement présentes dans certaines villes françaises (e.g. 40 à 50% des toits de Paris), sont une source importante de polluants métalliques. En milieu urbain, les conditions sont particulièrement favorables à la corrosion atmosphérique qui produit des composés plus ou moins solubles en fonction du matériau. Des émissions annuelles de Pb, Cu et Zn de l'ordre de plusieurs g par m² ont été observées selon la nature des matériaux considérés (Robert-Sainte, 2009). L'entretien des surfaces par traitements anti-mousse, imperméabilisants ou la rénovation de la peinture a également été identifié comme une source de polluants dans les eaux pluviales, en termes de molécules organiques et notamment de biocides (chlorure de benzalkonium), pendant les mois suivant le traitement. Certains produits de traitement recensés contenaient également des métaux comme du zinc sous forme de pyrithione de zinc (Van de Voorde, 2012). Leur impact spécifique n'a pas été étudié mais ce type de produits pourrait également être sources d'ETM dans les eaux en sortie de toitures.

Ordres de grandeurs des concentrations en ETM en sortie de toitures

Ainsi, les apports de polluants par les matériaux et les pratiques d'entretien de la couverture du bâtiment, couplés à ceux provenant de l'atmosphère induisent des teneurs non négligeables en ETM dans les eaux en sortie de toitures comme le montre cette liste non exhaustive de documents fournissant des concentrations en ETM en sortie de toitures (Tableau 4).

Tableau 4 - Gammes de concentrations en ETM en sortie de toitures

Concentrations en sortie de toitures (µg L^{-1})	**Zobrist *et al.* (2000)**	**Gromaire *et al.* (2001)**	**Chang *et al.* (2004)**	**Lamprea & Ruban (2008)**	**Barraud *et al.* (2009)**
Cd	0,07-0,10	0,7		<ld – 4	0,7
Cu	71-217	43	1-5410	<ld – 25	27-235
Cr	0,44-0,6			<ld – 10.5	
Ni				<ld – 17	
Pb	4,9-13	392	25-700	< ld -650	23-104
Zn	10-27	2998	39-212330	< ld - 8000	24-900

Ld : limite de détection

1.1.3 Devenir des eaux de toitures

En dehors du réseau unitaire classique qui débouchera en station d'épuration, il existe trois principales stratégies de gestion des eaux en sortie de toiture.

Evacuation par le réseau d'eaux pluviales

Le développement des réseaux séparatifs a permis de limiter les variations ponctuelles de volume et nature des effluents arrivant en entrée de stations d'épuration, permettant ainsi d'en optimiser le fonctionnement. Cependant, les rejets urbains de temps de pluie ont été identifiés comme une source importante d'apports de certaines substances prioritaires définies par la *Directive Cadre sur l'Eau 2000/60/CE* pour le milieu aquatique (National Research Council, 2008 ; Lamprea & Ruban, 2008). Les rejets d'eaux pluviales dans le milieu naturel et les masses d'eaux de surface et souterraine sont donc surveillés et soumis à une procédure au titre de la loi sur l'eau en particulier dans le cadre de la *Rubrique 2.1.5.0 de la nomenclature de l'article R. 214-1 du code de l'environnement*. Pour rendre leur avis, les Services Police de l'Eau chargés de la réception des dossiers de déclaration et autorisation se fondent notamment sur la *Directive Cadre sur l'Eau* qui impose des objectifs de bon état écologique et chimique à atteindre d'ici 2015 avec possibilité de délai sous réserve de justification de la non-atteinte à l'issue de cette première échéance.

L'atteinte du bon état chimique des eaux de surface est conditionnée par le non-dépassement de normes de qualité environnementales (NQE) maximales et moyennes annuelles associées à une liste de substances prioritaires. Composées de différents micropolluants inorganiques et organiques (phytosanitaires, hydrocarbures, polluants industriels…), cette liste comportait à l'origine trente-trois substances (*Directive 2008/105/CE*) puis douze nouvelles ont été ajoutées en 2013 (*Résolution législative du Parlement européen du 2 juillet 2013 sur la proposition de directive du Parlement européen et du Conseil modifiant les directives 2000/60/CE et 2008/105/CE* en ce qui concerne les substances prioritaires pour la politique dans le domaine de l'eau). Quatre ETM sont inclus dans cette liste : Cd, Hg, Ni et Pb. Les concentrations sont mesurées sur la phase dissoute pour Cd et Hg, puisqu'elle a généralement un impact plus important sur la faune et la flore en milieu aquatique (Makepeace *et al.*, 1995). Pour Pb et Ni, les NQE maximales admissibles ont été abaissées en 2013 et les mesures doivent être réalisées de façon à estimer la part biodisponible des substances. Ces seuils sont fixés par le Parlement européen de façon à protéger le biote aquatique. Concernant l'état chimique des eaux souterraines, une première liste de substances et de valeurs seuils nationales par défaut a été établie par l'*arrêté du 17 juillet 2009 relatif aux mesures de prévention ou de limitation des introductions de polluants dans les eaux souterraines* et la *circulaire d'application du 23 octobre 2012* associée. Celle-ci comprend dix métaux et métalloïdes (As, B, Cd, Cr, Cu, Fe, Hg, Ni, Pb et Zn) dont les normes associées sont indiquées dans le Tableau 5. La liste des substances et les seuils pourront être

progressivement adaptés à la vulnérabilité spécifique des différentes masses d'eau souterraines. Le bon état chimique est atteint lorsque ces seuils ne sont pas dépassés.

Tableau 5 - Seuils et normes de qualité environnementales pour les métaux dans différentes réglementations en lien avec l'eau

Seuils et normes relatives aux métaux dans différentes réglementation en lien avec l'eau	NQE Maximale Admissible – Etat chimique ou écologique (substances spécifiques) des eaux de surface (µg L^{-1}) [1]	Valeurs seuils nationales par défaut - Etat chimique des eaux souterraines (µg L^{-1}) [2]	Limites et références de qualité des eaux destinées à la consommation humaine (µg L^{-1})[3]	Limites de qualité des eaux douces superficielles utilisées pour la production destinée à la consommation humaine selon les groupes (µg L^{-1})[3]
As	4,20	10	10	10 à 50
B		1000	1000	1000
Cd	0,08	5	5	1 à 5
Cr	3,40	50	50	50
Cu	1,40	2000	2000	20 à 50
Fe		200	200	100 à 2000
Hg	0,05	1	1	0,5 à 1
Ni	4,00*	20	20	
Pb	1,20*	10	10	10 à 50
Sb		500	5	
Zn	3,1 ou 7,8 selon concentration en $CaCO_3$	5000		500 à 5000

**Evaluation de la part biodisponible.*

L'état écologique des eaux de surface est l'expression de la qualité de la structure et du fonctionnement des écosystèmes aquatiques associés aux eaux de surface. Les éléments de qualité biologiques sont évalués dans un premier temps puis des éléments de qualité physico-chimiques et

[1] *Arrêté du 25 janvier 2010 relatif aux méthodes et critères d'évaluations afin de déterminer respectivement le bon et le très bon état de la masse d'eau et Résolution législative du Parlement européen du 2 juillet 2013 sur la proposition de directive du Parlement européen et du Conseil modifiant les directives 2000/60/CE et 2008/105/CE en ce qui concerne les substances prioritaires pour la politique dans le domaine de l'eau*

[2] *Circulaire du 23 octobre 2012 relative à l'application de l'arrêté du 17 décembre 2008 établissant les critères d'évaluation et les modalités de détermination de l'état des eaux souterraines et des tendances significatives et durables de dégradation de l'état chimique des eaux souterraines*

[3] *Arrêté du 11 janvier 2007 relatif aux limites et références de qualité des eaux brutes et des eaux destinées à la consommation humaine mentionnées aux articles R. 1321-2, R. 1321-3, R. 1321-7 et R. 1321-38 du code de la santé publique*

hydromorphologiques leur sont agrégés selon règles définies dans l'arrêté du *25 janvier 2010 relatif aux méthodes et critères d'évaluations afin de déterminer respectivement le bon et le très bon état de la masse d'eau* et précisées dans la *circulaire du 29 janvier 2013*. Concernant les paramètres physico-chimiques, chaque Etat peut définir une liste de substances spécifiques et des NQE associées selon les problématiques environnementales spécifiques à son territoire. Dans le cadre de l'arrêté du 25 janvier 2010 cité ci-dessus, neuf substances ont été ajoutées pour la France métropolitaine dont quatre métaux : As, Cr, Cu et Zn. Les mesures sont à réaliser sur la partie dissoute et les NQE moyennes annuelles actuellement fournies sont provisoire car elles ne correspondent pas pleinement à la définition d'une NQE. Elles ne sont protectrices que pour les organismes de la colonne d'eau et ne prennent notamment pas en compte l'intoxication secondaire, comme précisé dans l'arrêté.

Un état des lieux de la qualité des masses d'eaux en Europe a montré qu'en 2009 les métaux étaient la principale cause de déclassement de l'état chimique des masses d'eaux de surface dans onze pays européens (CGDD, 2012). Le contrôle et la limitation des apports de polluants métalliques au milieu naturel, notamment via les rejets urbains de temps de pluie, est donc essentiel pour répondre aux objectifs de bon état des masses d'eaux fixés par les réglementations européennes et nationales. Or il a été démontré que les eaux de toiture étaient responsables d'une part prépondérante des apports en métaux dans les eaux de ruissellement et notamment de l'ordre de 65% pour Cu et de 90% pour Cd, Pb et Zn dans le quartier du Marais à Paris (Gromaire, 1998). Lamprea (2009) a également montré que certaines toitures constituent des sources importantes de Pb et Zn.

Gestion à la source – infiltration

Pour limiter les apports ponctuels importants d'eaux pluviales au milieu naturel, de plus en plus de documents d'aménagements et de guides de bonnes pratiques encouragent une gestion le plus à l'amont possible et notamment à leur infiltration à la parcelle, lorsque celle-ci est techniquement envisageable. Même si les volumes concernés sont individuellement moindres que dans le cas d'une gestion en réseau séparatif comme évoqué dans le paragraphe précédent, le cumul d'infiltration à la parcelle peut représenter des volumes conséquents. Il est donc important de veiller à ce qu'ils ne compromettent pas l'atteinte du bon état chimique des eaux souterraines, par l'apport de polluants métalliques notamment.

La plupart des études démontrent que dans un contexte d'infiltration des eaux pluviales les polluants sont arrêtés dans le premier mètre voire les premiers décimètres de sols (Citeau, 2006). Cependant, des transferts de polluants sur une plus grande profondeur ont été observés, notamment pour des métaux issus de toitures (Mason *et al.*, 1999). En outre, l'injection de traceurs conservatifs comme Sr^{2+} a montré qu'une remise en solution d'ETM issus d'une eau de toiture initialement sorbés dans le sol dans un contexte d'infiltration restait possible (Ammann *et al.*, 2003).

Récupération et utilisation

*L*a récupération et utilisation des eaux pluviales se développent en complément des deux pratiques évoquées précédemment. Elle est encadrée par l'*arrêté du 21 août 2008 relatif à la récupération des eaux de pluie et à leur usage à l'intérieur et à l'extérieur du bâtiment*, qui définit notamment la nature des toitures dont les eaux peuvent être récupérées (toitures inaccessibles autre qu'en amiante-ciment ou en plomb) et les usages autorisés comme l'arrosage des espaces verts en extérieurs ou encore l'utilisation dans les WC en intérieurs. Aucun seuil de qualité n'est cependant défini à ce jour. Certains pays comme la Grande-Bretagne ont défini des normes pour certains paramètres (BS 8515 :2009) mais pas pour les métaux.

Pourtant des risques sanitaires potentiels sont présents dans le cadre d'usage à l'intérieur du bâtiment en lien avec la qualité bactériologique des eaux notamment (Vialle, 2011). Les usagers et riverains des bâtiments concernés peuvent également entrer en contact avec ces eaux directement dans le cadre d'un arrosage, d'une aspersion ou encore d'un lavage et indirectement via la consommation de légumes irrigués. Or l'arrosage de plantes potagères avec des eaux contaminées, dont les teneurs en certains ETM comme le Cu et Zn étaient dans les gammes de ce que l'on peut trouver en sortie de certaines toitures, induit des teneurs en métaux élevés dans les parties consommables des végétaux (Amin *et al.*, 2013). Un projet de recherche ANR (JASSUR) visant notamment à l'évaluation de l'impact de la qualité des eaux récupérées et utilisées pour arroser les plantes potagères dans des jardins familiaux a d'ailleurs débuté en 2013. A titre d'information, les valeurs seuils relatives aux eaux destinées à la production d'eaux potables issues de l' *Arrêté du 11 janvier 2007 relatif aux limites et références de qualité des eaux brutes et des eaux destinées à la consommation humaine mentionnées aux articles R. 1321-2, R. 1321-3, R. 1321-7 et R. 1321-38 du code de la santé publique* ont été rapportées dans le Tableau 5. Les autres réglementations qui pourraient se rapprocher des usages faits de ces eaux comme la *Directive 2006/7/CE concernant la gestion de la qualité des eaux de baignade* ou encore *l'arrêté du 2 août 2010 relatif à l'utilisation d'eaux issues du traitement d'épuration des eaux résiduaires urbaines pour l'irrigation de cultures ou d'espaces verts ne contiennent pas de seuils vis-à-vis des polluants métalliques*.

Les stratégies de gestion des eaux pluviales et réglementation visant à la protection des masses d'eaux soulignent la nécessité de l'obtention d'une eau en sortie de toiture ne contenant pas des teneurs en métaux trop élevées. Les techniques classiques de couvertures étudiées à ce jour induisant des fortes concentrations dues au lessivage des apports atmosphériques et aux rejets de substances présentent dans les matériaux de construction, il serait intéressant de se tourner vers de nouvelles techniques qui permettraient de limiter ces flux de polluants. Du fait de la présence d'un sol et de

végétaux, parfois utilisés en dépollution des eaux, les toitures végétalisées sont souvent identifiées comme des filtres potentiels, mais qu'en est-il vraiment ?

1.2 Le rôle des toitures végétalisées dans la gestion des eaux pluviales

1.2.1 Les toitures végétalisées en France

Qu'est ce qu'une toiture végétalisée ?

La végétalisation des toitures est une technique millénaire si l'on en croit les récits des jardins de Babylone. Il faudra cependant attendre le XX^{ème} siècle pour que cette technique se développe véritablement grâce aux progrès réalisés dans le domaine de la construction (mise en œuvre de béton armé, allègement des structures végétalisées grâce à l'utilisation de nouveaux matériaux). Cette technique est désormais encadrée par des guides professionnels, notamment le guide allemand de la Société pour la promotion et l'innovation dans le domaine du paysage (FLL, 2008) qui fait office de référence au niveau mondial, complété par un guide français réalisé par l'ADIVET (Association pour le Développement et l'Innovation en Végétalisation Extensive de Toiture) en partenariat avec des professionnels du bâtiment ou encore du paysage (ADIVET *et al.*, 2007).

Toutes les toitures végétalisées sont construites sur le même schéma multicouches (Figure 4) : support (béton, bois, métallique...), étanchéité munie d'une protection anti-racine, drainage, substrat puis végétaux. Il existe trois types de toitures végétalisées qui diffèrent essentiellement par rapport à l'épaisseur du substrat et aux végétaux plantés (Tableau 6). Divers matériaux peuvent être utilisés dans les substrats et matériaux drainants : naturels ou synthétiques, éventuellement issus du recyclage, minéraux (matériaux de déconstructions, pouzzolane, argile expansée, ardoise, perlite…) ou organiques (compost, tourbe, écorces, fibre de coco…) (Dunnet & Kingsbury, 2008).

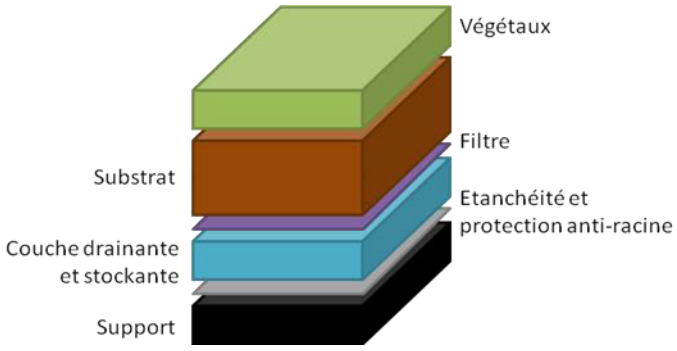


Figure 4 - Structure multicouches d'une toiture végétalisée

Tableau 6- Caractéristiques des trois types de toitures végétalisées

Caractéristiques des toitures végétalisées	Extensive	Semi-intensive	Intensive
Epaisseur du substrat (cm)	4 à 15	12 à 30	>30
Nature du substrat	Substrat léger	Substrat léger adapté aux végétaux introduits (teneur en matière organique souvent plus importante que pour l'extensive par ex.)	Terre
Poids global (kg m^{-2})	60 à 180	150 à 350	>600
Support admissible*	Béton, acier, bois	Béton, acier, bois	Béton
Choix de la végétation	Restreint, essentiellement des sedums et graminées	Large : vivaces, graminées, plantes arbustives.	Très large et notamment des arbres
Entretien	Faible	Moyen	Important
Arrosage après installation de la végétation	Aucun, sauf climat à faible pluviométrie (par ex. méridional)	Nécessaire	Nécessaire
Exemples observées dans une même ville (Nancy)			

**à vérifier selon la portance propre spécifique au support de chaque projet*

Adapté d'ADIVET et al. (2007) et www.adivet.net

Développement et caractéristiques du marché

En Allemagne, plus de 12 % des toitures terrasses sont aujourd'hui végétalisées (Lassalle, 2008). La forte progression observée durant ces dix dernières années provient des aides financières octroyées par 40% des villes allemandes. En France, la surface de toitures végétalisées progresse chaque année, passant ainsi de 400 000 m² construits entre 1990 et 2000 à plus de 500 000 m² sur 2008. Le million de mètres carrés a été atteint fin 2010 (Figure 5). En outre, la France possède 22 millions de m² de toitures

étanches potentiellement végétalisables. Cette technique est incluse petit à petit dans les documents d'urbanisme et a, par exemple, été récemment inscrite aux PLU (Plan Locaux D'urbanisme) et Agenda 21 d'agglomérations telles que Paris ou Nancy. Elle est également intégrée de plus en plus fréquemment dans les projets de rénovations urbaines de grande envergure comme le projet d'écoquartier Nancy Grand Coeur.

Le type de végétation prédominant à ce jour en France est la végétalisation extensive (Figure 6). Elles sont en effet une alternative intéressante aux couvertures classiques, puisqu'elles n'impliquent pas de coûts, de travaux (de consolidation de toit par exemple) ou d'entretien supplémentaires trop importants contrairement aux toitures intensives. Selon l'ADIVET (2010), la plupart des toitures sont réalisées par des maîtres d'ouvrage publics (75%) sur des bâtiments neufs (90%).

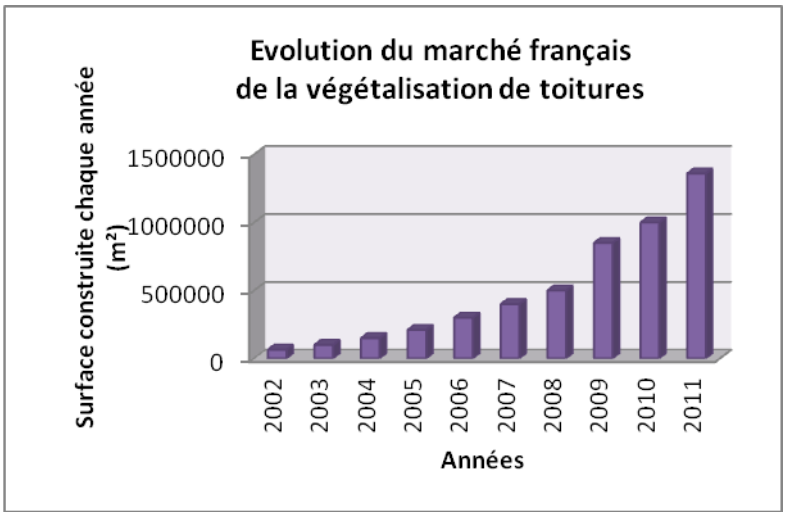


Figure 5 - Evolution du marché français de la végétalisation de toiture depuis 2002. Source : ADIVET

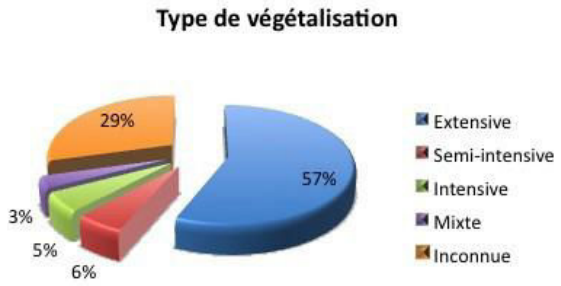


Figure 6 - Segmentation du marché de la végétalisation de toitures selon le type de végétalisation : exemple sur le territoire du Grand Nancy. Source : Ernewein (2010)

1.2.2 Gestion quantitative

Une fonction déjà intégrée dans l'aménagement du territoire

Parmi les fonctions les plus recherchées par les maîtres d'ouvrage et aménageurs dans le cadre de la réalisation d'une toiture végétalisée sur un bâtiment, la capacité de rétention des eaux pluviales figure dans les trois premières avec l'aspect esthétique ainsi que la thermique du bâtiment (Schwager *et al.*, 2013 a). De nombreuses autorités en charge de la gestion des eaux pluviales ont d'ailleurs rédigé des guides de préconisations pour la construction et la maintenance des toitures végétalisées (Virginia Deparment of Conservation and Recreaction, 2010 ; Eranthis, 2011). En outre certains gestionnaires de réseaux d'assainissement en France et en Allemagne, considèrent depuis de nombreuses années les toitures végétalisées comme une technique alternative de gestion des eaux pluviales et proposent des réductions de taxe de raccordement au réseau d'assainissement pour les bâtiments disposant de ce type de structures[4] (Ernewein, 2010).

Un intérêt global avéré sur l'année

De nombreuses études montrent que les toitures végétalisées ont un double effet en termes de gestion quantitative des eaux pluviales (Berthier *et al.*, 2010 ; Palla *et al.*, 2010). Elles permettent notamment de limiter considérablement le volume en sortie de toitures grâce à la rétention puis à l'évapotranspiration de l'eau par la structure, avec un abattement allant globalement de 35 à 70% avec une moyenne aux alentours de 55% selon Gregoire & Clausen, 2011 (Figure 7 – la ligne verticale représente la moyenne). Pour comparaison, des valeurs de l'ordre de 20% à 30% sont recensées pour les toitures plates classiques en gravier, ciment ou avec une étanchéité bitumineuse à nu (Liaw & Tsai, 2004 ; Lancaster, 2006 ; Ward *et al.*, 2010). D'autre part, ces structures atténuent le débit de pointe en sortie de l'ordre de 60 à plus de 80% et le retardent jusqu'à plusieurs heures grâce à la capacité de rétention des matériaux (Getter & Rowe, 2007 ; Palla *et al.*, 2010).

Les différences observées peuvent s'expliquer par les différentes méthodes de mesure et calcul utilisées ainsi que par le climat dans lequel se situent ces sites expérimentaux (Gregoire & Clausen, 2011). La nature des structures étudiées, comme le nombre et la nature des couches ou encore leur épaisseur, joue également un rôle important (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2010). Plusieurs auteurs mentionnent notamment le fait que l'augmentation de la hauteur du substrat permet d'améliorer les capacités de rétentions de la structure (Mentens *et al.*, 2006 ; Gregoire & Clausen, 2011). Une

[4] *Délibération du Conseil Communautaire du Grand Nancy, séance du 3 juillet 1992, délibération n°13. Objet : Modification des règlements des services des eaux et de l'assainissement - Nouveaux régimes des participations des constructeurs.*

simulation de la même structure avec différentes hauteurs de substrat montre ainsi une évolution de la capacité de rétention de 55 à près de 85% pour une augmentation de cette hauteur de 5 à 40 cm environ. Au-delà de 40 cm, la capacité de rétention semble cependant rester constante (Metselaar, 2012). Le rôle de la végétation dans ces phénomènes de rétention des eaux de pluie semble limité en comparaison de celui des autres matériaux de la structure et notamment du drainage (Czemiel Berndtsson, 2010).

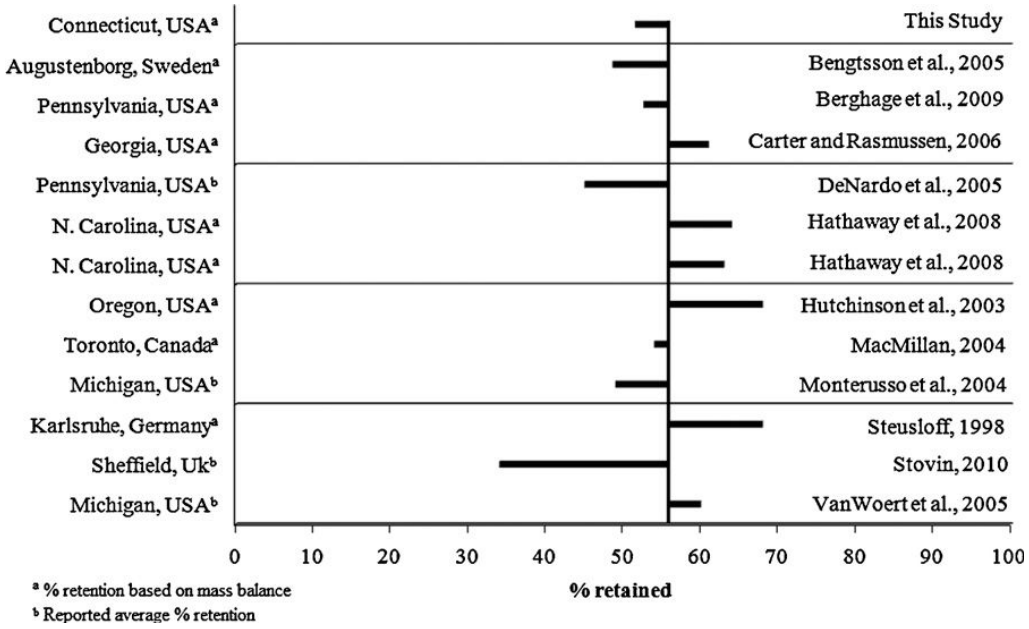


Figure 7 - Analyses des volumes de pluie retenus recensés dans le cadre de différentes études de toitures végétalisées. Source : Gregoire & Clausen, 2011

Une capacité de rétention variable selon les conditions météorologiques

Selon Carter et Rasmussen (2007), ces phénomènes d'abattement s'expliquent par un fonctionnement de la structure végétalisée assimilable à un espace de stockage qui, une fois saturée, retrouve un fonctionnement proche à celui d'une toiture terrasse classique (Ramier *et al.*, 2010).

Ainsi, selon les caractéristiques de l'événement pluvieux (durée et intensité) ou encore l'humidité initiale du substrat, liée aux pluies précédentes, l'impact de la structure végétalisée sera différent (Palla *et al.*, 2010). En effet, la saturation du volume de stockage pourra se produire plus ou moins rapidement, voire ne pas avoir lieu du tout. Ceci explique que les toitures végétalisées aient une meilleure capacité de rétention sur des petites pluies succédant à une période de temps secs (Czemiel Berndtsson, 2010 ; Gregoire & Clausen, 2011). Le suivi d'une toiture expérimentale a mis en évidence une évolution des fonctions de gestion quantitative des eaux pluviales au cours de trois jours de pluie consécutifs (Vergroesen & Joshi 2010). La capacité de réduction des volumes ruisselés est passée de

98,8% le premier jour à 13,6% le troisième, la réduction des débits de pointe de 98,9% à 41,9% et son retardement de 20,2% à 0,2%.

Toujours lié à cette notion de stockage limité variable selon l'état initial du substrat, de fortes variations des capacités de rétention ont été observées selon les saisons (Mentens *et al.*, 2006 ; Czemiel Berndtsson, 2010 ; Mestelaar, 2012). Par exemple, sur une toiture expérimentale une réduction des rejets minimale est observée en février de l'ordre de 19% et maximale en juin avec 88% des volumes entrant retenus (Bengtsson *et al.* 2005).

Impact potentiel pour la gestion des eaux pluviales à l'échelle de la ville

De plus en plus d'études de cas utilisant des outils de modélisation permettent d'évaluer l'impact de différents scénarios de végétalisation à l'échelle de la ville. Mentens *et al.* (2006) ont ainsi pu déterminer que la végétalisation de 10% des toits de Bruxelles permettrait de diminuer sur l'année de 2,7% le volume des rejets urbains de temps de pluie. Par ailleurs, la ville de Washington a lancé en 2005 une étude visant notamment à améliorer la qualité de l'*Anacostia river*, cours d'eau présent sur son territoire. Celle-ci a résulté en différentes propositions dont l'augmentation des surfaces de toitures végétalisées aboutissant au plan « 20-20-20 » qui vise à obtenir un ratio toiture végétalisée / surface totale de toit de 20% d'ici 20 ans, soit en 2017. Ceci permettrait de diminuer de 1,7% le volume des rejets de temps de pluie et de réduire de 15% le nombre de surverses de déversoirs d'orages dans l'Anacostia River (CNT, 2007).

Comme le soulignent Mentens *et al.* (2006), les toitures végétalisées peuvent donc être un outil utile pour la réduction des rejets urbains de temps de pluie mais il reste nécessaire de coupler ces structures à d'autres techniques afin d'optimiser la gestion des eaux pluviales à une échelle globale. En effet, si l'on peut être tenté d'augmenter les pourcentages de recouvrements évoqués ci-dessus pour diminuer les volumes rejetés, il est important de noter que tous les toits ne sont pas végétalisables. Une estimation des surfaces végétalisables par quartier a été menée sur deux bassins versants des Hauts-de-Seine, Châtillon et Boulogne-Billancourt, en croisant des données concernant l'usage et les surfaces des bâtiments (Versini *et al.*, 2013). Il a pu être observé que selon les quartiers, de 5 à 50% des toitures étaient potentiellement végétalisables, montrant ainsi les limites de l'augmentation des surfaces de toitures végétalisées en milieu urbain. Basées sur ces estimations, un scénario envisageant la végétalisation effective de 50% des toitures potentiellement végétalisables a été intégré à un modèle hydrologique. Cela permettrait de résoudre partiellement les problématiques de surverse de réseau, en limitant notamment de 30% les volumes déversés.

1.2.3 Gestion qualitative

Principaux phénomènes entrant en jeu

Selon Köhler *et al.* (2003), deux processus ayant une influence sur la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisées peuvent intervenir (Figure 8). Selon l'équilibre entre ces deux processus, la structure peut intervenir vis-à-vis des polluants comme :

- un puits du fait de la rétention (stockage, décomposition, adsorption) par le substrat ou les végétaux des polluants présents en phase dissoute dans les eaux de pluie ou sur les particules des dépôts de temps secs ou en suspension dans les eaux de pluie,
- une source du fait du relargage de substances suite à la lixiviation des matériaux constitutifs de la toiture végétalisée, particulièrement dans les premiers mois après la construction de la toiture.

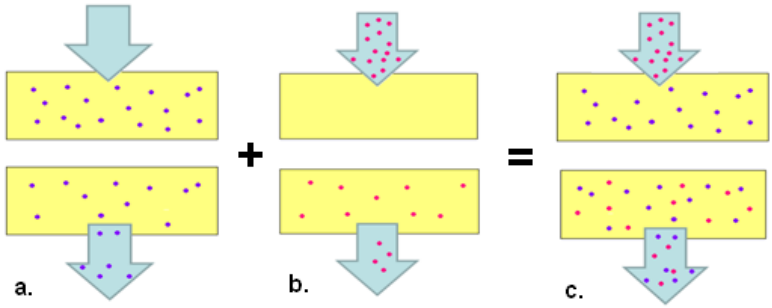


Figure 8 - Illustrations des deux principaux mécanismes influençant la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisées : a. source de polluants présents dans les matériaux ; b. puits de polluants apportés par les dépôts atmosphériques ; c. couplage

Or ces deux types de phénomènes peuvent également se coupler et complexifier la compréhension des mécanismes prépondérants (Figure 8). En outre, ceux-ci interviennent dans chacune des multiples couches de la structure végétalisée évoquée dans le paragraphe 1.2.1 de cette partie, rendant plus difficile l'analyse du rôle de chacun des matériaux.

Caractéristiques des études menées

Un nombre d'études restreint

Les premières études relatives à l'impact des toitures végétalisées sur la qualité des eaux pluviales ont eu lieu en Allemagne à partir de la fin des années 1990 (Steusloff, 1998 ; Köhler *et al.*, 2003). Puis cette thématique s'est développée en Suède sous l'impulsion de Czemiel Berndtsson qui a publié de nombreux articles dont un état de l'art sur les performances quantitatives et qualitatives des toitures végétalisées en termes de management des eaux pluviales (Czemiel Berndtsson *et al.* 2005, 2006,

2009 ; Czemiel Berndtsson, 2008, 2010). D'autres études ont également eu lieu en Amérique du Nord (Moran, 2005; Vander Linden, 2008 ; Gregoire & Clausen, 2011), Estonie (Teemusk *et al.*, 2007), en France (Seidl *et al.*, 2013) ou encore au Japon (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2009) mais leur nombre reste restreint. Ainsi, via ces différents travaux, 60 séries de données différentes issues de toitures végétalisées ont pu être recensées. Il s'agit soit de toitures différentes, soit parfois de toitures similaires étudiées à différentes périodes notamment pour les travaux de Czemiel Berndtsson. Dans l'état de l'art publié en 2010, Czemiel Berndtsson déplore notamment le manque de travaux sur une même toiture sur le long terme qui permettrait d'identifier clairement les variations en fonction des saisons ou encore de l'âge de la toiture.

Des toitures aux caractéristiques très différentes

Ces toitures ont des caractéristiques très différentes les unes par rapport aux autres concernant notamment:

- la nature des essais réalisés: essais sur des toitures grandeurs nature ou sur des planches expérimentales,
- l'environnement dans lequel elles se situent: industriel, résidentiel, commercial...
- les apports de polluants (nature et quantité) auxquels elles sont soumises,
- la nature et l'épaisseur des matériaux constitutifs de la toiture: végétaux, substrat, drainage...
- leur âge et les saisons auxquelles elles ont pu être étudiées,
- les pratiques d'entretien mises en œuvre (nature, fréquence, quantité de fertilisants apportés...).

Or toutes ces caractéristiques peuvent avoir un impact sur la qualité des eaux pluviales (Czemiel Berndtsson, 2010). Ainsi pour chacune des soixante séries de données répertoriées, les informations disponibles ont été recensées, afin de pouvoir évaluer l'impact de ces différentes caractéristiques via l'analyse de résultats issus d'études différentes. (Annexe II)

Polluants étudiés

Les polluants étudiés en sortie de toitures végétalisées sont dans un premier temps les nutriments (essentiellement NH_4^+, NO_3^-, N_{total}, PO_4^{3-} et P_{total}), suivis sur l'ensemble des séries de données évoquées sauf celles de Bates *et al.* (2007), et des ETM, notamment Pb, Cd, Cr, et plus particulièrement Cu et Zn, observés dans 45 séries de données. Les analyses d'ETM se sont principalement intéressées aux teneurs totales, distinguant rarement phases dissoute et particulaire (Gregoire & Clausen 2011). Pourtant, la première est celle qui est prise en compte dans la réglementation relative aux milieux aquatiques (même partie paragraphe 1.1.3). Très peu d'études relatives aux polluants organiques sont disponibles à ce jour.

Selon les articles, les auteurs présentent sous deux formes différentes les quantités de polluants dans les eaux en entrée et en sortie de toitures:

- en termes de charge surfacique annuelle de polluants ou flux, exprimée en g m^{-2} an^{-1} (Köhler *et al.*, 2003 ; Carillo, 2009 pour les nutriments; Czemiel Berndtsson *et al.* 2005 et 2008)
- en concentration de polluants, exprimée en mg L^{-1} dans les autres documents recensés.

Ces deux modalités ont chacune leurs avantages et inconvénients. 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 et des milieux aquatiques (paragraphe 1.1.3). Cependant, comme expliqué dans le paragraphe 1.2.2, la toiture végétalisée va retenir une quantité d'eau de pluie non négligeable. Or les volumes ou débits en sortie n'étant généralement pas indiqués, cela complexifie l'évaluation de l'impact réel de la toiture, en termes de rétention ou émission effective de polluants. Cette dernière est seulement possible via l'analyse des flux entrant et sortant de la toiture. Par contre, si les mesures ne sont pas réalisées sur une année entière et pourtant rapportées à une charge annuelle, ces estimations peuvent être influencées par la saison considérée. Czemiel Berndtsson *et al.* (2005) précise ainsi que rapporter sur l'année des résultats obtenus en automne risque d'induire une sur-estimation de la charge annuelle puisque la capacité de rétention de la structure est moindre à cette période par rapport à l'été par exemple, du fait des pluies plus fréquentes.

Il est également à préciser que les eaux en sortie sont comparées aux pluies sans qu'il ne soit clairement précisé si cela comprend uniquement les dépôts atmosphériques humides (les pluies) ou l'ensemble des dépôts atmosphériques de temps pluie et de temps sec, récupérés ensemble. Or ces derniers peuvent représenter une part importante des apports atmosphériques d'ETM (même partie paragraphe 1.1.2).

Enfin, certains ETM comme Cd sont souvent non détectés dans les échantillons en entrée et sortie de toiture (Czemiel Berndtsson *et al.* 2005, 2006 et 2009). Cependant, la limite de détection du cadmium était de 1 µg L^{-1} pour la majorité de ces études, soit plus de 10 fois supérieure à la NQE qui lui est associée en lien avec la *Directive Cadre sur l'Eau 2000/60CE*.

Comparaisons des concentrations et flux en sortie de toitures végétalisées et non végétalisées

Les valeurs évènementielles en entrée et sortie des différentes études évoquées précédemment ont été collectées dans le texte ou sur les graphiques des articles. Les valeurs minimales, moyennes et maximales ont ensuite été calculées pour les concentrations et flux des différents polluants étudiés (Tableau 7 et Tableau 9). Ces valeurs sont également comparées à celles observées en sortie de toitures classiques. Les maximums et minimums identifiés dans différentes études et synthèses bibliographiques (Zobrist *et al.*, 2000 ; Chang *et al.*, 2004 ; Göbel *et al.*, 2007 ; Robert-Sainte, 2009 ; Barraud *et al.*,

2009 ; Lamprea, 2009 ; Farreny *et al.*, 2011) ont été intégrés aux tableaux. Les toitures en pente et les toitures terrasses ayant un fonctionnement hydraulique distinct, leur impact sur la qualité des eaux pourrait également être différent. Des études spécifiques à ces dernières ont donc été recherchées. Seuls deux articles traitants de toitures terrasses, dans les deux cas recouvertes de graviers, ont pu être recensées et donnent des informations en termes de concentration en nutriments (Farreny *et al.*, 2011) et de métaux (Zobrist *et al.*, 2000). Il est également à noter que les données relatives aux polluants métalliques sont plus nombreuses que celles concernant les nutriments.

Mis à part pour NH_4^+, les concentrations en nutriments sont généralement plus élevées en sortie de toitures végétalisées qu'en sortie de toitures classiques. La diminution des teneurs en NH_4^+, probablement dérivé du processus de transformation de ce composé en NO_3^-, est également observée pour les toitures plates en gravier par rapport aux toits en pentes (Zobrist *et al.*, 2000 ; Farreny *et al.*, 2011). Les teneurs pour les composés du phosphore sont d'ailleurs au-delà des Normes de Qualité Environnementale (NQE) fixées pour ces paramètres pour la classification en bon état écologique des eaux par la Directive Cadre sur l'Eau, tout comme pour les toitures classiques pour P_{total}.

Concernant les ETM, Göbel *et al.* (2007) avaient observé que les concentrations en sortie de toitures végétalisées étaient plus faibles que celles des autres toitures, excepté pour Zn. L'analyse de l'ensemble des résultats recueillis semblent cependant dégager quatre tendances principales :

- des métaux en concentrations plus élevées en sortie de toitures végétalisées qu'en toiture classique comme Fe, Mn et Cr, concentration également supérieures aux NQE associées,
- des concentrations équivalentes à celles trouvées en sortie de toitures classiques pour Ni, dont les maximales peuvent dépasser la NQE,
- des concentrations inférieures en sortie de toitures végétalisées par rapport aux toitures classiques mais qui dépassent les NQE pour Cu et Zn. A titre de comparaison, par rapport à ce qui peut être réalisé en toit plat, une toiture en tôle (acier galvanisé) rejette de l'ordre de quelques mg L^{-1} de Zn (Robert-Sainte, 2009),
- des concentrations en sortie de toitures végétalisées inférieures à celles des toitures classiques et aux NQE pour Cd et Pb.

Il est toutefois rappelé que les NQE sont définies sur les phases dissoutes et que les analyses en sortie de toitures sont généralement réalisées sur la concentration totale en ETM.

Les tendances en termes de flux sont différentes, notamment pour les ETM, et montrent l'importance de la prise en compte de la capacité de rétention d'eau des toitures végétalisées dans l'évaluation des quantités de polluants émises ou retenues par ces structures. Les flux en sortie de toitures végétalisées sont globalement plus faibles qu'en toiture classique pour NO_3^- et N_{total} et plus

élevés pour les composés du phosphore et le potassium. Dans l'ensemble, les flux d'ETM en sortie de toitures végétalisées sont considérablement inférieurs à ceux issus des toitures classiques, notamment pour Pb, Mn, Fe et Zn. Seul Cu présente des flux relativement élevés en comparaison des toitures classiques. Ces valeurs sont cependant influencées par une des toitures étudiées par Czemiel Berndtsson *et al.* (2005 et 2006) qui dispose d'une gouttière en cuivre. Sans les données issues de cette toiture, la moyenne redescend à moins de 7 mg $m^{-2}.an^{-1}$ de Cu en sortie de toitures végétalisées.

Du fait de la variabilité des résultats selon les structures, les conditions expérimentales et les éléments considérés, il n'est pas possible de tirer une conclusion générale par rapport à un effet positif ou négatif des toitures végétalisées sur la qualité des eaux en comparaison des toitures classiques. Les tendances spécifiques aux flux d'ETM semblent cependant positives.

Mais obtenir une eau de qualité comparable aux toitures classiques n'est pas un objectif suffisant, l'intérêt serait de pouvoir améliorer la qualité des eaux en sortie de toitures par rapport aux dépôts atmosphériques eux-mêmes déjà chargés en polluants et en limitant les émissions de polluants par les matériaux. Pour cela la capacité épuratoire de ces structures sur les ETM va faire l'objet d'une analyse approfondie.

Tableau 7 - Gamme de flux de nutriments et métaux en sortie de toitures végétalisées (min-max obtenus sur l'ensemble des sites recensés dans la littérature)

		Communications dédiées aux toitures végétalisées [5]			
		Pluies / dépôts atmosphériques	Toitures végétalisées	Toitures témoins	Bancs expérimentaux avec différents matériaux de toitures (Robert-Sainte, 2009)
Nutriments : moyenne / min-max (mg m^{-2} an^{-1})	NO_3	300	79,4	470	
		150-450	12-270		
	N_{total}	377,7	79,7	847,5	
		0,8-920	0,3-580	165-1530	
	PO_4	5	28,1	10	
		0-10	0-550		
	P_{total}	80	40	87,5	
		0-280	0-600	30-145	
	K	64	457	130	
		2,5-100	1,3-3200		
Métaux : moyenne / min-max (mg m^{-2} $.an^{-1}$)	*Cd*				0-4,6
	Cr				0-0,07
	Cu	2	53,9	2	
		3,5-5	1-255		0-16,6
	Fe	11	20,8	60	
		10-12	2-42		
	Mn	1,15	2,5	13	
		0,8-1,5	0-8,2		
	Pb	1,1	0,7	1,5	
		0-2,2	0-2,2		0-22941
	Zn	9	24,8	140	
		8-10	6-84		0-4517

[5] Source : Köhler *et al.*, 2003 ; Czemiel Berndtsson *et al.* 2005 ; Czemiel Berndtsson, 2008.

Tableau 8 – Gamme de concentrations en nutriments dans les eaux en sortie de toitures végétalisées comparées à celles de toitures classiques et à la réglementation (min-max obtenus sur l'ensemble des sites recensés dans la littérature)

		Communications dédiées aux toitures végétalisées [6]						
		Pluies / dépôts atmosphéri-ques	**Toitures végétalisées**	**Toitures témoins**	**Toitures classiques[7]**	**Toitures terrasses gravillonnées [7]**	Direc-tive Cadre sur l'Eau et son applica-tion à l'échelle nationa-le[8]	Eaux brutes utilisées pour la production d'eau destinées à la consommation humaine / eaux destinées à la consommation humaine[9]
Moyenne / Min-max (mg L^{-1})	***NO_3***	58,4	21,3	0,4			50*	100 - 50
		0,2-170	0-76,5	0,2-0,7	0-10	1,2-10		
	NH4	0,4	0,1	0,2			0,5*	4 - /
		0-0,8	0-0,2	0,1-0,6				
	N_{total}	145,9	58,5	1,2				
		0,5-450	0,4-375	0,6-2,2	0-6,6			
	PO_4	1,2	9	0,05			0,5*	
		0-4	0-52	0-0,1	0,06-0,5			
	P_{total}	3,4	14,9	2,6			0,2*	
		0-16,9	0-99,8	0-15,4				
	K	23,4	245,1	2,5				
		0-50	4-1300	0,2-4,4				

*Seuil entre moyen et bon état écologique.

[6] Czemiel Berndtsson *et al.* 2006, 2009 ; Gregoire *et al.*, 2011 ; Moran, 2005 ; Teemusk *et al.*, 2007 ; Vander Linden, 2008.

[7] Farreny *et al.*, 2011

[8] *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*

[9] *Arrêté du 11 janvier 2007 relatif aux limites et références de qualité des eaux brutes et des eaux destinées à la consommation humaine*

Tableau 9 – Gamme de concentrations en métaux dans les eaux en sortie de toitures végétalisées comparées à celles de toitures classiques et à la réglementation (min-max obtenus sur l'ensemble des sites recensés dans la littérature)

		Communications dédiées aux toitures végétalisées [10]						
		Pluies / dépôts atmosphéri-ques	**Toitures végétalisées**	**Toitures témoins**	**Toitures classiques [11]**	**Toitures terrasses gravillonnées [12]**	Direc-tive Cadre sur l'Eau	Eaux brutes production d'eau destinées conso humaine
Moyenne / Min-max (µg L^{-1})	***Al***	65,7	85,5 43,3-212					
	As	6, 5 11-1,9	31,7 4-180				3,4*	100 - 10
	Cd		0,1		0-32	0,11	0,08*	5 - 5
	Cr	2,8 0,1-8	5,5 0-50	0,2 0-0,8	0-10,5		3,4*	50 - 50
	Cu	3,6 0-9	30 0-700	343 0-1700	0-5410	18	1,4*	/ - 2000
	Fe	40,5 0-80	604,7 0-4526	44,7 8-80				
	Hg	0,9	0,6 0,3-1				0,05*	1 - 1
	Mn	3,9 0-11	9,6 0-84,3	5,7 1-15				
	Ni		17,0 3-55		0-17		4**	/ - 20
	Pb	3,75 0-9	4,4 0-22	1,3 0-2	0-21 330	2,7	1,2**	50 - 10
	Zn	31 1,3-100	41,5 0,2-468	78,9 0,4-205	0-212 300	9	3,1 ou 7,8***	5000

*Concentrations dans la phase dissoute.

**Concentration de la part biodisponible, nouvelle NQE définie par la résolution législative du Parlement européen du 2 juillet 2013.

*** selon concentration en $CaCO_3$

[10] Czemiel Berndtsson *et al.* 2006, 2009 ; Göbel *et al.*, 2007 ; Gregoire *et al.*, 2011 ; Vander Linden, 2008.

[11] Zobrist *et al.*, 2000 ; Chang *et al.*, 2004 ; Göbel *et al.*, 2007 ; Robert-Sainte, 2009 ; Barraud *et al.*, 2009 ; Lamprea, 2010

[12] Zobrist *et al.*, 2000

Capacité épuratoire de toitures végétalisées recensées dans la littérature

Afin de pouvoir comparer les résultats des différentes toitures en termes d'impacts sur la qualité des eaux pluviales malgré la différence d'unité ou de flux entrant, le pouvoir épuratoire, estimé en %, a été calculé en soustrayant la quantité en sortie à la quantité en entrée puis en divisant cette valeur par la quantité en entrée. Lorsque cette valeur est positive, cela signifie donc que la valeur en sortie de toiture était inférieure à celle en entrée et que la toiture a retenu des polluants.

L'impact des toitures végétalisées en termes de rétention des métaux est mitigé. Après passage dans certaines toitures, des flux et concentrations largement supérieures ont pu être observés dans les eaux en sortie par rapport à l'eau en entrée, passant par exemple de 0 à 2,2 mg m^{-2} an^{-1} de Pb (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2005) ou encore de 0 à 1, 2 mg m^{-2} an^{-1} de As (Carillo, 2009). Cependant, la quantité de métaux en sortie est multipliée par plus de 5 pour seulement 10% des toitures recensées dans les études évoquées précédemment. Pour les nutriments, c'est le cas pour plus de 50% des toitures. Ainsi, même si les apports de métaux par les toitures végétalisées sont fréquents, ces apports sont quantitativement moins importants que les apports éventuels de nutriments. Cela se rapproche donc des conclusions de Czemiel Berndtsson (2010) qui indique que les toitures végétalisées ne représentent pas un apport substantiel de métaux.

Le Tableau 10 recense ci-dessous la proportion d'impacts positifs (diminution des concentrations en éléments entre l'entrée et la sortie de la toiture végétalisée→ rétention de polluants), négatifs (augmentation des concentrations en éléments entre l'entrée et la sortie de la toiture végétalisée→ rejet de polluants) ou nuls (pas de variations repérées entre l'entrée et la sortie) sur la qualité des eaux pour les différentes toitures étudiées.

Tableau 10 - Tendances principales vis à vis des métaux en sortie de toitures végétalisées

Pourcentage de toitures présentant ce type de phénomène entre l'entrée et la sortie (%)	Al	As	Cr	Cu	Fe	Hg	Pb	Zn
Rejet	57	89	77	40	76	5	56	47
Aucune tendance définie	0	0	0	55	5	0	0	13
Rétention	43	11	23	5	19	95	44	40

L'impact positif des toitures végétalisées sur As, Cr, Cu et Fe est relativement limité même si, lorsqu'il est positif, il peut être non négligeable. Ainsi pour deux toitures de Czemiel Berndtsson *et al.* (2006), leur efficacité épuratoire vis à vis de Cr permet de faire passer les concentrations sous les

limites de quantification. Pour Cu et Fe, l'efficacité épuratoire moyenne pour les toitures ayant un impact positif est de 75% dans les deux cas (Czemiel Berndtsson *et al.* 2005, 2006 et 2009 ; Vander Linden, 2008). Des capacités de rétentions de plus de 85% ont notamment été recensées pour Cu dans le cadre de deux études (Van Seters *et al.*, 2009 ; Seidl *et al.*, 2013).

Pour Al, Pb et Zn, l'impact positif de ces toitures est plus fréquent. La moyenne des impacts positifs pour Al reste limitée avec environ 28% mais pour Zn et Pb elle atteint des valeurs significatives respectivement de 42 et 77%. L'efficacité maximum pour Zn est de 98% (Seidl, 2013). Pour Pb, quatre valeurs positives sur huit sont supérieures à 80%. Köhler *et al.* (2003) et Steusloff (1998) mentionnent des efficacités épuratoires vis à vis de Cd dépassant les 90%.

Enfin l'impact des toitures végétalisées sur Hg est majoritairement positif. Il faut cependant préciser que tous les résultats obtenus concernant cet élément proviennent de la même étude réalisée sur des bancs expérimentaux étudiés suivis durant quelques mois seulement (Carillo, 2009). En outre, cette efficacité reste limitée avec une moyenne de 35%.

Seidl *et al.* (2013) ont estimé que ces diminutions de flux et de concentrations auraient un impact négligeable sur la qualité des eaux de ruissellement à l'échelle de la ville, dans un contexte de pollution urbaine classique, étant données les surfaces végétalisables limitées par rapport au restant des surfaces urbaines. Elles peuvent toutefois avoir un intérêt dans le cadre d'une problématique plus locale dans un contexte de rejet direct dans une masse d'eau sensible, du traitement d'une pollution atmosphérique spécifique ou encore d'une récupération puis utilisation nécessitant une eau contenant les plus faibles quantités de polluants possibles. Il est donc intéressant d'aller plus loin dans la compréhension et l'amélioration de ces capacités épuratoires.

Impacts des différents paramètres pouvant influencer les capacités épuratoires

Comme indiqué par Czemiel Berndtsson (2010), d'importantes différences dans la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisées peuvent être observées dans les quelques études existantes, liés notamment aux caractéristiques spécifiques des toitures évoquées précédemment. La partie suivante est dédiée à l'identification des tendances d'émission et rétention d'éléments, et plus particulièrement d'ETM, liées à ceux-ci, à partir des observations réalisées par les auteurs des articles recensés ainsi que d'une analyse globale de l'ensemble des résultats issues de ces publications au regard des caractéristiques des différentes structures expérimentales concernées.

Évolution des concentrations au cours d'un événement pluvieux

Deux auteurs (Köhler *et al.*, 2003 ; Czemiel Berdtsson, 2005) mentionnent la présence d'un « *first flush effect* », observation d'une concentration en polluants plus importante au début de l'événement

pluvieux plutôt qu'à la fin, généralement expliqué par le lessivage d'une surface où se sont accumulés les dépôts atmosphériques de temps secs depuis la dernière pluie. Dans les autres articles, aucune mention n'est faite de ce premier flot mais il n'est pas non plus indiqué que les prélèvements ont été réalisés de façon à pouvoir observer ce type de phénomène. Cela nécessite en effet la récupération des eaux en sortie de toitures dans différents récipients au cours de l'évènement pluvieux, suivi d'analyses de chacun de ces échantillons.

Impact de l'âge

En 2005, Czemiel-Berndtsson indiquait qu'avec l'âge les concentrations en Pb en sortie de toiture semblaient augmenter, mais que plus d'études étaient nécessaires sur le sujet. L'ensemble des données recensées dans le cadre de cet état de l'art vont également dans ce sens. En effet, pour les toitures âgées de moins d'un an, l'impact des toitures sur Pb est négatif ou nul. Mais pour les toitures âgées de plus d'un an, les résultats sont variables selon les études. Cependant l'efficacité moyenne des impacts positifs pour les toitures de deux et trois ans est de 93% et de 66% pour celles de quatre à douze ans. Pour Fe, les 14 données disponibles pour des toitures de moins de trois ans montrent un apport par la toiture en sortie par rapport à l'entrée. Pour les toitures âgées de quatre à douze ans, l'une d'entre elle n'a pas d'impact, deux un impact négatif et quatre un impact positif avec une diminution moyenne des teneurs en Fe de 75% entre l'entrée et la sortie. Pour Cu, Cr et Zn, aucune tendance ne semble se dégager des résultats disponibles. Enfin les données disponibles pour les concentrations en Al, As et Cd concernant uniquement des toitures de moins d'un an, il n'est pas possible de tirer des conclusions quant à l'impact de l'âge des toitures sur ces éléments.

Épaisseur de substrat

Parmi la soixantaine de séries de données disponibles, seulement deux concernent des toitures intensives avec une épaisseur de substrat égale à 40 cm. Les impacts de ces deux toitures sur les concentrations en Fe, Pb et Zn sont tous positifs (Czemiel-Berndtsson *et al.*, 2009). Une couche épaisse de substrat pourrait avoir un pouvoir filtrant plus important qu'une couche fine. Par contre, pour une faible différence de hauteur de substrat (6 et 16 cm), Seidl *et al.* (2013) n'observent pas de différences notables en termes de rétention de Cu et Zn notamment. Cependant, même s'il reste difficile de dégager une tendance claire sur l'ensemble des études recensées, il semble que pour des épaisseurs de 2 à 10 cm, plus l'épaisseur augmente, plus l'apport de polluants par la structure est important. C'est notamment le cas pour Fe, pour lequel avec une épaisseur de 3 cm, la teneur en sortie est multipliée par 1,3 par rapport à l'entrée, et pour 4 cm multipliée par 7,7 (Czemiel-Berndtsson, 2005 ; Czemiel-Berndtsson *et al.*, 2006 ; Czemiel-Berndtsson *et al.*, 2009). Idem pour As, avec une multiplication de 2,9 pour les toitures avec un substrat de 7cm et de 5,6 avec un substrat de 10 cm (Bates *et al.*, 2007 ; Carillo, 2009). Concernant Cd, une structure sur sept a un impact négatif pour une épaisseur de 7cm

contre 5 sur 14 pour 10 cm (Carillo, 2009). En outre, pour le Cr, Cu, Fe et Pb, tous les impacts positifs, excepté ceux des toitures intensives, sont relevés pour des épaisseurs inférieures ou égales à 3 cm (Czemiel-Berndtsson, 2005 ; Czemiel-Berndtsson *et al.*, 2006 ; Vander Linden, 2008).

Nature du substrat

Seules les structures étudiées dans Carillo (2009), pour partie, et Bates *et al.* (2007), dans leur ensemble, utilisent des matériaux recyclés. Dans le cas de Bates *et al.* (2007), l'objectif de l'étude est d'étudier l'impact de *brown roofs*[13] sur la biodiversité et la gestion des eaux pluviales. L'enrichissement en différents éléments observés par Bates *et al.* (2007) est également confirmé par les résultats obtenus par Carillo (2009). Ainsi tous les substrats contenant des matériaux recyclés ont des impacts négatifs ou nuls sur les teneurs en As, Cr, Cu, Fe, Pb et Cd (trois premières lignes du Tableau 12). Alors que pour tous ces éléments excepté Cd, des structures ne contenant pas de matériaux de récupération ont obtenu des résultats positifs (première ligne du Tableau 11). En outre, pour Cr, Fe et Cd, les moyennes des augmentations de teneur en éléments entre l'entrée et la sortie sont bien supérieures pour les substrats avec matériaux recyclés par rapport à ceux sans matériaux recyclés : multiplication par 6 contre 2,2 pour Cr, par 54 contre 1,7 pour Fe et par 6 contre 2,5 pour Cd (dernière ligne du Tableau 11 et Tableau 12). Comme évoqué par Bates *et al.* (2007), les eaux issues de toitures végétalisées contenant des matériaux de récupération sont de moins bonnes qualités que celles provenant de structures ne contenant pas de matériaux de récupération, en lien avec les fortes teneurs totales et disponibles en ETM dans les matériaux recyclés. Malgré les émissions d'ETM potentielles par ces matériaux, peu d'informations sont disponibles quant aux teneurs présentes dans les substrats. Dans un contexte de production de végétaux destinés à la consommation humaine, Ye *et al.* (2013) ont évalué des teneurs dans des substrats de toiture végétalisée de l'ordre de quelques dixièmes de mg kg^{-1} de Cd, entre 10 et 25 mg kg^{-1} pour As, Cu et Pb, de 40 à 60 mg kg^{-1} pour Zn, Ni et Cr. Certains matériaux présents dans le mélange de substrat comme la brique concassée ont été identifiés comme l'une des principales sources d'ETM induisant une teneur en Cd élevée par rapport à la norme HJ332-2006 relative aux substrats utilisés pour la production alimentaire. Ce phénomène avait déjà été observé par Köhler & Schmidt (2003) puisque l'utilisation de matériaux recyclés dans les substrats avait été écartée après de premières analyses en laboratoire, dans un contexte de construction de toitures végétalisées pour améliorer la qualité des eaux.

Quant à l'impact des autres matériaux utilisés dans les substrats (minéraux ou organiques, naturels ou industriels...) sur la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisées, il est difficile d'établir des

[13] La réalisation d'un *brown roof* (pas de terme équivalent en français) consiste à récupérer les matériaux présents sur le site de construction puis les utiliser comme substrat dans la structure de végétalisation de toiture. Cette technique, souvent réalisée sur des friches industrielles et surtout développée en Suisse et en Grande-Bretagne, a l'intérêt de recréer sur le toit le biotope perdu au sol par la construction du bâtiment.

tendances claires à partir des résultats disponibles. Tous les résultats obtenus pour As, Cu, Fe, Pb et Zn avec des substrats composés uniquement de matériaux minéraux naturels sont positifs (Köhler& Schmidt, 2003; Czemiel-Berndtsson *et al.*, 2009 ; Carillo, 2009). Seidl *et al.* (2013) ont par ailleurs mis en évidence une corrélation entre augmentation de la rétention de Cu et augmentation des teneurs en matière organique dans un substrat.

Tableau 11 - Impacts des substrats sans matériau de récupération sur les teneurs en métaux

Sans matériau de récupération	As	Cr	Cu	Fe	Pb	Cd
Impact positif : entrée > sortie (% de toitures concernées)	25	14	8	36	30	0
Sans impact (% de toitures concernées)	0	55	60	0	48	75
Impact négatif : sortie > entrée (% de toitures concernées)	75	32	32	64	22	25
Pour les impacts négatifs : sortie = entrée x …	4,9	2,2	8,6	1,7	18,6	2,5

Tableau 12 - Impacts des substrats avec matériaux de récupération sur les teneurs en métaux

Avec matériaux de récupération	As	Cr	Cu	Fe	Pb	Cd
Impact positif : entrée > sortie (% de toitures concernées)	0	0	0	0	0	0
Sans impact (% de toitures concernées)	0	67	50	0	83	67
Impact négatif : sortie > entrée (% de toitures concernées)	100	33	50	100	17	33
Pour les impacts négatifs : sortie = entrée x …	4,9	6,0	6,5	54,3	4,7	6,0

Nature du drainage

La nature du drainage présent dans les structures étudiées n'est disponible que pour 22 toitures concernant les analyses de métaux. Il est difficile d'établir des tendances précises par rapport à ce

paramètre. La majorité des impacts positifs est obtenue avec une couche de drainage synthétique (2 sur 3 pour Cr, 1 sur 1 pour Cu, 3 sur 3 pour Fe, 4 sur 6 pour Pb, 4 sur 5 pour Zn). Cela peut provenir de l'absence de rejet de métaux par ces structures contrairement à d'autres matériaux de drainage.

Fertilisation

Les fertilisants sont identifiés comme la source majeure de nutriments dans les eaux en sortie de toitures végétalisées (Emilsson *et al.*, 2007; Czemiel Berndtsson, 2005 ; 2009 ; 2010). Ils peuvent également s'avérer sources d'ETM. Gregoire & Clausen (2013) identifient l'engrais utilisé sur leur toiture végétalisée expérimentale comme source potentielle de Cu du fait de la présence de $CuSO_4$ soluble dans l'eau dans ce produit. Peu d'informations sont disponibles concernant les traitements réalisés ou non sur les toitures étudiées dans les documents identifiés. Pour les métaux, aucune conclusion ne peut être tirée car trop peu de données sont disponibles et les résultats sont très différents selon les séries de données.

Variations saisonnières et capacité de rétention

L'influence des saisons peut se traduire de différentes façons. Les pluies plus fréquentes en hiver qu'en été ont tendance à saturer le milieu sur une plus longue période et ainsi à diminuer sa capacité de rétention. En outre, les végétaux sont en plein développement au printemps et ont des besoins en eau et éléments plus importants qu'à l'automne ou en hiver. Mais la part d'ETM stockée dans les végétaux n'a jamais été évaluée. Un seul article présente des teneurs en ETM dans des végétaux de toitures végétalisées (Ye *et al.*, 2013). Les auteurs s'y sont intéressés car ces végétaux (*S. lineare Thunb*, *S. sarmentosum Bunge* & *Portulaca oleracea L.*) étaient destinés à la consommation humaine. Des variations saisonnières ont bien été observées. Les teneurs étaient comparables dans les trois espèces et inférieures dans les parties aériennes par rapport aux racines. Dans ces dernières, elles étaient de l'ordre de quelques centième de mg kg^{-1} pour Cd, quelques dixièmes pour As, de 1 à 10 mg kg^{-1} pour Cr, Cu, Ni et Pb, entre 10 et 80 mg kg^{-1} pour Zn.

Selon Czemiel Berndtsson (2010), Steusloff interprète l'impact des variations saisonnières sur la capacité de stockage de polluants en termes de capacité de rétention des eaux. En effet, les toitures étudiées ont montré des capacités de rétentions de Pb, Zn, Cu et Cd plus importantes pour les toitures semi-intensives qu'extensives, les premières étant les structures de végétalisation qui retiennent le plus d'eau. Elles ont également montré des capacités de rétention de ces éléments plus importantes en été qu'en hiver. Or la capacité de rétention d'eau de la toiture est également meilleure en été qu'en hiver. Pour Köhler *et al.* (2003), la qualité en sortie de toiture est également proportionnelle à la capacité de rétention du substrat. Czemiel Berndtsson *et al.* (2006) remettent en cause le lien entre capacité de rétention des eaux et des polluants en indiquant que les volumes en sortie représentent 51% des

précipitations annuelles et que par conséquent, la toiture pourrait potentiellement retenir 49% des polluants présents dans les dépôts atmosphériques de temps de pluie et tous les dépôts atmosphériques de temps sec. Cependant il est également précisé que les matériaux constitutifs de la toiture peuvent être source de polluants et que des changements des conditions physico-chimiques dans la toiture pourraient entraîner un relargage des substances initialement retenues.

Végétaux

Outre l'influence sur la rétention ou le rejet de polluants des variations saisonnières des métabolismes des végétaux évoqués précédemment, la nature ou encore le bon établissement de la végétation pourraient influencer les flux de polluants en sortie. Avec la capacité de rétention du substrat, c'est l'un des facteurs importants avancé par Köhler (2003) pour l'épuration des eaux. Aucun impact spécifique n'a été démontré jusqu'à maintenant mais des pistes sont avancées. Ainsi Teemusk (2007) évoque deux toits similaires avec des densités de recouvrement différentes. Il apparaît que le toit le moins densément couvert retient moins d'eau et la rejette plus rapidement. Si un parallèle peut être fait, comme évoqué précédemment, entre capacité de rétention de l'eau et des polluants, les toitures où la végétation est moins dense seraient moins efficaces pour la rétention de substances.

1.3 Potentialités d'amélioration des capacités épuratoires des toitures végétalisées

1.3.1 Des pistes déjà identifiées dans le domaine de la végétalisation de toitures

Dimensionner la toiture en vue d'une dépollution des eaux

Les toitures végétalisées n'ont pas été conçues jusqu'à maintenant en vue de la dépollution des eaux pluviales (Czemiel Berndtsson *et al.* 2009). Il est important de construire des structures adaptées pour améliorer leur capacité à retenir les polluants, comme cela a pu être fait sur les zones humides (Horne, 2000 ; Mays *et al.*, 2001).

Un cas de toitures végétalisées conçues pour faire face à un problème de pollution de l'eau a d'ailleurs été identifié. Dans le cadre de l'aménagement de la Potsdamer Platz à Berlin dans les années 1990, les végétaux et substrats utilisées en végétalisation de toiture ont été sélectionnés spécifiquement et associés à une interdiction de fertilisation pour réduire la pollution de la Spree par l'apport de nutriments présents dans les eaux de ruissellement (Köhler *et al.*, 2003).

Czemiel Berndtsson *et al.* (2009) identifient deux aspects sur lesquels l'attention devrait être portée : la nature des matériaux ainsi que l'entretien réalisé qui peuvent être source de polluants. Voici quelques pistes envisageables pour améliorer la capacité épuratoire des toitures végétalisées en lien avec des deux types de paramètres.

Adapter les pratiques d'entretien

Czemiel Berndtsson (2010) indique que la fertilisation devrait être l'une des préoccupations principales lors de la conception de la toiture. Il est d'ailleurs précisé que la fertilisation pourrait être remplacée par un arrosage pendant les périodes les plus sèches, contrairement à ce qu'indiquent Fischer *et al.* (2001). En outre, dans le cas de la mise en place d'espèces endémiques sur la toiture, la survie serait plus conditionnée par la disponibilité de l'eau que par la fertilisation (Rowe *et al.*, 2006).

La quantité de fertilisants est également à évaluer avec précision. En effet, en comparant les quantités introduites en toiture végétalisée à celle préconisée, Czemiel Berndtsson *et al.* (2006) observent que les quantités introduites sur l'une de leur toiture végétalisée expérimentale est probablement trop importante car supérieure à celle préconisée pour une pâture, dont la production de biomasse est pourtant plus importante. En outre, une augmentation de la quantité de fertilisants ne semble pas induire une augmentation proportionnelle de la biomasse (Emilsson *et al.*, 2007).

Enfin la nature du fertilisant est également évoquée par Czemiel Berndtsson *et al.* (2006) et Emilsson *et al.* (2007). Les fertilisants qui se dissolvent rapidement et dont une partie importante est rapidement lixiviée devraient être évités au maximum. En particulier si les eaux en sortie de toitures ne peuvent pas être recyclées ou réutilisées sur le toit ou sur une autre surface végétalisée durant les premières semaines après la fertilisation. L'utilisation de fertilisants à rejets contrôlés est donc préconisée. Les nutriments sont mieux utilisés par la végétation et leur rejet dans les eaux est limité grâce à une libération progressive dans le milieu. Pourtant, les fertilisants solubles restent souvent utilisés pour leur faible coût et leur effet considéré comme immédiat sur la végétation (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2006).

Choisir des matériaux spécifiques

L'importance du choix des matériaux en fonction de la qualité recherchée et des usages envisagés est évoquée par Köhler *et al.* (2003) comme indiqué précédemment. Deux aspects sont alors à prendre en compte, en lien avec les deux phénomènes qui contrôlent la qualité de l'eau, identifiés dans le paragraphe 1.2.3 de cette partie.

Le premier est d'utiliser des matériaux qui émettent peu de polluants. Les eaux récupérées peuvent alors être utilisées pour les WC, l'arrosage des espaces verts ou encore pour alimenter un plan

d'eau d'agrément (Köhler *et al.* (2003). La turbidité doit être la plus faible possible. Pour cela, la quantité de matière organique dans le substrat devait être limitée. Dans cette expérience, des substrats essentiellement minéraux ont été sélectionnés pour atteindre des objectifs de qualité et d'usages bien définis. Par ailleurs, il a été montré précédemment que les matériaux recyclés utilisés dans les substrats avaient des impacts négatifs sur la qualité des eaux en sortie. Lorsque ce type de matériaux est utilisé, Bates *et al.* (2007) conseillent d'ailleurs de les soumettre aux intempéries afin que les pluies lessivent une partie des éléments disponibles avant de les mettre en œuvre sur le toit et de s'assurer ensuite que les eaux provenant de ces toitures ne soient pas rejetées directement dans le milieu naturel.

La seconde étape est de sélectionner des matériaux qui peuvent avoir une capacité de dépollution démontrée dans d'autres situations. Par exemple, l'argile expansée, utilisée en végétalisation de toitures (substrat ou couche de drainage), est aussi souvent employée dans les zones humides construites en vue de la dépollution des eaux, en particulier pour le phosphore (Vohla *et al.*, 2011). En outre, les végétaux constituent un moyen potentiel pour traiter les environnements contaminés. En particulier, s'est développée depuis plus de deux décennies une approche destinée à utiliser des végétaux spécifiques pour traiter les sols pollués. Des procédés de phytoremédiation font appel à différents processus et technologies (Morel, 2012). Les végétaux hyperaccumulateurs de métaux constituent une voie pour traiter les sols et les sédiments pollués (e.g. Schwartz *et al.*, 2003) avec possibilité de récupération des métaux extraits par les plantes (Bani *et al.*, 2007 ; Barbaroux *et al.*, 2012). Des espèces végétales adaptées aux conditions de développement de la végétation sur toitures végétalisées pourraient être mis en œuvre pour stocker certains métaux par exemple. Vander Linden (2008) explique en partie la diminution des teneurs en Zn en sortie de son système de végétalisation de toitures par la présence de *Sedum Alfredii*, plante hyperaccumulatrice pour ce métal (Yang *et al.*, 2005).

D'autres variables comme la hauteur de substrat par exemple, pourraient également être étudiées. Mais cela nécessite des recherches complémentaires puisque, à ce jour, il est difficile d'identifier une tendance liée à l'impact de ce paramètre.

1.3.2 La Science du Sol pour aider à une meilleure compréhension des flux de polluants dans les structures

La contamination et la rétention des ETM par les sols et les végétaux a fait l'objet de très nombreuses recherches depuis plusieurs décennies (Morel, 1997b). La contamination induit des problématiques particulières notamment dans le cadre de la production de végétaux destinés à la consommation humaine (Tremel-Schaub et Feix, 2005). La rétention est particulièrement importante notamment dans le domaine de la gestion des eaux pluviales par infiltration en vue d'une limitation de

l'apport de polluants aux eaux souterraines (Barraud *et al.*, 2009). Une dépollution effective de ces eaux avec immobilisation des ETM par les végétaux et dans le sol grâce des amendements spécifiques par exemple est même parfois envisagée (McCutcheon et Schnoor, 2003 ; Bert *et al.*, 2009).

Diverses techniques d'analyse du sol visant à caractériser les teneurs totales et extractibles d'ETM sont utilisées depuis de nombreuses années (Juste, 1988) afin d'évaluer la part potentiellement rejetée dans des eaux après circulation à travers cette matrice. Les essais en laboratoire visant à caractériser les capacités et cinétiques de rétentions de polluants par différents matériaux, en batch ou en colonne, se sont également développés notamment pour l'étude des sols (Hlavackova, 2005). En outre, si la problématique du traitement des eaux pluviales est essentiellement abordée dans les pays les plus avancés dans le domaine de la gestion de l'eau, celle du traitement des effluents domestiques et industriels doit désormais être traitée à l'échelle internationale (Blanchon & Boissière, 2013). Afin de mettre en place des techniques efficaces, accessibles dans ces pays et peu coûteuses, de nombreux travaux de recherche basés sur ces mêmes types d'essais visent à caractériser les capacités de sorption de biosorbants[14] variés, en partie issus du recyclage de déchets de filières agricoles, agro-alimentaires ou industrielles (Bhatnagar & Sillanpää, 2010). Ces essais sont analogues à ceux conduits pour étudier les processus pédogénétiques, comme, par exemple, les processus d'altération des roches mères sous l'influence des facteurs climatiques (Pédro, 1979), ou, plus récemment, l'évolution des sols issus des activités humaines ou Technosols (Scholtus *et al.*, 2009 ; Séré *et al.*, 2010 ; Huot *et al.*, 2013).

Enfin, l'utilisation d'outils de prévision de comportement des matériaux sans réalisation d'essais *in situ* peut être envisagée. En effet, la simulation des transferts de polluants par des modèles couplant hydrodynamiques et transferts physico-chimiques se développe progressivement afin d'aider au dimensionnement d'ouvrages de gestion des eaux pluviales comme les zones humides construites (Fournel *et al.*, 2013).

1.4 Synthèse et questionnements

Si l'intérêt des toitures végétalisées dans la gestion quantitative des eaux pluviales est démontré par la littérature scientifique, celui relatif à la gestion qualitative des effluents reste mitigé au regard des réglementations actuelles et de la qualité des eaux issues de toitures classiques. En effet, outre la rétention des polluants des dépôts atmosphériques par les végétaux, le substrat ou une couche sous-jacente, un second processus est susceptible d'altérer la qualité des eaux. Il s'agit de l'émission de polluants initialement présents dans les matériaux constitutifs de la toiture. Ces deux phénomènes se

[14] Matériau naturel d'origine biologique utilisé pour la rétention de métaux et métalloïdes présents en solution (Wang & Chen, 2009).

produisent généralement simultanément. La capacité d'une toiture végétalisée à diminuer les flux nets de polluants en sortie nécessite la prédominance du premier processus sur le deuxième. Or, les structures végétalisées actuelles ne sont pas conçues dans un objectif de rétention des polluants atmosphériques. L'émission de polluants par les matériaux est alors souvent prédominante. Différentes pistes d'amélioration ont pu être identifiées en lien avec les techniques de végétalisation de toiture et en transposant des méthodes et techniques issues de la Science du Sol. Mais pour pouvoir fournir des préconisations précises, il est nécessaire de comprendre les différents mécanismes induisant rejet et rétention d'ETM par les différentes couches de la structure. Cela nécessite de dépasser l'observation des flux entrants et sortants sur une seule toiture végétalisée. Aussi, il est nécessaire d'étudier les processus de sorption et d'émission des ETM par les matériaux constitutifs des toitures et de considérer une variété de structures composées de différents matériaux. Les études menées sur un même site permettent alors la comparaison des performances de différentes options de construction des toitures. Enfin, le suivi à moyen voire long terme est également nécessaire pour évaluer la durabilité des mécanismes mis en jeu.

Cet état de l'art a donc permis d'identifier les questionnements scientifiques suivants, déjà évoqués dans l'Introduction :

- *Les matériaux utilisés pour les toitures végétalisées sont-ils à l'origine de l'émission de polluants ?*
- *Quels mécanismes d'émission entrent en jeu et quelle est leur évolution attendue ?*
- *Quelles fonctions ont les couches de la toiture végétalisée dans la rétention des polluants ?*
- *La capacité de rétention est-elle compatible avec la durée de vie de la toiture ?*
- *Comment tester simplement la capacité de rétention et émission de ces matériaux?*

Chapitre 2 : Matériel et méthodes

Pour répondre aux problématiques scientifiques identifiées précédemment, différentes toitures végétalisées expérimentales ont été construites sur un même site afin d'évaluer l'impact spécifique de chaque matériau en suivant la qualité des eaux en entrée et sortie. Des prélèvements de matériau ont été réalisés au début et à la fin des expérimentations afin de caractériser au laboratoire les rejets et rétentions potentielles d'ETM et leur évolution au cours du temps. Des outils de modélisation ont également été testés pour simuler les capacités de rétention à long terme de différentes structures sont avoir à passer systématiquement par des suivis *in situ*.

2.1 Elaboration des toitures végétalisées en vraie grandeur

Il avait été envisagé dans un premier temps de suivre des toitures végétalisées existantes. Ce recensement a permis de mieux connaître le marché français de la végétalisation de toiture via une approche locale, aidant ainsi au choix de certains matériaux et à l'établissement des pratiques d'entretien des toitures végétalisées expérimentales construites par la suite. Cependant, peu d'informations ont pu être recueillies auprès des maîtres d'ouvrage sur la nature des matériaux ou encore les pratiques de fertilisations associées à leur toiture végétalisée (Annexe III). Or, ces paramètres peuvent avoir une importance non négligeable sur la qualité des eaux. Ainsi, des toitures végétalisées expérimentales ont été construites sur des toits du Laboratoire de Nancy (Cerema – Direction territoriale Est) dans le cadre de la rénovation de l'étanchéité. Ces toitures étant situées sur le même site et étant construites en même temps, il a été choisi de faire varier la nature des matériaux utilisés afin d'évaluer leur impact respectif sur la qualité des eaux.

2.1.1 Principe de sélection des matériaux

Chaque structure a été conçue de façon à être comparable à une autre structure qui varie uniquement par un paramètre. Le nombre de structures réalisables étant limité, il a été choisi de faire varier les matériaux utilisés dans les trois principales couches de la toiture végétalisée : le drainage, le substrat et les végétaux.

L'objectif était d'avoir une à deux structures représentatives du marché français et répondant aux Règles Professionnelles françaises existantes rédigées par ADIVET *et al.* (2007) (Annexe IV), complétées par d'autres structures plus innovantes. Les critères de choix pris en compte étaient dans un premier temps technique : ce matériaux est-il utilisé ou utilisable en toitures végétalisées ? Puis scientifique :

quel intérêt potentiel pour la qualité des eaux et les autres fonctions potentielles étudiées [15] ? Et enfin pratique et financière, puisque des partenariats avec des professionnels du domaine ont été établis afin d'obtenir des matériaux à tarifs préférentiels.

2.1.2 Matériaux utilisés

Etanchéité

La couche d'étanchéité, mise en place par l'entreprise BATEC Lorraine, est identique sur l'ensemble des parcelles. Il s'agit d'une étanchéité bitumineuse double couche anti-racine « SOPRALENE FLAM JARDIN », type d'étanchéité le plus largement répandu en France et matériau produit par SOPREMA, leader de l'étanchéité et de la végétalisation de toitures sur le territoire. La masse bitumineuse, composée de bitume et de polymères thermoplastiques, contient des agents anti-racines empêchant la pénétration des racines à travers le complexe étanche. La face supérieure dispose également d'une autoprotection en paillettes d'ardoises (SOPREMA – Fiche technique CE 08/301 h F - S SOPRALENE FLAM JARDIN [16]).

Drainage

Deux principaux types de matériaux, minéraux et synthétiques, sont actuellement utilisés en France en couche de drainage. Le matériau minéral choisi est l'argile expansée LECA 10-20, fournie par Saint Gobain Weber GeoLeca (Figure 9.a), produite à partir d'une argile prélevée au Portugal (Avelar, District de Leiria). Caractérisée notamment par sa très faible masse volumique (215kg m^{-3} pour LECA 10-20), ce matériau permet d'élargir la gamme de structures portantes végétalisables. En outre, il est parfois utilisé en zone humide pour favoriser le traitement des eaux, notamment vis-à-vis du phosphore (Vohla *et al.*, 2009). Une épaisseur de 5 cm d'argile expansée a été posée, soit dans la gamme haute des épaisseurs de drainage classiquement utilisées, afin de créer un espace de stockage d'eau potentiel dans le drainage.

La structure synthétique mise en place est du Nidaroof 40-1F fourni par Nidaplast (Figure 9.b). Ce matériau se présente sous forme de plaque de 2,4m par 1,2m avec une épaisseur de 40 mm. La structure en nid d'abeille de maille 50 mm est en polypropylène issu à 60% du recyclage. Elle dispose sur une des faces (placée vers le haut) d'un parement en non tissé filtrant. Ces structures alvéolaires permettent notamment le stockage d'une lame d'eau en toiture en présence d'évacuations adaptées.

[15] Ces parcelles expérimentales ont été réalisées dans le cadre d'une approche scientifique pluridisciplinaire abordant les aspects de qualité des eaux, thermiques du bâtiment, micro-climatologie urbaine et biodiversité par l'introduction de végétaux locaux.

[16] http://www.soprema.fr/produits/fiche/1338069/1152/SOPRALENE-FLAM-JARDIN dernière consultation le 13/02/2014.

Ce stockage pourrait être particulièrement pertinent pour l'aspect thermique du bâtiment, notamment en été, et la gestion quantitative à la source des eaux de pluie.

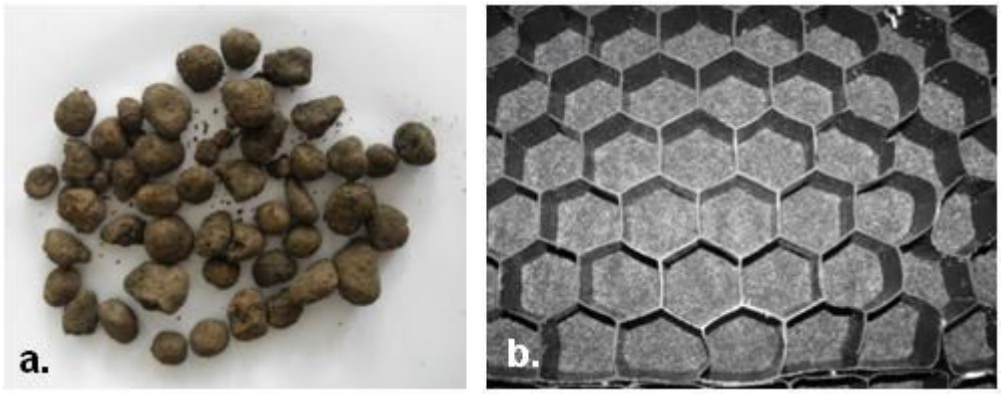


Figure 9 - Matériaux utilisés en couche de drainage sur les toitures végétalisées expérimentales : a. argile expansée ; b. structure synthétique stockante

Couche filtrante

La même couche filtrante a été introduite sur toutes les toitures végétalisées entre le drainage et le substrat. Elle permet notamment de retenir les particules fines du substrat afin d'éviter le colmatage du drainage. Le géosynthétique non tissé utilisé répond aux caractéristiques définies par les règles professionnelles françaises (ADIVET *et al.*, 2007) et présente notamment une retenue des particules de diamètre > 0,063 mm.

Substrats

Trois types de substrats ont été sélectionnés. Le premier est comparable à ce qui est classiquement utilisé en toiture végétalisée extensive (paragraphe 1.2.1 de cette partie) et proposé pour cet usage par l'entreprise Falienor-Terreaux de France qui l'a fourni. Il sera donc dénommé par la suite **substrat extensif**. Il est essentiellement composé de pouzzolane (80%), tourbe blonde (10%) et écorce de pin (10%) (Figure 10 a).

Pour favoriser le bon développement des végétaux locaux introduits sur certaines structures et présentés par la suite, Végétoit, entreprise qui a réalisé la végétalisation des toitures, a souhaité installer un substrat qu'elle utilise classiquement en toiture semi-intensive avec une végétation comprenant des Graminées et des petites plantes vivaces en plus des sedums. La teneur en matière organique est notamment légèrement plus élevée que celle du substrat utilisé par cette entreprise en toiture extensive. Ce substrat sera dénommé par la suite **substrat semi-intensif** et est composé d'un mélange varié de matériaux : pouzzolane, argile expansée, terre cuite recyclée, sable de terre cuite et de pierre ponce, scories de charbon, compost et compost d'écorce (Figure 10 b).

Enfin, dans l'objectif d'optimiser le pouvoir épuratoire de ces structures végétalisées, Falienor a fournit un second substrat, appelé **substrat fibre de coco**, qui intègre différents éléments pouvant améliorer la rétention des ETM. Doté d'une partie minérale en pouzzolane comme le substrat extensif, sa part organique est constituée de fibre de coco (Figure 10 c), qui offre une capacité à retenir certains métaux comme Cu et Zn (Conrad & Bruun Hansen, 2007). Ce substrat contient également de la zéolithe, minéral ayant une capacité d'échange d'ion favorable à la rétention de l'ammonium et de Pb notamment (Wingenfelder *et al.*, 2005 ; Wang & Peng, 2010), ainsi que du lithothamne, algue rouge calcaire de la famille des Corallinacées. (Annexe V)

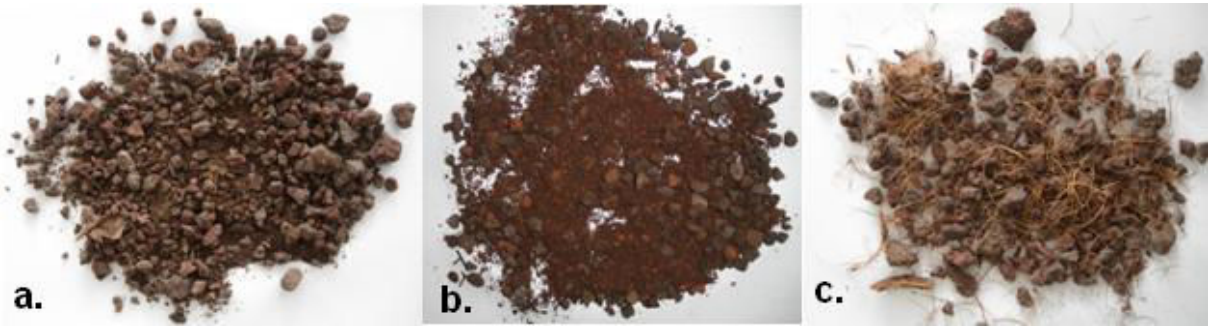


Figure 10 – Substrats utilisés sur les toitures expérimentales a. extensif, b. semi-intensif, c. fibre de coco

Une épaisseur de substrat de l'ordre de 10 cm a été adoptée sur l'ensemble des parcelles végétalisées. Dans la gamme haute des substrats de toitures végétalisées extensives, il permet l'introduction d'une gamme de végétaux plus large tout en limitant la charge sur la structure.

Végétaux

Le choix des végétaux s'est orienté vers des espèces locales, réduisant ainsi l'introduction possible d'espèces invasives et offrant à la faune locale un biotope *a priori* plus favorable. Ainsi, deux milieux naturels de la région ont été considérés, en raison des conditions proches de celles des toiture (peu d'eau et de nutriments disponibles, fortes variations de température) : les différents biotopes de l'étage montagnard des Vosges et les pelouses calcaires sur milieu karstique. Avec l'aide du jardin botanique du Haut-Chitelet, jardin d'altitude du Jardin botanique de Nancy situé dans les Vosges, ainsi que l'association Floraine pour les plateaux calcaires lorrains, des listes de végétaux naturellement présents dans ces milieux ont été établies. Ensuite, ces listes ont été croisées à celles des végétaux pouvant pousser sur des toitures végétalisées (Snodgrass & Snodgrass, 2006). Une dizaine d'espèces de chaque liste a été sélectionnée et introduites sur deux parcelles du dispositif de toitures végétalisées (Figure 11 b. et c.). Sur les autres parcelles, afin de se rapprocher de ce qui se fait couramment en France, un libre

choix d'un mélange de plantes « classiques » de végétalisation de toitures, des sedums, a été laissé à l'entreprise (Figure 11). Les différents végétaux introduits sont listés dans l'Annexe VI.

La végétalisation a été réalisée par plantation de micro-mottes à raison de 10 à 20 plants par m². Il s'agit également de l'une des techniques les plus largement utilisées en France, offrant un recouvrement plus rapide que le semis de fragment et un coût moindre par rapport à des tapis pré-plantés.

2.1.3 Installation et vie courante des structures

Répartition des matériaux et travaux

Les différents matériaux ont été assemblés de façon à réaliser des structures différentes d'une autre par rapport à un des matériaux afin de pouvoir comparer l'impact spécifique de ce matériau. Afin d'avoir un témoin comparable aux couvertures classiques de toitures terrasses, une parcelle gravillonnée a également été réalisée et suivie de la même façon que les parcelles végétalisées. Les dénominations des structures sont basées sur l'élément qui les caractérise plus spécifiquement par rapport aux autres (Figure 12). La toiture Extensive, par exemple, représente une structure classique de toiture végétalisée extensive comme on en trouve sur le marché français actuellement avec un substrat à la composition relativement classique comme évoqué précédemment, un mélange de sedums et de l'argile expansée en drainage. Visuellement les structures se distinguent essentiellement en fonction du mélange de végétaux introduits (Figure 11).

Figure 11 - Trois parcelles expérimentales du Laboratoire de Nancy munies des trois mélanges de végétaux en mai 2012 : a. extensive (mélange de sedums), b. plateaux calcaires lorrains, c. Vosges

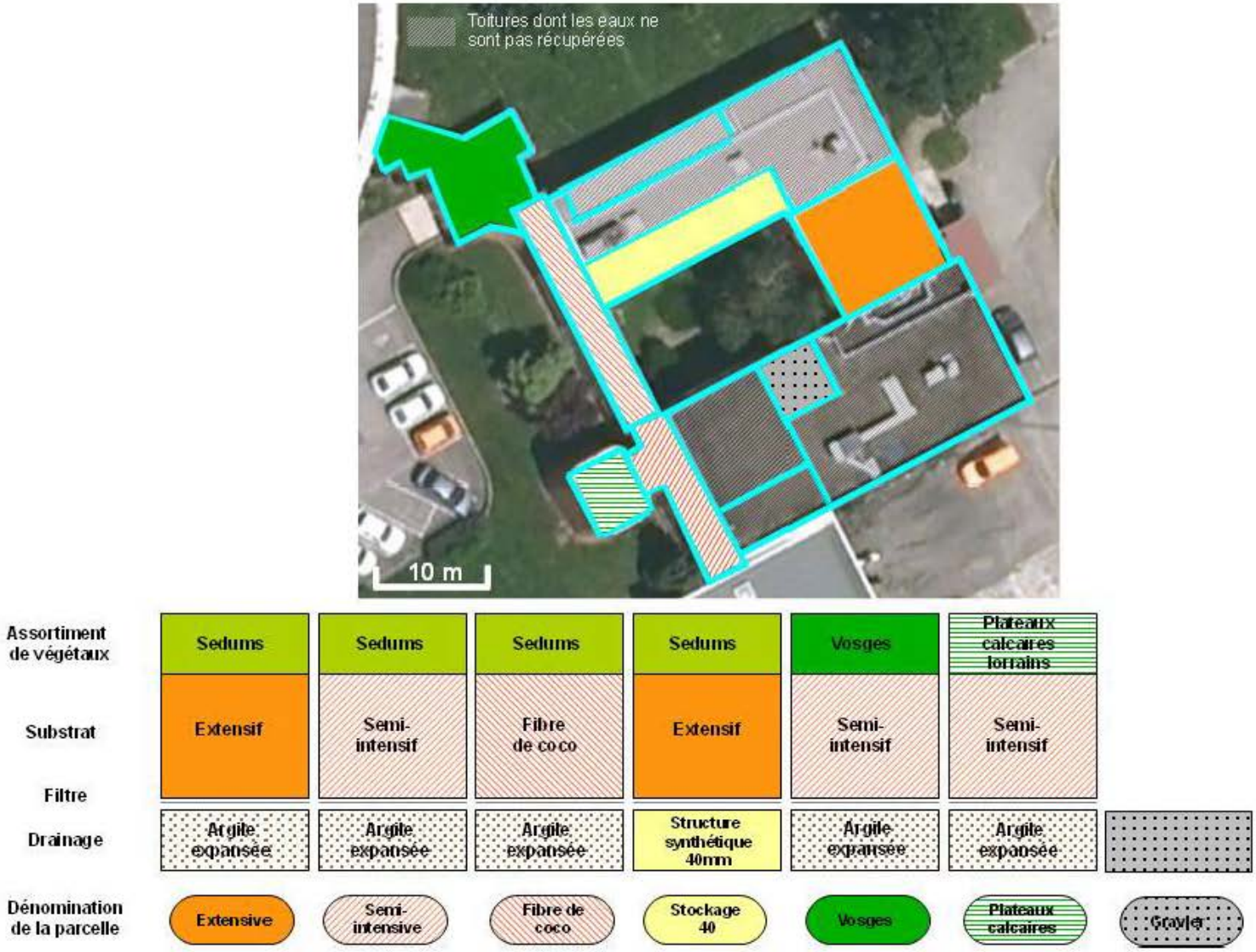


Figure 12 - Répartition des différentes structures végétalisées sur les toits du Laboratoire de Nancy (Cerema – Direction territoriale Est)

Dispositif spécifique de régulation de la hauteur d'eau

Des systèmes de régulation de la hauteur d'eau, de hauteur variable et maximale égale à la hauteur de la couche de drainage (de 0 à 4,5 cm avec un pas de 1,5 cm), ont été mis en place. La hauteur d'eau à stocker a donc été déterminée en coordination avec des travaux menés parallèlement sur la thermique du bâtiment. Un stockage à 4,5 cm était présent sur l'année 2011. Il a été supprimé progressivement par palier de 1,5 cm sur deux semaines fin décembre 2011. L'écoulement était libre durant l'année 2012 et le système a été remis en place à 4,5 cm en février 2013.

Phase travaux

Les travaux d'étanchéité ont débuté en octobre 2010. Les drainages, filtres et substrats ont été installés en novembre 2010 avec quelques espèces végétales encore implantables à cette période tardive de l'année. Les substrats et l'argile expansée, apportés sur les chantiers dans des « *big bags* » d'environ 1 m^3, ont été étalés sur les surfaces de toit sans mélange préalable des récipients (Figure 13). Le reste des végétaux a été introduit en avril 2011. De l'engrais à diffusion lente a également été apporté manuellement à la structure à cette période (environ 6 g m^{-2}) pratique fréquente des professionnels du domaine.

Figure 13 - Substrat versé directement sur la toiture depuis le « big bag »

Entretien des toitures

Les mois qui ont suivi l'implantation des végétaux, avril et mai 2011, ont été particulièrement secs. Ainsi pour assurer la bonne prise des micro-mottes, trois campagnes d'arrosage ont été réalisées de façon à humidifier les premiers centimètres du substrat comme cela est préconisé durant la phase de confortement[17].

[17] Période nécessaire à la végétation pour recouvrir 80% de la surface (ADIVET *et al.*, 2007).

Pour l'entretien courant, qui débute lorsque la phase précédente s'achève (en 2012 pour la majorité des parcelles expérimentales du Laboratoire Nancy), il a été décidé de se baser sur les préconisations des professionnels pour les aspects liés à la sécurité et à la pérennité de la structure, comme, par exemple, vérifier que les évacuations d'eaux pluviales ne sont pas bouchées ou encore supprimer les adventices qui pourraient détériorer l'étanchéité. Du fait des suivis expérimentaux, les passages étaient plus fréquents que ce qui est conseillé, de l'ordre de 6-7 visites par an contre 1-3 conseillées. Pour les pratiques relatives à l'esthétique, la stratégie de maintenance s'est fondée sur ce qui est réellement effectué en pratique. Aucun apport d'engrais n'est généralement réalisé, par oubli, manque de temps ou d'intérêt (Schwager *et al.*, 2013a). Il a donc été décidé de ne pas apporter d'engrais, ceci permettant en outre de mieux intégrer ces structures dans une démarche d'entretien durable et de limiter les apports de nutriments dans les eaux. L'arrosage en phase courante n'est généralement pas nécessaire en toiture extensive et n'est pas non plus réalisé par les propriétaires.

2.2 Instrumentations et suivis in situ

2.2.1 Sélections des polluants étudiés

Comme évoqué précédemment dans le paragraphe 1.1.3, seul l'*arrêté du 25 janvier 2010 relatif aux méthodes et critères d'évaluations des masses d'eaux de surface* fournit une liste de métaux avec des NQE associées en lien avec le contexte de gestion à la source des eaux pluviales dans lequel se place ce projet : Cd, Hg, Ni et Pb pour la détermination de l'état chimique et As, Cr, Cu et Zn ajoutés à l'échelle nationale en tant que substances spécifiques de l'état écologique. Du fait des contraintes spécifiques de préparation et d'analyse de Hg, il a été décidé de ne pas le suivre dans le cadre de ce projet.

Avant d'être remplacés au milieu du XXème siècle par des substances organiques, certains ETM ont pu être utilisés comme produits phytosanitaires (Zimdahl, 2010). Or, les fabricants d'étanchéité ne divulguent pas les substances utilisées dans l'étanchéité pour lui prodiguer ses propriétés anti-racines. Ainsi une recherche bibliographique a été réalisée afin d'identifier ces ETM et de les ajouter à la liste des substances à suivre au cas où ils auraient été introduits en quantité importante dans l'étanchéité pour ces fonctions spécifiques. Certains éléments présents dans la liste précédente comme Cu, As et Cr ont été identifiés tout comme B et Sb qui ont donc complété la liste d'éléments à suivre (Hansen, 1988 ; Shriver & Atkins, 1999 ; Pousset, 2003). Ces deux éléments sont d'ailleurs présents dans la circulaire du 23 octobre 2012 relative à l'application de l'*arrêté du 17 décembre 2008 établissant les critères d'évaluation et les modalités de détermination de l'état des eaux souterraines et des tendances significatives et durables de dégradation de l'état chimique des eaux*

souterraines. Ils entrent donc le cadre de la gestion qualitative des rejets urbains de temps de pluie dans un contexte d'infiltration.

2.2.2 Caractérisation initiale et finale des structures végétalisées

Analyses des substrats

L'évolution des caractéristiques des substrats a été fondée sur des échantillonnages effectués à l'installation sur la toiture et à la fin des expérimentations. A l'automne 2010, des échantillons ont été constitués directement dans les « *big bags* ». Les prélèvements finaux ont eu lieu en avril 2013. Trois prélèvements par toiture ont été effectués pour le substrat et le drainage puis mélangés pour obtenir un échantillon représentatif de l'ensemble de la structure. Sur la toiture Extensive, cinq prélèvements ont été réalisés dont quatre sous différentes espèces de sedums et un dans une zone dépourvue de végétation. Ils ont été analysés séparément afin d'évaluer la variabilité des caractéristiques au sein d'une même parcelle et selon le couvert végétal. Trois zones différentes ont été distinguées dans le substrat : la première correspond au substrat restant accroché aux racines des végétaux assimilable à la rhizosphère, la seconde au substrat proche de la surface qui s'est séparé des racines et jusqu'à environ 6 cm de profondeur, puis la troisième de 6 cm de profondeur jusqu'au filtre géosynthétique. Seul le géosynthétique filtrant a été prélevé en une seule zone afin de ne pas détériorer les parcelles expérimentales. Les matériaux ont ensuite été débarrassés des débris végétaux et des insectes potentiellement présents avant d'être séchés à l'air.

Une caractérisation agronomique classique a été réalisée sur les trois substrats et l'argile expansée à l'état initial et l'état final par le Laboratoire d'Analyses des Sols de l'INRA d'Arras selon des méthodes normalisées :

- pH (NF ISO 10390)
- granulométrie 5 fractions sans décarbonatation (NF X 31-107)
- carbone organique et total ainsi qu'azote total et teneur en matière organique (NF ISO 10694 et 13878)
- phosphore (P_2O_5) selon méthode Olsen (NF ISO 11263)
- calcaire total et actif (NF ISO 10693 et NF X 31-106)
- capacité d'échange cationique méthode Metson (NF X 31-130)
- extraction des cations échangeables (NF X 31-108).

Des analyses plus spécifiques aux ETM ont également été réalisées par ce laboratoire sur les matériaux intégralement concassés en une fraction < 250 µm :

- quantités totales en As, B, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb et Zn sur les deux séries de prélèvements après minéralisation par eau régale (ISO 11466) ou acide fluorhydrique (NF X 31-147) selon les éléments
- quantités extractibles au $CaCl_2$, NH_4NO_3 et DTPA (la première méthode n'a été appliquée qu'aux matériaux initiaux).

Pour chaque élément, les incertitudes de mesure à prendre en compte ont également été fournies (Tableau 13 avec incertitude = a . « valeur mesurée » + b) et dans les résultats les valeurs inférieures aux limites de détection étaient signalées. En ce qui concerne les incertitudes liées aux prélèvements d'échantillons, seuls les 5 prélèvements issus de la toiture Extensive en avril 2013 ont pu été analysés séparément permettant ainsi d'évaluer les variations en différents points d'une même toiture. Les autres ont été regroupés en un seul échantillon.

Tableau 13 - Incertitudes et biais de mesure liés à l'analyse des teneurs en ETM dans les substrats et l'argile expansée

	a	b
As total HF	0,042	0,02
Sol Hg total	0,067	0,0011
Cd Eau régale	0,061	0,022
Cr Eau régale	0,061	2,6
Cu Eau régale	0,042	1,2
Ni Eau régale	0,082	3,1
Pb Eau régale	0,040	2,2
Zn Eau régale	0,042	2,6

Source : LAS – INRA d'Arras

Des essais de lixiviations ont été conduits à partir de la norme EN NF 12457-3 : 2002, dédiée aux déchets mais déjà utilisée sur des matériaux de toitures végétalisées (Molineux *et al.*, 2009). Après quartage d'un échantillon de volume plus important et concassage, 5 g de matériau sont mis en suspension dans 10 mL d'eau déminéralisée pendant 6 h avec rotation à 16 tours min^{-1}. Un premier prélèvement est réalisé, filtré à 0,45 µm puis acidifié avec 0,5% d'acide nitrique *trace metal grade*. Ensuite le volume d'eau est complété afin d'obtenir 50 mL de solution agitée pendant 18 h. Un second prélèvement est effectué et filtré puis acidifié. L'ensemble des échantillons est ensuite stocké en chambre froide à +4°C avant analyse par ICP OES (Laboratoire Sols et Environnement). Ces essais ont été réalisés en trois réplicas, permettant ainsi d'évaluer les incertitudes liées aux manipulations.

Les matériaux synthétiques comme le filtre, la structure synthétique stockante et l'étanchéité ont été soumis à un protocole de minéralisation à partir de HNO_3 (Annexe VII) afin de déterminer les

teneurs totales en ETM. Ils ont ensuite été analysés à l'ICP MS (*Inductive Coupled Plasma – Mass Spectrometry)* à l'IFSTTAR (paragraphe 2.2.5 pour les incertitudes de mesure associées).

Des analyses complémentaires ont également été réalisées sur les matériaux prélevés initialement. La surface spécifique a été évaluée grâce à la méthode Brunauer-Emett-Teller (BET) et la porosité, le volume et la distribution des tailles des pores par porosimétrie au mercure. Ces analyses ont été réalisées sur matériaux non concassés, afin de connaître les caractéristiques des matériaux utilisés en conditions réelles, par le laboratoire Delft Solids Solutions. Une analyse des espèces cristallisées a également été réalisée sur matériaux concassés par diffraction aux rayons X (LIEC, Université de Lorraine-CNRS).

Comportement de l'eau dans le substrat

Dans le substrat de chaque parcelle, deux types de capteurs sont intégrés :

- une sonde de mesure de la teneur en eau, mesurant également la température,
- un capteur pour la mesure du potentiel matriciel du sol, qui renseigne sur l'eau disponible pour les végétaux.

Les capteurs existants sur le marché étant généralement destinés à des sols plus « classiques », plus cohésifs que les substrats de toitures végétalisées, un essai avait été réalisé en laboratoire afin de vérifier que les gammes de mesure étaient adaptées et que les variations au cours du temps étaient bien détectées. Avant mise en place sur les toitures, ces capteurs ont été étalonnés afin que l'ensemble des capteurs donne les mêmes résultats dans une situation donnée. Chaque structure dispose de deux capteurs de chaque type afin de pouvoir détecter au plus vite d'éventuels dysfonctionnements de l'un d'entre eux. Au sein de la parcelle, les mêmes capteurs sont placés au milieu du substrat et à l'opposé l'un de l'autre tout en évitant d'être trop près du bord et suffisamment loin également de l'autre type de capteur afin de ne pas induire de potentielles interactions entre ces deux types de capteurs. (Annexe VIII)

Suivis du développement de la végétation

Trois zones de 1 m^2 ont été définies sur chaque parcelle de façon permanente afin de réaliser un suivi du développement de la végétation représentatif de l'ensemble de la parcelle. Ces inventaires sont réalisés tous les mois environ, d'avril à septembre puis tous les deux à trois mois pendant le reste de l'année, voire moins selon les conditions météorologiques qui restreignent l'accès aux toitures expérimentales (gel, neige, forte pluie et vent). Le nombre de plants de chaque espèce est évalué ainsi que leur diamètre et hauteur. Le pourcentage de recouvrement global et par espèce est

défini à partir de la « Charte pour l'estimation visuelle des rapports de surface » (d'après Folk, 1951 in Baize & Jabiol, 1995).

Prélèvements des végétaux

L'ensemble des végétaux initialement introduits a été prélevé avant implantation sur les toitures en octobre 2010 et avril 2011. Puis seuls *Sedum album* (*S. album*) et *Sedum reflexum germanium (S. reflexum g.),* les deux variétés présentes sur toutes les toitures, ont été prélevés tous les six mois : octobre 2011, avril 2012, octobre 2012 et avril 2013. Plusieurs prélèvements par toiture étaient réalisés en différentes zones afin de réaliser un échantillon représentatif de l'ensemble de la structure. Enfin, en avril 2013, des prélèvements complémentaires des espèces représentant des pourcentages de recouvrements important ont été réalisés sur l'ensemble des toitures et regroupés par nature de substrat (extensif, semi-intensif et fibre de coco) : *S. album, S. reflexum g., S. spurium*, *S. floriferum*, *S. sexangulare* et *S.hispanicum*. Afin de déterminer la masse de végétaux frais par m^2, les parties aérienne et souterraine ont été d'abord séparées. La masse a été rapportée à la surface de la zone prélevée initialement mesurée sur le terrain lors des prélèvements.

Réalisation des lames minces de substrat et de coupes de végétaux

Lors de la campagne de prélèvements d'avril 2013, quatre blocs de substrat ont été prélevés sur la toiture Extensive sous différents types de sedums (*floriferum, spurium, reflexum et album*) dans des boîtes de Kubiena (90 x 60 x 50 mm). Les boites vides sont enfoncées horizontalement dans le sol, puis désolidarisées du substrat avec un couteau (cf. Figure 14). Après extraction, les boîtes ont été transportées délicatement au laboratoire (LSE, Université de Lorraine - INRA). Sortis des boîtes, les blocs de substrats sont séchés à l'air, puis à l'acétone avant d'être imprégnés progressivement par une résine (Norsodine 2984, résine polyester liquide) polymérisant à 65°C. Des plaquettes de chaque bloc de 10 mm environ ont été découpées, puis amincies à 60 µm d'épaisseur (50 x 80 mm) par ponçage avec une pâte abrasive de carbure de silicium. Une lame de verre a été collée sur une face de la plaquette ainsi rectifiée. Finalement les lames minces de substrat sont amincies manuellement jusqu'à 20 µm à l'aide de papier abrasif fin. Une description générale des lames ainsi obtenues a été réalisée avec un grossissement allant de x 8 à x 60 grâce à une loupe binoculaire équipée d'un appareil photo (Leica Microsystems AG). Les descriptions ont concerné l'identification des matières organiques et minérales, ainsi que l'agencement relatif de ces matières organiques et de la porosité. Une grille de 5 mm x 5 mm a pu être superposée aux lames, afin de repérer des zones d'intérêt et de procéder à des comptages, notamment pour évaluer la porosité des substrats.

Simultanément aux prélèvements de substrats, des échantillons de tiges, feuilles et racines des sedums des mêmes blocs ont été réalisés. Des fragments millimétriques de ces matières organiques ont été conditionnés en vue de leur observation en microscopie électronique à transmission : fixation chimique au tétroxyde d'osmium, déshydratation progressive dans des bains d'acétone et imprégnation dans une résine Epoxy. Des coupes de 200 nm ont alors été réalisées à l'aide d'un ultramicrotome (Ultracut, Reichert) équipé d'un couteau en diamant, puis colorées avec du bleu de toluidine, permettant de contraster les tissus lors de l'observation à la loupe binoculaire. En vue d'une observation au microscope électronique à transmission (JEM 1200 EX II, 80 kV), des coupes de 80 nm d'épaisseur ont également été réalisées. Dans un souci de représentativité, une dizaine de coupes par échantillon ont été récupérées sur des grilles en nickel de 3 mm de diamètre, mises ensuite au contact de solutions de métaux lourds (citrate d'uranium et acétate de plomb) permettant d'augmenter le contraste aux électrons des matières organiques des échantillons. Des coupes non contrastées sont utilisées pour l'analyse élémentaire par EDX (énergie dispersive des rayons X, microanalyseur Quantax, détecteur XFlash). Des spectres sont ainsi obtenus et une évaluation de la quantité d'ETM présents au point d'analyse est possible grâce à la comptabilisation du nombre de coups induits par des photons aux longueurs d'ondes associées spécifiquement à ces éléments. Des réplicats ont été réalisés pour l'analyse de certains tissus et dans la résine Epoxy, permettant ainsi d'obtenir une évaluation de l'incertitude d'analyse et du biais lié au mode de préparation de la coupe (notamment présence de Ni et traces de Cu dans la lame sur lesquelles sont déposées ces coupes). Des particules de substrat extensif (mélange de pouzzolane, écorce de pin et tourbe) issues des prélèvements initiaux ont été broyées et mise sur lame suivant le même protocole pour observation au MET également.

Figure 14 - Prélèvement du substrat extensif dans une boîte de Kubiena

2.2.3 Entrées du système

Données météorologiques

Les données météorologiques sont fournies par Météo France Nancy, dont la zone de mesure est située à moins de 200 m des parcelles expérimentales. Différentes informations sont fournies avec un pas de temps de 3 h : vitesse du vent, température, insolation, rayonnement global, pluviométrie ainsi qu'une valeur d'évapotranspiration calculée à partir d'un modèle météorologique. Les données pluviométriques à un pas de temps horaire sont également fournies gracieusement par le Centre National de Recherches Météorologiques.

Dépôts atmosphériques

L'ensemble des dépôts atmosphériques, appelés par la suite dépôts atmosphériques globaux ou DAG, est récupéré à l'aide d'un entonnoir en PEHD d'environ 50 cm de diamètre dans un bidon de récupération en PEHD placé sur la même toiture que la parcelle témoin en gravier, dans une zone où les eaux en sortie de toiture ne sont pas récupérées (Figure 15).

Figure 15 - Entonnoir permettant la récupération des dépôts atmosphériques.

Apports anthropiques

Les structures végétalisées ont été soumises à un seul apport d'engrais en dehors de celui potentiellement déjà présent initialement dans les substrats. Cet apport manuel a eu lieu en avril 2011, lors de l'implantation des végétaux. La masse d'engrais introduite au m² a été mesurée. Un échantillon de cet engrais a également été prélevé et 4 g ont été dissous dans 400 ml d'eau ultrapure. L'échantillon a été passé aux ultrasons pour parfaire la désagrégation des particules puis une partie de l'échantillon a été filtré à 0,45 µm sur un filtre à seringue. Il a ensuite été acidifié à 0,5% avec de l'HNO_3 puis stockés au réfrigérateur avant analyse à l'ICP OES au LSE.

2.2.4 Sortie du système

Volatilisation

Les métaux et métalloïdes sont généralement considérés comme très faiblement voire pas volatiles (Lamprea, 2009 ; Bisson *et al.*, 2003 et 2005a, b). Parmi les éléments considérés dans le cadre de ce projet, seuls As et Sb présentent une volatilité potentielle dans les conditions du milieu. Cependant, les cas de passage sous forme de vapeur de Sb recensés sont issus de procédé de combustion (Bisson *et al.*, 2007) qui sont inexistants sur les toitures expérimentales étudiées. Concernant As, certains de ces composés organiques comme l'arsine sont volatils (La Rocca *et al.*, 2010). Certaines études suggèrent la présence de ce composé sur des sols mais uniquement dans des environnements très humides (Alloway, 1995) ce qui n'est pas non plus le cas dans le cadre de cette expérimentation. La volatilisation de l'As est le résultat de processus microbiens, notamment la méthylation qui produit des formes organiques volatiles de l'As. Par la suite, les pertes d'ETM du système par volatilisation seront donc considérées comme négligeables en comparaison des flux issus des eaux en sortie de toiture et des prélèvements par les végétaux. C'est pourquoi aucun système d'instrumentation visant à évaluer ces pertes n'a été mis en place.

Eaux en sortie de toiture

Les volumes d'eau en sortie de toiture sont mesurés grâce à des débitmètres à auget en acier disposant d'un système de récupération de 1% du flux, qui est ensuite collecté dans un bidon en PEHD, le restant allant au réseau d'assainissement comme les gouttières initiales avant installation des dispositifs expérimentaux. Le fabricant indique une incertitude liée à la mesure du débit par ces systèmes de l'ordre de 0,36 %. Des blancs réalisés en septembre 2012 sur un auget préalablement nettoyé ont confirmé que celui-ci n'émettait pas de quantités significatives d'ETM (Annexe IX). En outre, même si ces émissions d'ETM sont amenées à évoluer au cours du temps, il est toujours possible de réaliser des comparaisons entre les différentes parcelles expérimentales considérées puisqu'elles sont toutes équipées du même dispositif de prélèvement.

Les concentrations d'ETM sont déterminées à partir des analysées réalisées par ICP MS (*Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)* (paragraphe 2.2.5). Les flux sont ensuite calculés en multipliant les concentrations obtenues par le volume en sortie des toitures et rapportés à la surface de la parcelle concernée, obtenant ainsi une donnée en mg m^{-2} sur une période donnée. Cette donnée permet de savoir si la rétention de polluants atmosphériques est supérieure à une émission potentielle des matériaux de la toiture (flux inférieur en sortie par rapport à l'entrée) ou à l'inverse

s'il y a un rejet de métaux par les matériaux plus importants que la part de polluants atmosphériques potentiellement retenus (flux supérieur en sortie par rapport à l'entrée).

Evaluation de la capacité épuratoire des toitures

Afin de comparer les performances des différentes toitures sur les différents métaux et métalloïdes étudiés, la capacité épuratoire des toitures, $C_{ép}$, a été calculée de la façon suivante :

$$C_{ép.} = \frac{Flux\ entrant - Flux\ sortant}{Flux\ entrant} \qquad (1)$$

Ainsi, pour une substance donnée, une capacité épuratoire de 1 signifie que le flux sortant est quasiment nulle, impliquant une rétention quasi-totale des polluants atmosphériques et démontrant un rejet très limité de cette substance par les matériaux constitutifs de la toiture.

Une capacité épuratoire comprise entre 0 et 1 indique une diminution partielle des flux en sortie par rapport à l'entrée, par exemple une capacité épuratoire de 0,8 indique que les flux ont diminué de 80% entre l'entrée et la sortie. Cela implique soit :

- une rétention totale des polluants atmosphériques associée à un rejet limité de métaux par les matériaux constitutifs de la toiture
- pas de rejets par les matériaux de la toiture mais une rétention partielle des polluants atmosphériques
- une combinaison d'une rétention partielle et d'un rejet limité.

Une capacité épuratoire égale à 0 indique que les flux entrants et sortants sont similaires : soit il n'y a eu ni rejet d'ETM par les matériaux de la toiture ni rétention des polluants atmosphériques, soit ces deux phénomènes se compensent.

Enfin, une capacité épuratoire < 0, indiquant un flux supérieur en sortie par rapport à l'entrée, implique systématiquement un rejet de polluants par les matériaux constitutifs de la toiture, potentiellement accompagné d'une rétention de ces mêmes substances issues de l'atmosphère.

2.2.5 Analyses des ETM dans les eaux et les végétaux par ICP MS

Préparation des échantillons

Les eaux issues des dépôts atmosphériques et des toitures sont récupérées mensuellement à la même période. Le bidon est préalablement agité avant récupération d'un échantillon représentatif dans un jerricane de 5L. Le pH et la conductivité sont mesurés sur cet échantillon. Une partie de celui-ci est filtrée sur filtre Millipore en acétate de cellulose à 0,45 µm. Les filtres sont ensuite séchés à l'air libre puis pesés. Ils font l'objet d'une minéralisation avec de l'acide nitrique (Annexe VII). Un

échantillon total est également conservé dans un flacon de 250ml en PEHD. Les phases dissoutes et totales sont acidifées à 0,5% avec de l'acide nitrique pour analyse de métaux en trace.

Pour les végétaux, les parties aériennes sont séparées des parties souterraines puis pesées séparément afin de déterminer la masse de végétaux frais. Elles sont ensuite lavées avec de l'eau déminéralisée afin de débarrasser les parties souterraines du substrat et les parties aériennes des dépôts atmosphériques. Ces dernières eaux ont été conservées en octobre 2012 et avril 2013. Les végétaux lavés sont ensuite grossièrement hachés avec un couteau en plastique puis mis à l'étuve à 40°C jusqu'à ce que la masse de l'échantillon ne varie plus. Les échantillons secs sont pesés afin de déterminer le ratio plante sèche/plante fraîche puis réduits en poudre à l'aide d'un broyeur en agate avant d'être soumis à un protocole de minéralisation associant eau oxygénée et acide nitrique. Les eaux de lavage étaient soumises à un protocole d'analyse des teneurs totales en ETM en solution (Annexe VII).

Tous ces échantillons sont ensuite conditionnés pour passage à l'ICP MS et stockés dans un réfrigérateur à +4°C avant analyse.

Incertitudes d'analyses et limites de quantification

Les teneurs en ETM dans les solutions de phases dissoute et particulaire des eaux en entrée et sortie des toitures ainsi que celles issues du protocole de minéralisation des végétaux ont été mesurées par ICP MS à l'IFSTTAR (Nantes). Les limites de quantification pour les différents métaux sont indiquées dans le Tableau 14.

Tableau 14 - Limite de quantification et incertitude relative à 95% dans le cadre des mesures de concentrations en ETM à l'IFSTTAR Nantes

	As	**B**	**Cd**	**Cr**	**Cu**	**Ni**	**Pb**	**Sb**	**Zn**
Limite de quantification (µg l^{-1})	0,1	10	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	10	0,1
Incertitude relative à 95% (%)	9	6	8	4	13	9	9	0,5	6

L'incertitude de mesure a été évaluée grâce aux Contrôles Qualité Internes (CQI), essais internes au laboratoire, et à l'établissement d'une carte de contrôle pour chaque élément analysé. Lors de la mesure d'un paramètre, un échantillon CQI de concentration connue est analysé en même temps

que la série d'échantillons. Les résultats des CQI doivent suivre les caractéristiques de la distribution Normale c'est-à-dire que 67% des résultats sont dans l'intervalle [−1σ, +1 σ], 95% dans [−2 σ, +2 σ] et 99% dans [−3 σ, +3 σ]. Ces résultats sont ensuite reportés sur un graphique appelé carte de contrôle, où figurent le nombre d'échantillons de CQI (en abscisse) et la concentration obtenue pour chacun des CQI (en ordonnée). La moyenne de l'ensemble des précédents résultats du laboratoire ainsi que l'écart type sont calculés, ce qui permet de placer les limites de surveillance et de contrôle sur la carte (Figure 16). Pour les ETM étudiés par la suite, les incertitudes relatives à 95% tirés des cartes de contrôles qualité interne sont présentées dans le Tableau 14.

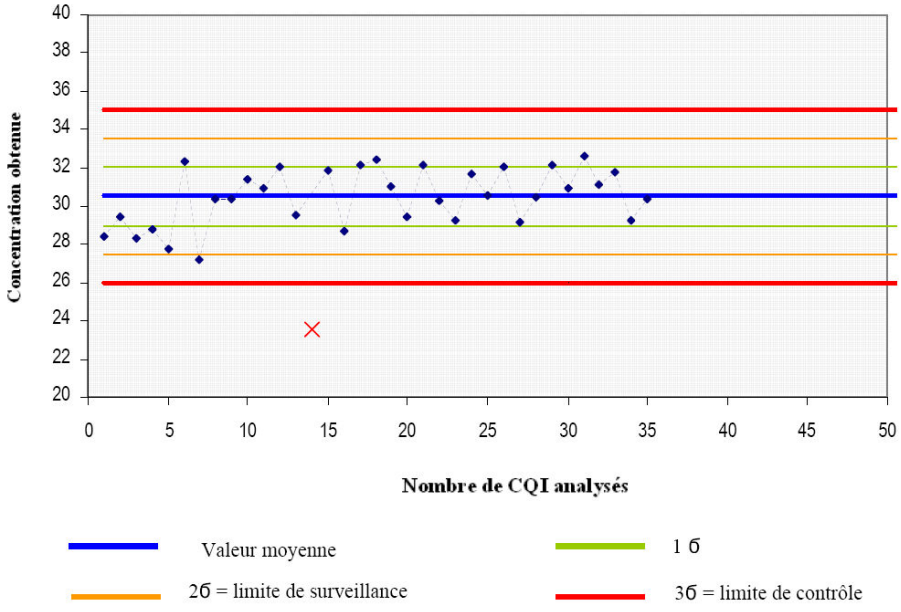


Figure 16 - Exemple d'une carte de contrôle établie à l'aide des CQI. Source : Lamprea, 2009

2.3 Essais en laboratoire

2.3.1 Essais en batch

Les isothermes et cinétiques de sorption de Cu et Zn sur les substrats, drainages et différents constituants du substrat extensif considérés individuellement (écorce de pin, tourbe, pouzzolane) ont été obtenues grâce à des essais en batch réalisés au laboratoire. Les matériaux ont préalablement été prélevés par quartage, séchés à l'air libre et concassés avec un broyeur en porcelaine. Les essais ont été réalisés séparément pour Cu et Zn. Les solutions réalisées sont basées sur une eau de pluie simulée composée d'eau déminéralisée et de Volvic afin de se rapprocher de la minéralité des eaux de pluie (Van de Voorde, 2012). Les sels métalliques utilisés sont $CuSO_4$ et $ZnCl_2$.

Pour les isothermes, 5 g de matériau ont été mis en contact et agités à 16 tours min^{-1} avec 50 mL de solution pendant plus d'une semaine avec différentes concentrations (Tableau 15). Environ 10 ml de solution a ensuite été prélevé dans chaque récipient.

Des essais de désorption ont été réalisés sur les échantillons issus des essais de sorption. La solution restante dans les flacons a été éliminée. Les flacons ont été pesés afin d'évaluer la masse de solution restante par rapport au poids initial de matériau introduit, permettant ainsi d'estimer la quantité d'ions en solution issue de la solution de sorption résiduaire. Les flacons ont été complétés avec de l'eau de pluie simulée afin d'obtenir au total 50 ml de solution. Ces échantillons ont été agités à 16 tours min^{-1} pendant plus d'une semaine puis environ 10 mL de solution ont été prélevés. Des mesures de pH et de COT (Carbone Organique Total) ont été réalisées pour chaque échantillon. Ce dernier paramètre a été évalué grâce à la différence entre les concentrations de C total et de C inorganique après acidification grâce à un détecteur infrarouge (*Total Organic Carbon Analyzer TOC-VCSN*).

Tableau 15 - Concentrations molaires et massiques de Cu et Zn utilisées dans le cadre des essais d'isothermes de sorptions en batch

Concentration massique (mg L-1)	0	0,5	5	20	50	200	500	1000	2000	4000	7000	10000
Concentration molaire en Cu (mmol L^{-1})	0	7,6	76	306	760	3060	7600	15300	30600	61200	107000	153000
Concentration molaire en Zn (mmol L^{-1})	0	7,8	78	310	780	3140	7800	15700	31500	62900	110000	157000

Dans le cadre des cinétiques, 100 g de matériau ont été mis en équilibre par agitation avec 1 L d'eau de pluie simulée pendant plus de 48 h avant l'introduction d'une masse de sel métalliques permettant d'atteindre une concentration de 1 g L^{-1} pour Cu et 2,5 g L^{-1} pour Zn. Un échantillon de 10 ml a été ensuite prélevé à des temps définis : 1, 3, 5, 10, 30, 50, 100, 300 minutes, 1, 2, 3 jours puis une semaine.

Les différents échantillons prélevés ont été ensuite filtrés à l'aide de filtre à seringue à 0,45 µm. La solution a été acidifiée à 0,5% avec HNO_3 pour analyse de métaux en trace puis diluée par 100 en trois réplicas si la concentration attendue était supérieure à 50 mg L^{-1}. Les teneurs en Cu et Zn ont été déterminées par ICP OES au LSE (Annexe X). L'ensemble de ces expérimentations a été réalisé en trois réplicas afin de prendre en compte les incertitudes liées aux manipulations.

En vue du calage d'un modèle de transfert de polluants à travers la structure végétalisée Extensive (substrat extensif et argile expansée) (Annexe XI), le même protocole a été utilisé pour réaliser des essais complémentaires dans des conditions plus proches de la réalité en utilisant des matériaux non concassés, en faisant varier le pH de la solution initiale à l'aide de soude et en utilisant des concentrations en ETM moins éloignées de ce qui est trouvé dans les dépôts atmosphériques (20 mg L^{-1} pour les cinétiques et 0,5 mg L^{-1}, 5, 50, 500 et 2000 mg L^{-1} pour les isothermes). Les résultats obtenus seront également utilisés pour mieux comprendre les mécanismes liés aux processus de rétention d'ETM par ces matériaux.

2.3.2 Essais en colonne

Principe

Le matériau étudié a été préalablement séché à l'étuve à 40 °C jusqu'à stabilisation de sa masse puis concassé à une granulométrie inférieure à 1 mm. Il a ensuite été placé dans une colonne en verre de diamètre 2,6 cm et hauteur 20 cm (*XK column, GE Healthcare*). La hauteur de matériau a été réglée à l'aide de deux pistons munis de filtre en nylon de 10 µm permettant d'éviter l'entraînement des particules dans les tuyaux de sortie. Cette colonne a été reliée à un système de chromatographie liquide comprenant une pompe et un système d'injection, des sondes de pH, conductivité et température ainsi qu'un préleveur automatique en sortie (*ÄKTAPrime, GE Healthcare*). L'écoulement dans les colonnes est ascendant, permettant de placer le système en milieu saturé, et à un débit constant de 0,3 ml min^{-1}. Le matériau a été mis en équilibre avec une solution de $CaCl_2$ à 76 mmol L^{-1} puis, lorsque le pH est stabilisé, une solution de $ZnCl_2$ à 0,76 mmol L^{-1} (50 mg L^{-1}) a été introduite, permettant la sorption de Zn sur le matériau. L'utilisation de solution aux mêmes concentrations molaires permet de caractériser certains mécanismes induisant ce processus (Gujisaite, 2008). Lorsque la colonne arrivait à saturation et que la concentration en entrée était égale à la concentration en sortie, la solution de $CaCl_2$ a été de nouveau introduite dans la colonne afin de réaliser une phase de désorption de Zn. L'essai a été stoppé lorsque le pH était constant et la teneur en Zn proche de 0.

En sortie de colonne, le pH et la conductivité ont été mesurés en continu et les données acquises sur ordinateur. Les fractions ont été collectées tous les 15 ml en général et tous les 5 ml aux alentours des points de percées et de saturation. Des échantillons des solutions de $CaCl_2$ et $ZnCl_2$ ont également été prélevés en début et fin d'expérimentation, ainsi qu'au début de chaque nouveau bidon de solution utilisé. Les échantillons ont été acidifiés à 0,5 % avec de l'acide nitrique pour analyse de métaux en trace. Les teneurs en Ca^{2+} et Zn^{2+} ont été mesurées à l'ICP OES à l'activité Chimie du Laboratoire de Nancy (Cerema – Direction territoriale Est) (Annexe X).

Modalité testée

Les essais ont porté sur le substrat extensif et l'argile expansée avec les modalités présentées dans le Tableau 16. Lors de la réalisation de l'essai *TV sim* (Toiture Végétalisée simulée), les deux matériaux ont été séparés dans un premier temps avec un disque du filtre présent sur les toitures expérimentales. Cette première technique de séparation des deux matériaux n'a pas permis de mener l'essai de sorption de Zn jusqu'à saturation des matériaux de la colonne, des problèmes répétés de colmatage de ce filtre ayant été rencontrés. Dans un second temps, de la fibre de verre a été placée dans la colonne entre le substrat préalablement introduit et l'argile expansée (Figure 17). Celle-ci a permis la réalisation de l'ensemble de l'essai avec une première étape de sorption de Zn puis une seconde de désorption sans colmatage.

Tableau 16 - Nature et épaisseur de matériau utilisé dans le cadre des différents essais en colonne

Nom de l'essai	Matériau	Hauteur (cm)	Masse (g)	Volume poreux (cm^3)	Temps de contact	Essai de sorption de Zn	Essai de désorption de Zn
AE 5cm	Argile expansée	5	6,08	5,4	18	Oui	Oui
AE 10cm	Argile expansée	10	11,30	10,1	34	Oui	Non
Extensif	Substrat extensif	10	30,47	9,4	31	Oui	Oui
TV sim	Substrat extensif (amont)	10	30,36	9,2	31	Oui	Oui
	Argile expansée (aval)	5	6,4	5,7	19		

Paramètres et analyses

Les masses de matériau introduites ont été obtenues via pesées des colonnes vides et des colonnes contenant les matériaux. Les colonnes ont de nouveau été pesées à la fin de l'essai afin d'évaluer la masse de solution nécessaire pour la saturation du matériau. Le volume poreux des colonnes a été évalué à partir de ces données. Le temps de contact a été calculé à partir du ratio volume poreux / débit volumique. Les temps de percée et de saturation ont été déterminés comme

indiqué sur la Figure 18. Les quantités de Zn sorbées ont été calculées en intégrant la différence entre la concentration en entrée et la concentration en sortie de la colonne au cours du temps.

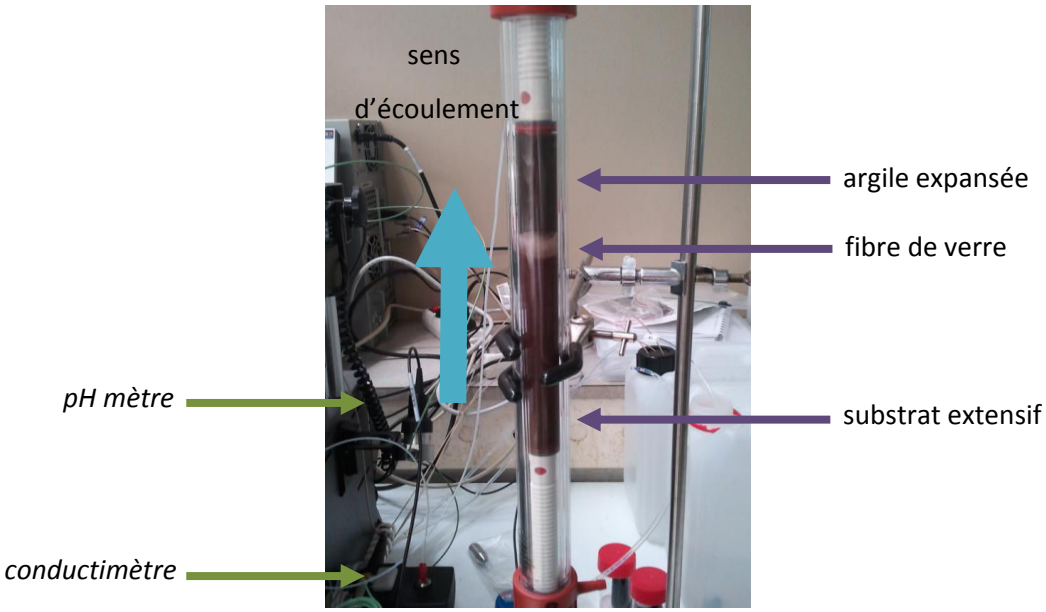


***Figure 17- Photo de la colonne dans le cadre de l'essai de sorption de Zn* TV sim**

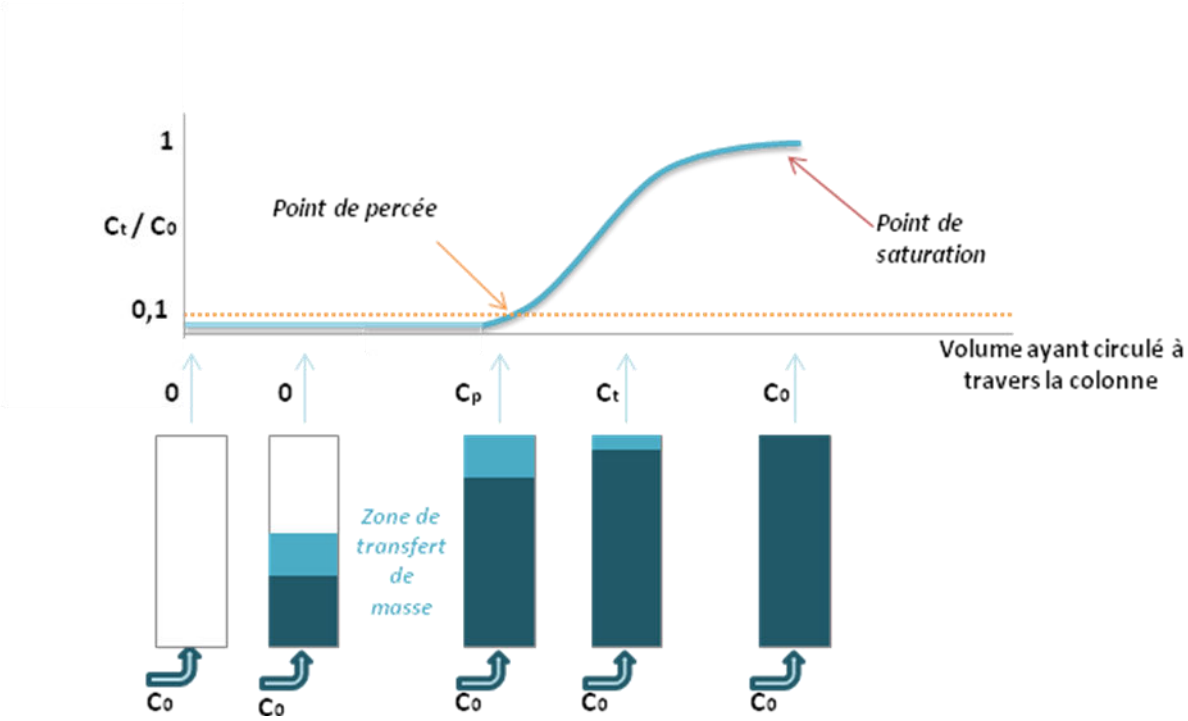


Figure 18 – Courbe de percée classique présentant les différentes étapes d'évolution des concentrations au sein de la colonne en fonction du volume écoulé à travers la colonne. Adapté de Taty Costodes* et al., *2005

2.4 Synthèse de la démarche expérimentale

Le Tableau 17 recense les principaux essais et analyses évoqués précédemment et indique les informations attendues de ces essais. L'ensemble de ces résultats permettra de comprendre les mécanismes rencensés dans la Figure 1 (p.24) induisant une émission ou une rétention d'ETM par les structures de toitures végétalisées et d'obtenir des informations sur leurs évolutions potentielles au cours du temps.

Tableau 17 – Types d'essais réalisés et informations attendures pour la compréhension du comportement des toitures végétalisées vis-à-vis des ETM.

	Types d'essais	Informations fournies
Evaluation des flux d'ETM entrants et sortants	Apports atmosphériques : - Mesure des volumes de pluie - Analyses des teneurs en ETM	Evaluation des concentrations et flux d'ETM apportés par l'atmosphère en entrée de toiture
	Sortie de toiture : - Mesure des débits - Analyses des teneurs en ETM	Evaluation des concentrations et flux d'ETM en sortie de toiture
Compréhension des mécanismes de rétention d'ETM par la toiture végétalisée	Végétation : - Suivi du développement - Analyses des teneurs en ETM	Evolution de la quantité d'ETM stockée par la couche végétale de la toiture
	Substrat, filtre et drainage : - Caractérisation physico-chimiques - Analyses des teneurs en ETM	Evolution des quantités d'ETM présentes dans ces couches et des caractéristiques potentiellement favorables à la rétention des ETM
	Essais en batch : - Isotherme de sorption - Cinétique de sorption - Isotherme de désorption	- Evaluation de la capacité de rétention des matériaux des TV expérimentales et comparaisons avec d'autres matériaux pour fournir des pistes pour la conception d'un substrat favorable à la rétention des ETM - Evaluation de la durabilité du stockage en toiture avant saturation - Adéquation entre le temps de contact entre eau de pluie et structure végétalisée pour une rétention optimale des ETM - Durabilité des liaisons de sorption et donc de la rétention des ETM sur les TV
	Essais de sorption en colonne	- Evaluation de l'impact de la circulation dynamique de l'effluent sur les capacités de sorption/désorption des matériaux - Impact de la superposition substrat/drainage sur la sorption/désorption
	Lame mince de substrat	Observation d'interactions faune-flore-substrat conduisant à des évolutions favorables ou non à la rétention des ETM
Compréhension des mécanismes de rétention d'ETM par la toiture végétalisée	Analyses des teneurs en ETM totales et extractibles dans les drainages, substrats, filtre et couche d'étanchéité	- Estimation du potentiel d'émission - Evolution au cours du temps signe d'une émission passée ou à venir
	Lame mince de substrat	Observation d'interactions faune-flore-substrat conduisant à des évolutions favorables ou non à l'émission d'ETM par les matériaux de la toiture végétalisée

Conclusion

Les toitures végétalisées sont constituées de divers matériaux synthétiques, minéraux, organiques vivants ou morts. Etudier et comprendre les interactions complexes qui ont lieu entre ces structures et les eaux de pluie nécessite donc de faire appel à des techniques issues de domaines scientifiques complémentaires comme l'hydrologie urbaine, la pédologie ou encore la botanique pour le suivi du développement de la végétation. Grâce aux techniques complémentaires utilisées, les résultats obtenus permettent d'obtenir des informations sur le fonctionnement de ces structures de l'échelle globale de la parcelle à celle de la cellule. En plaçant ces structures expérimentales dans des conditions d'apports atmosphériques et anthropiques similaires à celles de la majorité des toitures végétalisées présentent en France, il est possible de généraliser les résultats obtenus pour établir des préconisations applicables aux futures toitures végétalisées construites sur ce territoire. Compléter l'approche *in situ* par des essais en laboratoire spécifique aux matériaux permet de comprendre les différents mécanismes induisant un rejet ou une rétention d'ETM par les différentes couches de ces structures.

PARTIE II

HYPOTHESES SUR LES CAPACITES DE RETENTION ET D'EMISSION DES STRUCTURES A PARTIR DES CARACTERISTIQUES INITIALES DES DIFFERENTS MATERIAUX

Cette partie vise à établir des hypothèses sur les capacités de rétention et d'émission des matériaux utilisés sur les toitures expérimentales en fonction de leurs caractéristiques initiales. Le premier chapitre présente une caractérisation détaillée des paramètres physico-chimiques et des teneurs totales et extractibles en ETM des matériaux constitutifs de la structure. Un parallèle est établi avec les préconisations réalisées dans le domaine de l'infiltration des eaux pluviales en vue d'un transfert limité de polluants dans les nappes d'eaux souterraines. Ces premières hypothèses sont ensuite précisées dans le second chapitre à partir d'essais fondés sur des techniques utilisées par la Science du Sol. Les capacités de rétention de Cu et Zn par les substrats et les matériaux de drainages sont évaluées à partir d'essais complémentaires en batch et en colonne de laboratoire.

Chapitre 1 : caractéristiques initiales des structures expérimentales de végétalisation de toitures

Les préconisations des professionnels dans le domaine de la végétalisation de toiture portent essentiellement sur une gamme restreinte de caractéristiques physico-chimiques et granulométriques des substrats (ADIVET *et al.*, 2007 ; FLL, 2008). Une étude récente, réalisée à l'initiative du GIP Plante&Cité, a caractérisé les substrats utilisés en végétalisation de toitures en France sur un large panel de paramètres physico-chimiques (Brunet *et al.*, 2013). Ce recensement a permis d'identifier des paramètres complémentaires qu'il pourrait être pertinent d'intégrer à ces Règles Professionnelles, comme la capacité d'échange cationique (CEC). Les caractéristiques globales des matériaux des toitures expérimentales sont donc présentées et des hypothèses sur leurs capacités de rétention respectives en sont déduites.

Il n'existe aucune norme ou préconisation en termes de teneurs en ETM et peu de publications abordent ces thématiques. L'un des objectifs de ce chapitre est donc de caractériser les quantités d'ETM totales et disponibles présentent dans ces matériaux afin d'identifier les matériaux potentiellement susceptibles d'être source de polluants. Les stocks d'ETM dans les végétaux sont également évalués grâce aux teneurs initialement présentes et à la masse des plants introduits.

1.1 Caractéristiques de la végétation

1.1.1 Dimensions des plantes et teneurs en ETM

Les végétaux sont implantés sous forme de micro-mottes à raison de 10 à 20 plants par m². Chacun de ces plants mesure moins de 5 cm (Figure 19). Selon les espèces, les parties racinaires pèsent de 0,1 à 5 g environ et les parties aériennes de 0,5 à 9 g environ (à 0,5 g près). Pour *S. album* et *S. reflexum*, les parties souterraines ont une masse moyenne de 0,1 g pour les deux espèces. La masse des parties aériennes est de l'ordre de 4 g pour le premier et 2 g pour le second.

Les teneurs en ETM obtenues dans les parties aériennes et souterraines des deux espèces analysées, *S. album* et *S. reflexum g.*, sont comparables (Figure 20). De plus fortes teneurs en Zn, Cu et B sont notamment observées ce qui est en adéquation avec le fait que ces métaux sont considérés comme des oligo-éléments pour les végétaux (Chassin *et al.*, 1996). Pour la plupart des éléments,

les teneurs sont plus élevées dans la partie racinaire qu'aérienne, phénomène général observé chez les végétaux (Morel, 1997 ; Kamal *et al.*, 2004). B présente une tendance inverse observée dans la plupart des végétaux (Katyal & Randhawa, 1986).

Figure 19 - Micro-mottes de* S. reflexum *introduites en avril 2011

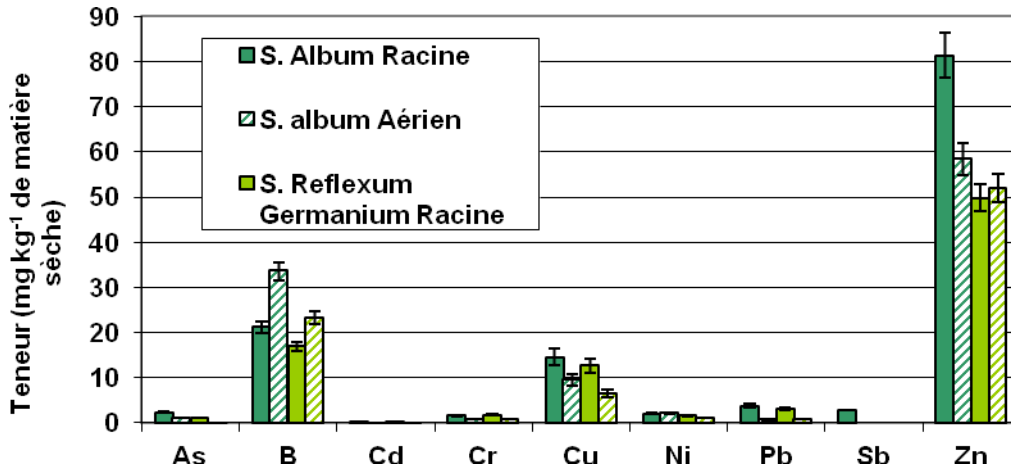


***Figure 20 - Comparaison des teneurs initiales en ETM dans* S. album *et* S. reflexum g.**

1.1.2 Discussion : un faible couvert végétal initial

Les micro-mottes utilisées pour l'introduction des végétaux peuvent contenir certains ETM issus du substrat sur lequel elles ont poussé ou encore des différents traitements qu'elles ont pu subir durant leur développement en pépinière.

Le couvert végétal initial représente moins de 5 %, relation avec la taille des plantes et la densité d'installation. En outre, la biomasse de plants introduits par m² étant faible (quelques dizaines de g par m²), la **quantité d'ETM apportée** initialement à la structure par les **végétaux** est **négligeable**.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

D'un point de vue esthétique, le couvert végétal par introduction de micro-mottes est très faible par rapport à celui d'un tapis préplanté, par exemple, qui garantit un recouvrement initial > 80%. Cependant cette technique apporte des quantités de polluants limitées par rapport aux tapis préplantés qui introduisent des masses beaucoup plus importantes de végétaux et de supports de développement pouvant contenir des résidus d'engrais et de produits phytosanitaires. Des études complémentaires seraient nécessaires pour confirmer cette hypothèse qui amènerait à considérer les tapis préplantés comme sources de polluants pour les eaux pluviales.

1.2 Caractéristiques des matériaux de drainage et des substrats

1.2.1 Caractéristiques générales des matériaux minéraux et organiques

Les trois substrats ont des caractéristiques comparables. Toutefois, le substrat semi-intensif présente une teneur en matière organique significativement inférieure à celles des deux autres substrats (Tableau 18). Les Règles Professionnelles françaises (ADIVET *et al.*, 2007) préconisent pour un substrat de toiture extensive multicouche un pH compris entre 6,5 et 8,0 une teneur en matière organique inférieure à 80 g kg^{-1} et un pourcentage massique de particules < 63 µm inférieur à 15 %. Les trois substrats étudiés répondent à ces critères (Tableau 18). L'argile expansée présente un pH élevé associé à une teneur en $CaCO_3$ importante. Le rapport C/N est plus élevé pour les substrats extensif et fibre de coco que pour le substrat semi-intensif dont le rapport est assez proche de 10, montrant que la matière organique de ce matériau est moins humifiée que celle présente dans les deux autres substrats (Gobat *et al.*, 2010).

La CEC des substrats est beaucoup plus élevée que celle de l'argile expansée, en lien avec les teneurs en matière organique (Citeau, 2006). La CEC de l'argile expansée et sa surface spécifique sont d'ailleurs relativement basses pour une argile même comparée à une argile à faibles CEC et surface spécifique comme la kaolinite (Hang & Brindley, 1970). Le processus d'expansion pourrait donc avoir un impact sur certaines propriétés de l'argile initiale. Concernant les substrats, bien que la CEC soit un paramètre important à prendre en compte lors de leur conception (Skinner, 2005 ; Brunet *et al.*, 2013), aucune préconisation n'est faite par les Règles Professionnelles françaises (ADIVET *et al.*, 2007) et allemandes (FLL, 2008). Un parallèle peut être établi avec les plantes en pots pour lesquelles le substrat doit avoir une CEC supérieure à 10 cmol+ kg^{-1} pour être considéré comme « chimiquement actif » (Lemaire *et al.*, 2003). Les trois substrats, plus particulièrement le semi-

intensif et l'extensif, présentent des CEC légèrement inférieures à ce seuil. Elles sont cependant dans une gamme qui peut être considérée comme satisfaisante pour une végétalisation de toiture extensive (Brunet *et al.*, 2013).

Les substrats fibre de coco et extensif présentent une granulométrie, une surface spécifique et une porosité comparables. L'argile expansée et le substrat semi-intensif ont les surfaces spécifiques et les porosités les plus importantes. Leur granulométrie est cependant très différente avec une très faible quantité de particules < 5 mm pour la première contrairement au second, qui présente la plus forte part de cette phase granulométrique (Figure 49 page 175). En outre, l'argile expansée est le seul matériau dont les particules < 5mm et les particules > 5 mm disposent des mêmes surfaces spécifiques. Le substrat semi-intensif présente les différences les plus importantes entre ces deux phases granulométriques. La répartition du nombre de pores en fonction de leur diamètre est également similaire pour les substrats extensif et fibre de coco, avec une répartition assez homogène de 1 µm à 1 mm (Figure 21). L'argile expansée présente également un profil assez homogène avec croissance puis décroissance entre 0,1 et 50 µm. Enfin, le substrat semi-intensif présente différents pics entre 0,05 µm et 1 mm, notamment aux alentours de 0,5, 4, 10 et 500 µm probablement en lien avec le nombre plus important de matériaux composant ce substrat par rapport aux autres .

Au niveau de la composition minéralogique, les trois substrats et l'argile expansée contiennent des oxydes de fer (hématite) et d'aluminium (feldspath, spinel, oxyde cobalt aluminium) (Tableau 19).

Tableau 18 - Caractéristiques générales des substrats et de l'argile expansée

Matériaux	*Argile expansée*	*Fibre de coco*	*Extensif*	*Semi-intensif*
CEC (cmol+ kg^{-1})	1.02	7.07	8.90	8.95
pH	8.98	7.04	6.77	7.21
Matière organique (g kg^{-1})	2.98	62.50	88.10	49.30
Rapport C/N	137	43.5	38.7	17.0
$CaCO_3$ (g kg^{-1})	8.50	2.80	4.70	6.80
Carbone organique total (g kg^{-1})	1.70	36.10	50.90	28.50
Carbone total (g kg^{-1})	2.70	36.50	51.50	29.30
% massique de particules < 63 µm	1,1	2,9	1,9	3,9
V pore (cm^3 g^{-1})	1,475	0,211	0,259	0,811
Porosité sur particule > 2 mm (%)	77	37	42	69
Surface spécifique sur particules > 5 mm (m^2 g^{-1})	1,4	0,5	0,56	0,88
Surface spécifique sur particules < 5 mm (m^2 g^{-1})	1,5	1,2	1,1	8,1
Surface spécifique globale (m^2 g^{-1})	1,47	0,74	0,61	3,20
Conductivité hydraulique (Ks m h-1)	11.9		7.8	
Masse volumique (kg m^{-3})	225	940	940	850

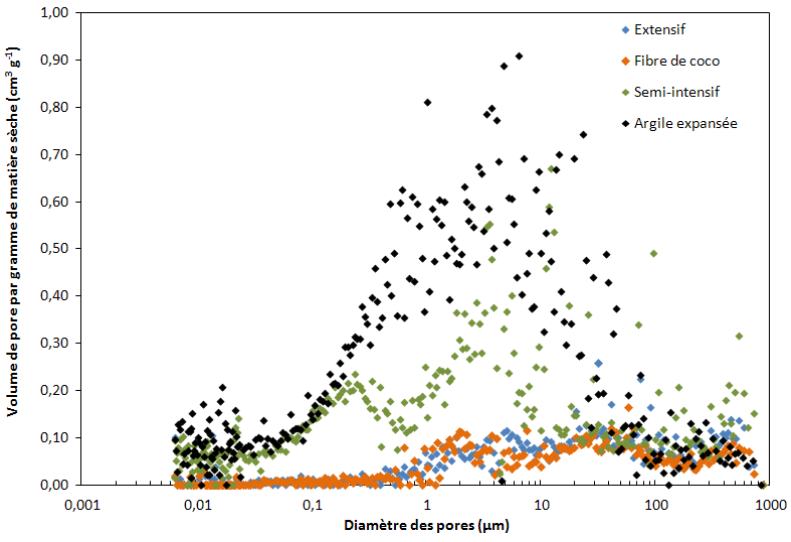


Figure 21 – Répartition du nombre de pores en fonction de leur diamètre dans les trois substrats et l'argile expansée par analyse de la porosité au mercure

Tableau 19 – Identification des principaux minéraux présents dans les substrats et l'argile expansée par diffraction aux rayons X

Substrats	Principaux minéraux présents
Argile expansée	quartz, structure de type spinelle par exemple oxyde cuivre cobalt ou oxyde cobalt aluminium ou encore ringwoodite, phase amorphe, possibilités de trace de feldspath (anorthite)
Fibre de coco	feldspaths (anorthite et albite), quartz, spinel, hématite, magnésite, diopside, amphibole.
Extensif	feldspaths (anorthite, albite et orthoclase), quartz, spinel, hématite, magnésite, diopside, amphibole.
Semi-intensif	quartz, feldspaths (anorthite et albite), structure spinelle (ringwoodite et spinel), gypse, possibilité de sulfate de potassium aluminium hydraté.

1.2.2 Teneurs en ETM

Les teneurs en ETM varient fortement selon les matériaux et les éléments considérés (Figure 22). Le filtre géosynthétique présente des teneurs très faibles en ETM en comparaison des autres matériaux, suivi par la structure synthétique stockante. Les plus fortes teneurs sont généralement atteintes par le substrat semi-intensif. Seule la teneur en Cd dans l'étanchéité est supérieure à celle de ce substrat. L'étanchéité présente également des teneurs en Cd, Pb, Zn et As supérieures aux substrats extensif et fibre de coco, qui présentent des teneurs comparables, et en Ni, Pb, Zn et Cd par rapport à l'argile expansée. Ce dernier matériau a généralement des teneurs en ETM inférieures à celles des substrats sauf pour As avec une teneur proche de celle du substrat semi-intensif.

Comme pour les caractéristiques physico-chimiques, une forte hétérogénéité des teneurs est visible entre les particules inférieures et supérieures à 2 mm (Figure 23). Cette tendance est particulièrement visible sur le substrat semi-intensif qui présente des teneurs beaucoup plus faibles pour les particules de petite granulométrie que pour les particules > 2 mm pour l'ensemble des ETM. A l'inverse, pour les substrats extensif et fibre de coco, les teneurs des particules < 2 mm en B, Cr et Ni pour les deux substrats ainsi qu'As pour le premier sont sensiblement supérieures à celles des particules > 2 mm. Enfin, les variations ne sont pas significatives pour l'argile expansée.

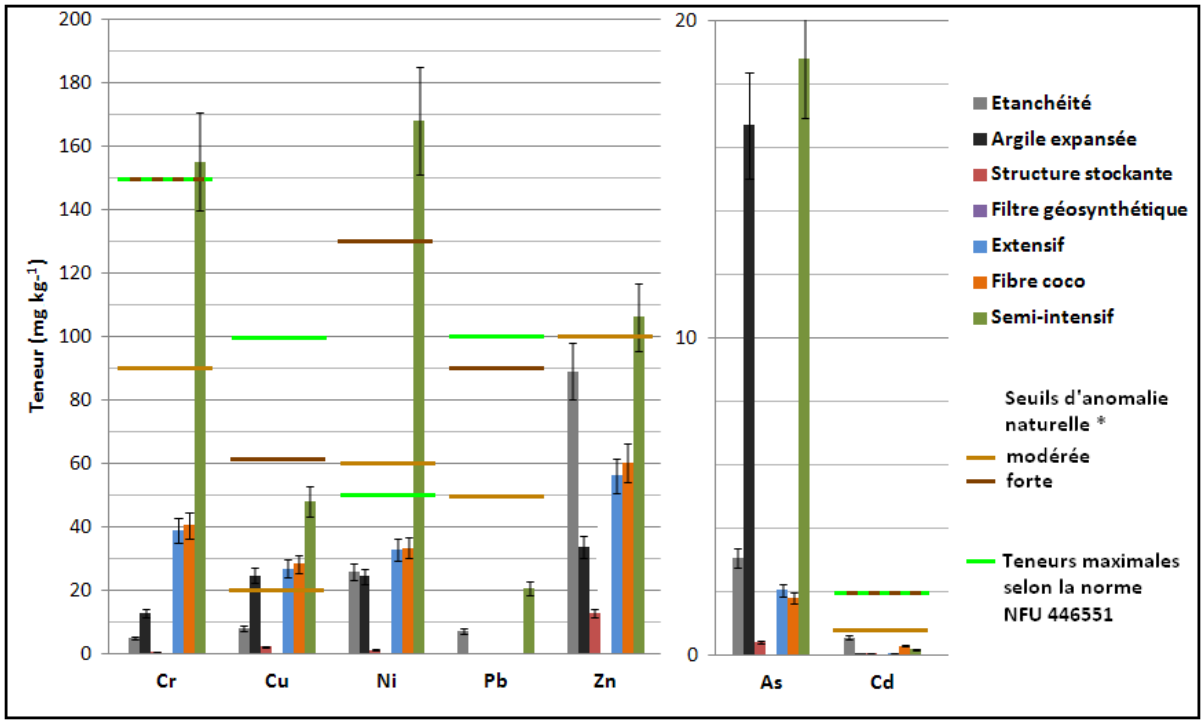


Figure 22 - Teneurs initiales en ETM dans les différents matériaux constitutifs des toitures végétalisées comparées à des seuils d'anomalie naturelle et une norme relative aux supports de culture (*Baize, 2000)

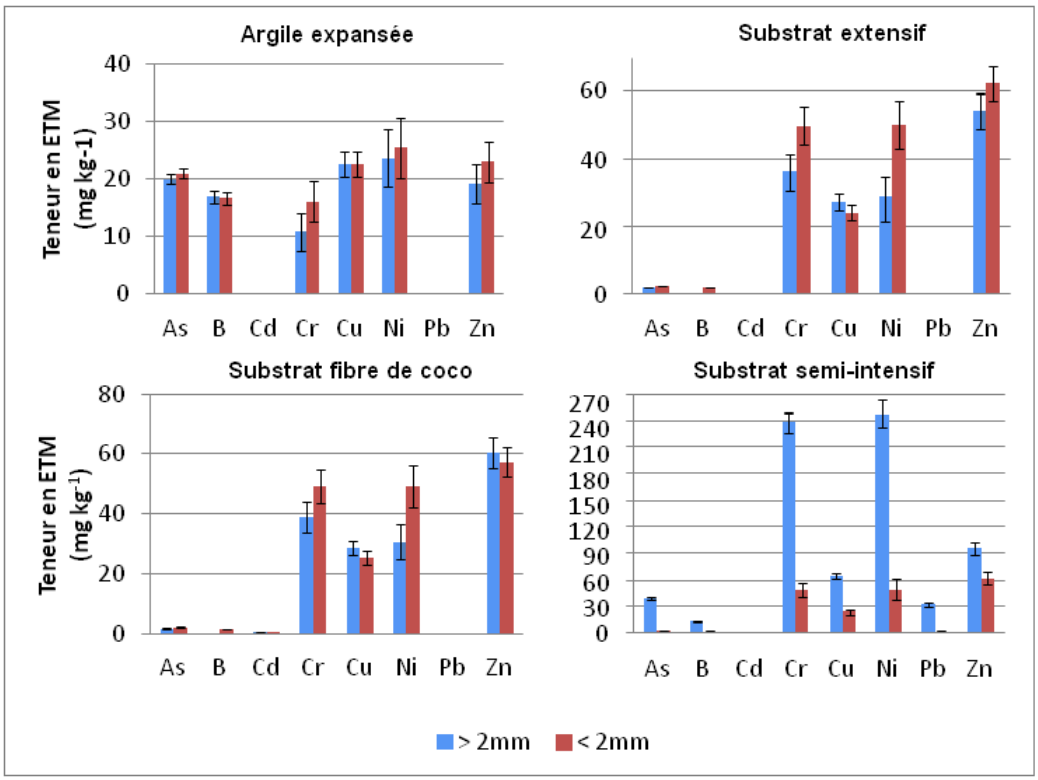


Figure 23 - Variation des teneurs en ETM dans les fractions granulométriques des trois substrats et l'argile expansée

Les quantités d'ETM extractibles selon différentes méthodes, extraction au $CaCl_2$, NH_4NO_3, DTPA et selon la norme NF 12457-3 (échelle de gauche) ainsi que la teneur initiale (échelle de droite) pour les trois substrats et l'argile expansée sont données dans la Figure 24. Les matériaux synthétiques (étanchéité, structure synthétique stockante et filtre) ont uniquement pu être soumis au test de la norme NF 12457-3. Les résultats sont présentés sur la Figure 24 lorsqu'ils ne sont pas inférieurs aux limites de détection, soit uniquement pour l'étanchéité avec As et Pb.

Les quantités extractibles au DTPA sont les plus élevées pour l'ensemble des matériaux et des ETM sauf le Cr. Ceci est cohérent avec le fait que le DTPA est un complexant puissant qui extrait également les ions liés aux carbonates et parfois aux oxydes mal cristallisés en plus de ceux présentant une liaison électrostatique non spécifique avec la matière, seuls ions extraits par $CaCl_2$ et NH_4NO_3 (Cornu et Clozel, 2000). Parmi les trois autres méthodes, la norme NF 12457-3 permet généralement d'extraire les quantités d'ETM les plus importantes. Etant donnée la nature du solvant utilisée (de l'eau), les ions extraits sont également essentiellement ceux présentant des liaisons non spécifiques. Cependant, le protocole avec deux étapes de lixiviation sur une longue durée (24 h au total contre quelques heures seulement pour les autres protocoles) pourrait permettre d'avoir une meilleure vision des éléments qui pourront être lixiviés par des eaux de pluie à plus long terme que la vision instantanée proposée par les protocoles d'extraction au $CaCl_2$ et NH_4NO_3. En effet, cette norme a été établie afin d'obtenir une vision globale de la qualité des eaux pluviales après transit dans un massif de déchets afin d'adapter le traitement des lixiviats de Centres de Stockage de Déchets Ultimes (CSDU).

Pour l'ensemble des méthodes d'extraction, des teneurs totales plus importantes n'induisent pas systématiquement des quantités extractibles plus importantes. Par exemple, les quantités extractibles au DTPA dans le substrat extensif sont similaires voire supérieures à celles du substrat semi-intensif qui présente pourtant des teneurs initiales significativement plus importantes. Les taux d'extractibilité issus de cette méthode et de l'extraction au NH_4NO_3 sont d'ailleurs significativement plus importants pour le substrat extensif que pour le substrat semi-intensif. Enfin, le substrat fibre de coco présente les plus forts taux d'extractibilité de Cd, Cr, Ni et Zn avec le protocole NF 12457-3.

Les quantités extractibles restent faibles dans l'ensemble par rapport aux teneurs totales considérées. Le taux d'extractibilité dépasse 10% uniquement pour Cd pour la majorité des matériaux et des méthodes d'extraction, pour l'extraction au DTPA de Zn sur le substrat extensif et de Pb sur l'argile expansée et le substrat semi-intensif, et enfin l'extraction selon la norme NF 12457-3 de B pour les trois substrats et As pour l'étanchéité. Ce taux est inférieur à 1% pour Cr, Cu, Ni, Pb et Zn avec $CaCl_2$ et NH_4NO_3 mis à part pour le substrat extensif pour le second extractant.

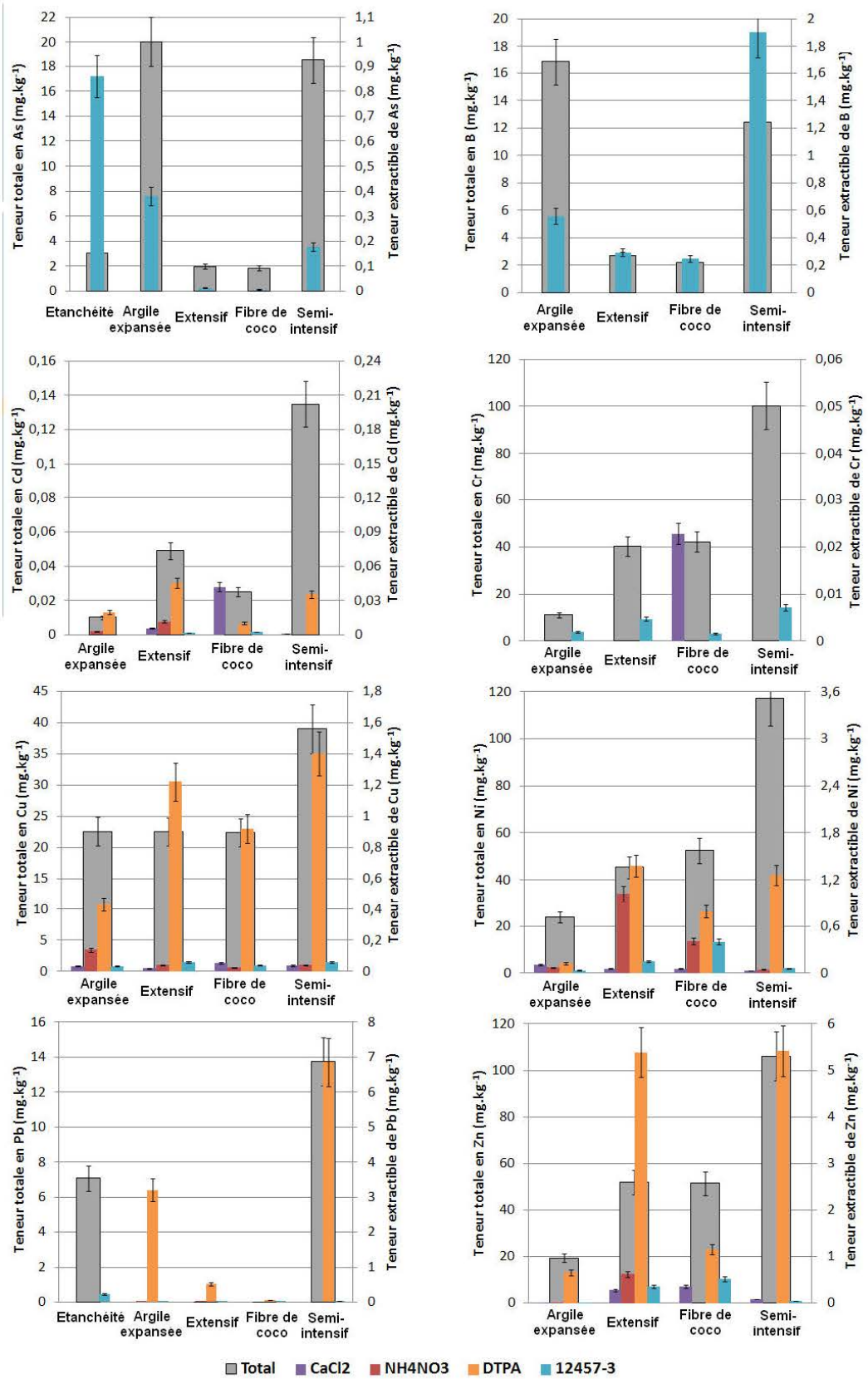


Figure 24 - Extractibilité des ETM sur les trois substrats, l'argile expansé et l'étanchéité selon différentes méthodes

1.2.3 Discussion : impact des structures sur la qualité des eaux

Une forte hétérogénéité des caractéristiques générales des différents matériaux

Les **caractéristiques physico-chimiques** générales des matériaux, comme la surface spécifique sur **différentes phases granulométriques** montrent l'**hétérogénéité** des matériaux. Les informations fournies par les fabricants expliquent cette hétérogénéité puisque les différents matériaux utilisés pour la fabrication du substrat sont souvent introduits sur des gammes granulométriques distinctes. Ainsi pour les substrats extensif et fibre de coco, la matière minérale est constituée de 75% de pouzzolane en 7-15 mm et 25% en 3-6 mm, ce qui implique que les particules de taille supérieure à 2 mm sont essentiellement de nature organique. Le substrat semi-intensif est composé de multiples matériaux dont la terre cuite et la pouzzolane/argile expansée sur les plus grandes fractions granulométriques (3-16 mm) tandis que les plus petits grains sont composés de matériaux minéraux variés (fragments de terre cuite, ponce et scories de charbon) et organiques (compost).

Les teneurs en matière organique sont plus faibles dans le substrat semi-intensif par rapport aux substrats extensif et fibre de cocos. Le premier était pourtant destiné à accueillir une végétation pouvant en nécessiter des quantités plus importantes. Le professionnel ayant fourni le substrat avait indiqué que la teneur en matière organique y était plus importante que celle de ses substrats destinés aux toitures extensives. Ceci montre que les gammes préconisées pour différents paramètres par les Règles Professionnelles sont suffisamment larges pour que de **fortes hétérogénéités** soient présentes dans des **substrats** destinés à un même type de toitures végétalisées **selon les fabricants**.

Des teneurs en ETM non négligeables dans certains substrats

Aucune norme ou réglementation ne mentionne à ce jour de seuils de concentrations en ETM à respecter pour des **substrats utilisés en végétalisation de toiture**. Ces valeurs comparées à celles des fonds pédo-géochimiques locaux et régionaux dans des sols français (Baize, 2000 ; Sterckeman *et al.*, 2007), sont considérées comme ordinaires, présentant une anomalie naturelle modérée puis forte. Par ailleurs, les teneurs maximales de la norme NF U44-551 relative aux supports de culture ou pour homologation des supports de culture ont également été indiquées sur la Figure 22. Les teneurs en Cu sont relativement élevées dans les trois substrats et l'argile expansée, dépassant notamment les seuils d'anomalies modérées. Le substrat semi-intensif dépasse également le seuil d'anomalie modérée pour Zn et les seuils d'anomalies naturelles fortes ainsi que les teneurs maximales relatives à la norme sur les supports de culture pour Cr et Ni. Le dépassement de ces seuils liés aux supports de culture souligne la nécessité de **caractériser la qualité des substrats**, **les**

cultures potagères en toiture se développant progressivement (Nasr, 2013 ; Aubry, 2013 ; de Felipe & Briz, 2013). Les **teneurs importantes en ETM** identifiées dans le substrat semi-intensif pourraient provenir de sa composition intégrant notamment des **matériaux recyclés** comme la brique concassée ou encore les scories de charbon.

Certains **ETM,** comme Ni, Zn, As, Cd et Pb, sont présents en quantité non négligeables dans l'**étanchéité**, notamment en comparaisons des substrats. Cependant, les teneurs sont toutes inférieures aux seuils de la norme NF U44-551. Aucune ne semble donc suffisante pour démontrer un ajout spécifique de cet élément au matériau afin de lui prodiguer son pouvoir anti-racine.

Il est cependant important de rappeler que la présence d'un ETM dans un matériau n'induit pas systématiquement un rejet de celui-ci dans les eaux traversant le milieu, ce rejet dépendant en effet de la mobilité de l'élément considéré par rapport à l'eau (Tremel-Schaub & Feix, 2005) et des conditions physico-chimiques du milieu : pH et potentiel redox notamment. Les extractions réalisées ont démontré globalement une **faible disponibilité de ces ETM**. En outre, les teneurs totales en ETM les plus élevées n'induisent pas systématiquement les quantités extraites les plus importantes. L'**extractibilité** est **variable** pour les différents **éléments** et selon les différents **tests** réalisés. Il sera utile par la suite de comparer ces résultats à ce qui peut être observé sur les toitures réelles.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Il n'existe à ce jour aucune préconisation en vue de l'amélioration des capacités des substrats à retenir des polluants apportés par l'atmosphère. Il est donc pertinent de comparer les caractéristiques de ces matériaux à ce qui est conseillé dans un contexte comparable : le choix des sites d'infiltration d'eaux de ruissellement favorisant la rétention des micropolluants métalliques (Citeau, 2006). Les teneurs en matière organique sont supérieures à celles pouvant être critiques en termes de transfert de polluants dans les nappes souterraines dans les sols utilisés en infiltration pour la rétention des ETM (< 2%). Le pH élevé des substrats et en particulier de l'argile expansée favorise la rétention des ETM (Martinez & Motto, 2000 ; Bradl, 2004). En outre, plusieurs types d'oxydes de Fe et Al ont été identifiés.

Les valeurs de CEC sont dans la gamme basse voire en dessous de ce qui peut être favorable à une bonne rétention des cations positifs pour l'argile expansée. Enfin, probablement du fait de la part importante des particules de grande taille dans les substrats et l'argile expansée, la conductivité hydraulique de l'ensemble des matériaux est au-dessus des seuils préconisés pour une infiltration permettant de préserver la qualité des eaux souterraines (7-360 mm h^{-1}). La présence de grosses particules limite également la surface spécifique disponible pour la sorption des ETM. Une attention particulière pourrait donc être portée à ces caractéristiques afin d'optimiser les capacités de rétention des matériaux de toitures végétalisées au regard de ce qui est préconisé dans le domaine de l'infiltration des eaux pluviales.

Chapitre 2 : Capacité de rétention des substrats et des drainages utilisés vis-à-vis des ETM

De multiples paramètres influencent la capacité globale d'un matériau à retenir les ETM. Pour les substrats et drainages de toitures végétalisées étudiés précédemment, certains d'entre eux semblent favorables à la rétention de ces ETM et d'autres moins. Afin d'estimer de façon plus précises les capacités de rétention spécifiques de ces matériaux pour différents ETM, il est donc nécessaire de réaliser des essais de sorption complémentaires en laboratoire.Une littérature abondante est disponible pour la caractérisation des capacités et vitesses de sorption de nombreux biosorbants à partir d'essais en batch et en colonne, techniques également appliquées à des sols et, d'une manière générale à de nombreux solides afin de caractériser leur réactivité vis-à-vis de différents solutés. Ces méthodes ont donc été appliquées aux trois substrats et deux drainages constitutifs des différentes parcelles expérimentales afin d'évaluer leur comportement par rapport à Cu et Zn, ETM les plus présents dans les dépôts atmosphériques (Sabin *et al.*, 2005 ; Percot, 2012).

2.1 Caractérisation en batch des capacités de sorption et de désorption du Cu et du Zn sur les trois substrats et les deux drainages

2.1.1 Isothermes de sorption

Les isothermes de sorption montrent trois tendances pour les cinq matériaux considérés (Figure 25). Tout d'abord, la structure synthétique stockante présente une capacité maximale d'adsorption négligeable pour Cu et Zn avec une très faible variation de la sorption en fonction des concentrations. Du fait du peu d'intérêt de ce matériau pour la sorption de Cu et Zn, ses comportements de cinétique de sorption et d'isotherme de désorption ne seront pas présentés par la suite. Pour l'argile expansée, la sorption augmente rapidement pour les concentrations initiales de 0.5 mg L^{-1} à 1 g L^{-1} (soit 15,3 mol L^{-1} pour Cu et 15,7 mol L^{-1} pour Zn). La pente de l'isotherme diminue ensuite significativement et un plateau est notamment atteint pour Cu aux alentours de 20,7 mg g^{-1}. Pour les trois substrats, un premier plateau est atteint aux alentours de 2 g L^{-1}. Ensuite pour les concentrations plus élevées, une seconde augmentation de la pente de sorption est observée. L'argile présente la capacité de sorption la plus élevée pour toutes les concentrations par rapport aux autres matériaux et le substrat extensif parmi les trois substrats (Tableau 20).

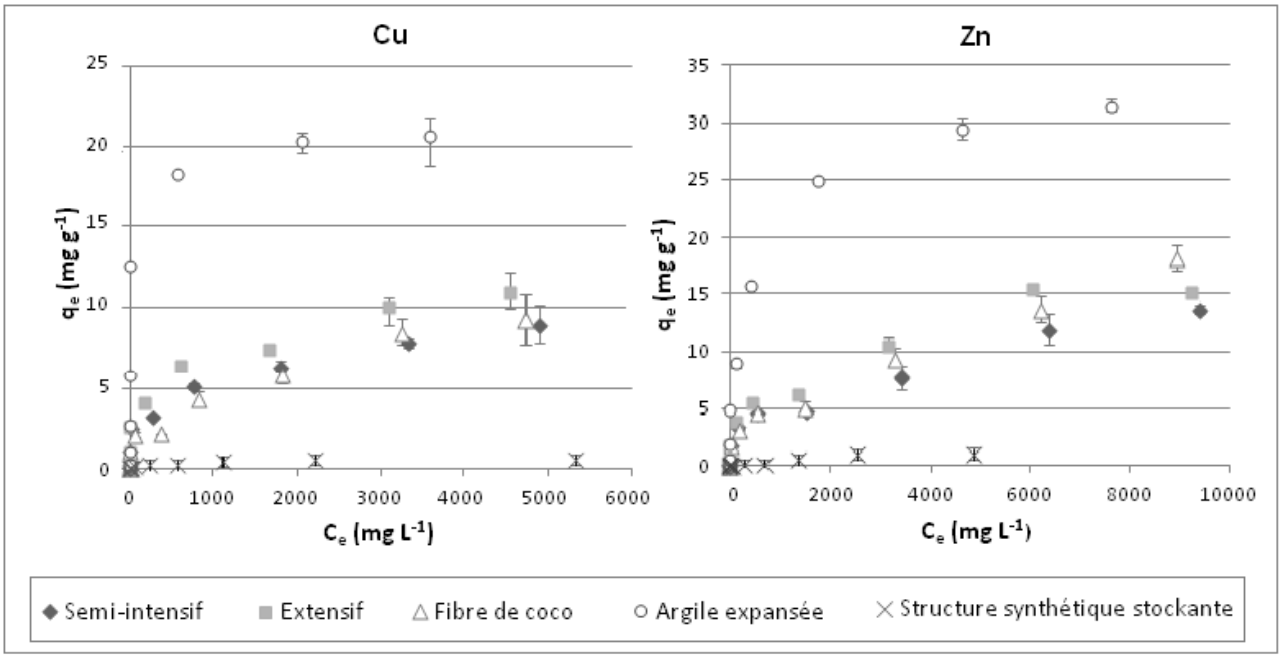


Figure 25 - Evolution de la sorption de Cu et Zn sur les trois substrats et les deux drainages en fonction de la concentration à l'équilibre

Les modèles de Langmuir (1916) et Freundlich (1906) ont été testés pour caler les isothermes de sorptions du Cu et du Zn sur l'argile expansée et les trois substrats :

$$Langmuir : \quad S = \frac{S_{max} \cdot K_L \cdot c_e}{1 + K_L \cdot c_e} \qquad (1)$$

$$Freundlich : \quad S = K_F \cdot c_e^{1/n} \qquad (2)$$

Avec S la quantité de métal sorbée par le matériau (mg g^{-1} ou mmol g^{-1}), S_{max} la quantité maximale de métaux qui pourrait être sorbée (mg g^{-1} ou mmol g^{-1}) et c_e la concentration en solution à l'équilibre (mg L^{-1} ou mol L^{-1}). K_L (L mg^{-1} ou L mmol^{-1}), K_F (mg$^{(1-1/n)}$l$^{(1/n)}$ g^{-1} ou mmol g^{-1} mM$^{(-1/n)}$) et n (sans dimension) sont des constantes.

Tableau 20 - Capacités de sorption maximales des matériaux étudiées et biosorbants relevés dans la littérature

	Capacité de sorption maximale de Cu (mg g^{-1})	Capacité de sorption maximale de Zn (mg g^{-1})	Références
Argile expansée	20,7	31,4	
Structure stockante synthétique	0,5	1	
Substrat extensif	11	15,2	
Substrat fibre de coco	9,2	18,1	
Substrat semi-intensif	7,7	13,6	
Fibre de coco	13	2-8,6	Quek *et al.*, 1998 ; Shukla *et al.*, 2006 ; Conrad & Bruun Hansen, 2007
Fibre de coco modifiée		6,5	Shukla *et al.*, 2006
Ecorce de conifère		7,4	Seki *et al.*, 1997
Tourbe	16,4	11,7	Ho *et al.*, 1995 ; McKay & Porter, 1997
Ecorce de pin	3,9	4	Nehrenheim & Gustafsson, 2008
Scorie de haut-fourneau		17,7	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Scorie activée	30		Bhatnagar &Sillanpää, 2010
Compost de décharge municipale	31-36	20-24	Paradelo *et al.*, 2012
Compost de déchets verts	30	14	Nwachukwu *et al.*, 2008
Boue de haut-fourneau	161-23,7	4,3-9,7	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Boue rouge	19,7	12,6	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Liqueur noire (déchet issu de l'industrie du papier)		95	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Déchet de thé	6,6-48	8,9	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Déchet de café	2		Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Coque de cacahouète	21,3		Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Peau de mangue	46,1	28,2	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Coquille de noisette	12,6		Bhatnagar &Sillanpää, 2010
Tiges de tournesol	29,3	30,7	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Coquille de haricot mungo	50	19,6	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Pulpe de betterave à sucre	28,5		Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Fibre de cane à sucre		31,1	Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Paille d'orge	4,6		Bhatnagar & Sillanpää, 2010
Charbon actif	0,3-30	10,5	Pyrzynska *et al.*, 2010 ; Minceva *et al.*, 2008
Zeolite	25-91	3,5	Apiratikul, *et al.* 2008 ; Minceva *et al.*, 2008

Pour les deux métaux, ces modèles ne permettent pas de simuler de façon satisfaisante leur sorption sur l'argile expansée pour les concentrations les plus basses. Par contre, ces isothermes de sorption peuvent être modélisées par les deux modèles avec des résultats équivalents au-dessus d'une certaine concentration : 2 g L^{-1} et 0,5 g L^{-1} pour Cu, 0,005 g L^{-1} et 1 g L^{-1} pour Zn, respectivement

pour les modèles de Freundlich et Langmuir (Tableau 21 et Tableau 22). Pour Cu, la quantité maximale de métaux sorbée simulée (S_{max}) par le modèle de Langmuir est très proche de la valeur obtenue expérimentalement à savoir environ 22,3 mg g^{-1} pour la première et 20,7 mg g^{-1} pour la seconde. Le coefficient d'équilibre R_L utilisé par Bhattacharyya *et al.* (2006), qui exprime l'adéquation entre une série de données expérimentales et les valeurs calculées avec le modèle de Langmuir (Weber & Chakraborty, 1974), a été obtenu à partir de l'équation suivante :

$$R_L = \frac{1}{1 + K_L \,.\, c_e} \qquad (3)$$

Le résultat pour Cu est compris entre 0 et 1 ce qui indique une bonne cohérence entre le modèle et les résultats expérimentaux. Pour Zn, le S_{max} calculé à partir du modèle est loin de la valeur expérimentale. En outre, le R^2 obtenu avec Freundlich est légèrement plus élevé et une plus grande gamme de concentration est couverte par ce modèle. Ainsi, le modèle de Langmuir semble plus adapté à la modélisation de la sorption de Cu et celui de Freundlich pour Zn pour l'argile expansée.

Concernant les substrats, aucun modèle ne représente de façon satisfaisante l'ensemble des points. Cependant, si ceux-ci sont séparés en deux groupes de concentrations, chaque groupe a pu être modélisé par l'un ou l'autre des deux modèles selon les matériaux et les concentrations considérés (Tableau 21 et Tableau 22). Ces résultats sont en corrélation avec les deux étapes de sorption visibles sur les courbes et décrites précédemment qui indiquent probablement la présence d'un type de sites de sorption qui n'est sollicité qu'au dessus d'une certaine concentration.

Tableau 21 - Coefficients de Langmuir pour la modélisation des isothermes de sorption du Cu et du Zn

Métal	Matériau	Concentrations des points pris en compte pour la modélisation	S max (mg g^{-1})	KL (L mg^{-1})	R^2
Cu	***Argile expansée***	>= 500mg/l	22,32	1,81	0,99
Zn	***Substrat extensif***	>= 2000 mg/l	22,73	0,00	0,99
	Substrat fibre de coco	>= 2000 mg/l	31,15	0,00	1,00
	Substrat semi-intensif	>= 2000 mg/l	19,88	0,00	0,99
	Argile expansée	>= 1000mg/l	29,07	0,00	0,98

Tableau 22 - Coefficients de Freundlich pour la modélisation des isothermes de sorption du Cu et du Zn

Métal	Matériau	Concentrations des points à considérer pour la modélisation	KF ($mg^{(1-1/n)} l^{(1/n)} g^{-1}$)	n	R^2
Cu	***Substrat extensif***	<= 200mg/l	10,13	0,44	0,84
		>=500mg/l	2,03	5,24	0,97
	Substrat fibre de coco	<= 200mg/l	1,15	0,59	0,98
		>=500mg/l	0,58	3,12	0,97
	Substrat semi-intensif	<= 200mg/l	2,58	0,72	0,97
		>=500mg/l	1,44	5,11	0,99
	Argile expansée	>=2000mg/l	13,14	18,02	0,99
Zn	***Substrat extensif***	<= 200mg/l	0,45	1,47	0,98
		>= 2000 mg/l	0,18	2,00	0,94
	Substrat fibre de coco	<= 200mg/l	0,23	1,29	0,96
		>= 2000 mg/l	0,03	1,45	1,00
	Substrat semi-intensif	<= 1000mg/l	0,31	2,01	0,98
		>= 2000 mg/l	0,07	1,71	0,99
	Argile expansée	>= 5mg/l	1,35	2,61	0,99

2.1.2 Cinétique de sorption

Les substrats et l'argile expansée présentent des comportements cinétiques différents comme pour les isothermes de sorption (Figure 26). Pour les trois substrats, une différence importante est visible entre le temps nécessaire pour atteindre 95% de la capacité de sorption à l'équilibre q_e et le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre pour Zn. Le premier est atteint au bout de 100 min pour les substrats fibre de coco et extensif, après 5 h pour le substrat semi-intensif. Le temps d'équilibre est de l'ordre de 5 h pour les deux premiers et 24 h pour le troisième. A l'inverse, les temps nécessaires pour atteindre 95% et 100% de q_e pour Cu sont comparables et de l'ordre de 2 j. Un comportement opposé est observé pour l'argile expansée. La vitesse d'adsorption de Cu de ce matériau est initialement inférieure à celles des substrats mais elle augmente rapidement après quelques minutes. 95% de q_e est sorbé après 50 min et le temps d'équilibre est de 4 h environ, soit très inférieur à celui des substrats. Pour Zn, la vitesse de sorption reste inférieure à celle des substrats au cours du temps et l'équilibre n'est pas atteint après près de 3,5 j. Ces résultats montrent que les sites de sorption rapide jouent un rôle prépondérant pour la sorption du Zn sur les substrats et de Cu sur l'argile expansée tandis que les sites de sorption lente ont plus d'importances pour la sorption de Zn avec l'argile expansée et de Cu pour les trois substrats.

Dans l'ensemble ces temps d'équilibre sont considérablement plus élevés que ceux observés individuellement pour la tourbe, l'écorce de pin et la fibre de coco qui varient de quelques minutes à 1h (Quek *et al.*, 1998 ; Kalmykova *et al.*, 2008 ; Nehrenheim & Gustafsson, 2008).

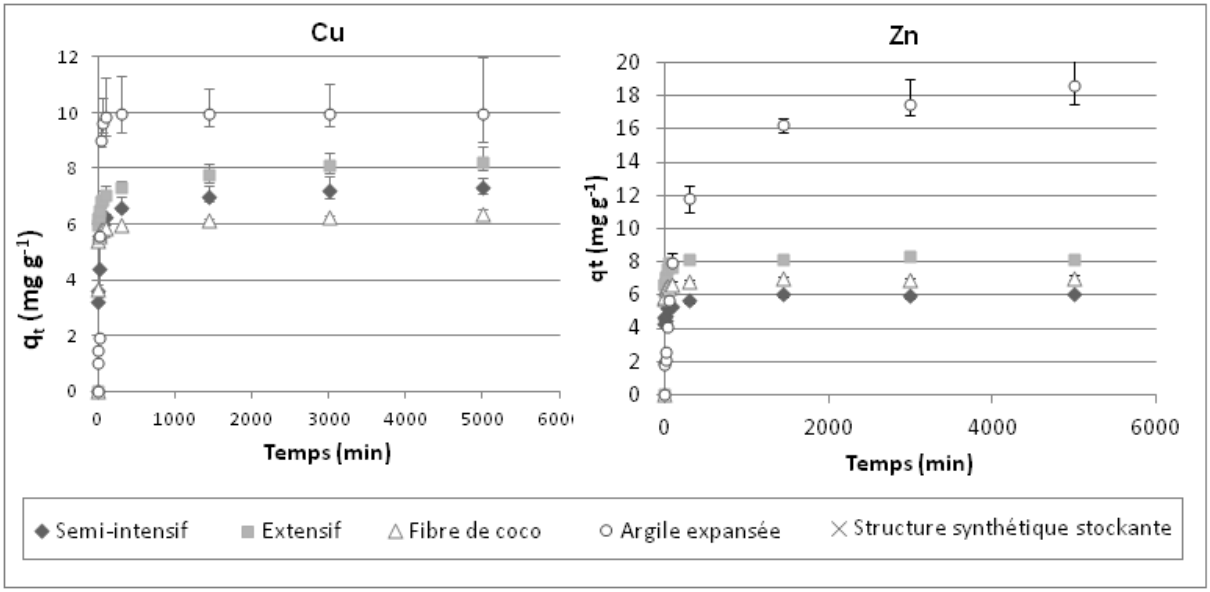


Figure 26 - Evolution de la sorption de Cu et Zn sur les trois substrats et l'argile expansée au cours du temps

Trois modèles de cinétique ont été testés : le modèle de pseudo-premier ordre de Lagergren (1898), le modèle de pseudo-second ordre (Ho & McKay, 2000) et le modèle d'Elovich (Li *et al.*, 2010). Les équations intégrées relatives à ces trois modèles sont les suivantes :

$$Pseudo-premier\ ordre : \quad \log(q_e - q_t) = \log(q_e) - \frac{k_1}{2{,}303}\, t \qquad (4)$$

$$Pseudo-second\ ordre : \quad \frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2\, q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \qquad (5)$$

$$Elovich : \quad q_t = b \ln(\alpha\beta) + \beta \ln t \qquad (6)$$

avec t le temps (min), q_e et q_t (mg g^{-1}) les capacité de sorption à l'équilibre et au temps t, k_1 (min^{-1}) et k_2 (g mg^{-1} min^{-1}) les constantes des cinétiques de premier et second ordres, α et β les paramètres d'Elovich qui représentent respectivement la vitesse de sorption initiale (mg g^{-1} min^{-1}) et la constante de désorption (g mg^{-1}).

Pour les trois substrats, seul le modèle d'Elovich permet de décrire correctement les cinétiques de sorption de Cu et Zn (Tableau 23). Ceci est en adéquation avec la sorption initiale rapide observée

expérimentalement (Ho & McKay, 2002 ; Bhattacharya *et al.*, 2011). Le taux d'adsorption α est inférieur pour Cu par rapport à Zn et suit le classement suivant pour les différents substrats : semi-intensif < extensif < fibre de coco. Cela pourrait indiquer que les phénomènes de sorption spécifique jouent un rôle plus important pour Zn que pour Cu et pour le substrat fibre de coco par rapport aux deux autres substrats (Bhattacharya *et al.*, 2011). Cependant, le classement du second paramètre du modèle, le coefficient de désorption β (fibre de coco < extensif < semi-intensif), limite l'impact des variations entre les substrats.

Tableau 23 - Coefficients d'Elovich pour la modélisation des cinétiques de sorption du Cu et du Zn par les trois substrats

Métal	Substrat	β (g.mg^{-1})	α (mg g^{-1}min^{-1})	R²
Zn	***Semi-intensif***	0,218	2,1* 10^{9}	0,96
	Extensif	0,204	1,1*10^{15}	0,87
	Fibre de coco	0,141	1,3* 10^{19}	0,88
Cu	***Semi-intensif***	0,278	5,0*10^{8}	0,96
	Extensif	0,261	2,2*10^{10}	0,99
	Fibre de coco	0,098	1,3*10^{25}	0,98

Les cinétiques de sorption de Cu et Zn par l'argile expansée ont été simulées grâce au modèle de pseudo-second ordre. Les coefficients de détermination ont été calculés selon l'équation (7) avec q_m (mg g^{-1}) la capacité de sorption calculée à partir du modèle au temps t, q_t (mg g^{-1}) la capacité de sorption mesurée via l'essai en batch au temps t et $\bar{q}_t$ (mg g^{-1}) la moyenne des q_t (Ho & Ofomaja, 2006). Ces coefficients sont proches de 1 (0,92 et 0,97) et la capacité de sorption à l'équilibre q_e est quasiment égale à la valeur expérimentale (Tableau 24), ce qui confirme la pertinence de l'utilisation de ce modèle. Cette corrélation avec ce modèle peut indiquer que les liaisons de sorption spécifique pourraient être considérées comme le phénomène contrôlant la vitesse de sorption des métaux sur l'argile expansée (Yong *et al.*, 1992), hypothèse qui serait également en adéquation avec les vitesses de sorption lentes observées précédemment (Gherbi, 2008).

$$r^2 = \frac{\sum(q_m - \bar{q}_t)^2}{\sum(q_m - \bar{q}_t)^2 + \sum(q_m - q_t)^2} \quad (7)$$

Tableau 24 - Coefficients du modèle de pseudo-second ordre pour la modélisation des cinétiques de sorption du Cu et du Zn par l'argile expansée

Métal	Matériau	q_e (mg g^{-1})	K (g mg^{-1} min^{-1})	R^2
Cu	***Argile expansée***	9.99	0.0136	0.92
Zn	***Argile expansée***	18.61	0.00056	0.97

2.1.3 Isotherme de désorption

Les cycles de désorption ont peu d'impact sur les métaux sorbés par l'argile expansée. Au maximum 14% de Zn et 10% de Cu ont été désorbés et uniquement pour la plus forte concentration (10 g L^{-1}). Ainsi, après désorption, l'argile expansée conserve les plus fortes capacités maximales de sorption, de l'ordre de 17,7 mg g^{-1} pour Cu et 29,0 mg g^{-1} pour Zn.

Les comportements des substrats sont similaires entre eux et différents de celui-ci de l'argile expansée. La quantité de métal désorbée augmente avec la quantité initialement sorbée. Une quantité significative de Zn désorbée est visible à partir de la concentration initiale 1 g L^{-1} et augmente jusqu'à 13%, 18% et 30% de la quantité initialement retenue sur le matériau respectivement pour les substrats fibre de coco, extensif et semi-intensif. Plus la capacité de sorption est élevée, moins la désorption est importante et par conséquent le substrat fibre de coco conserve la plus forte capacité de sorption de Zn. La désorption de Cu débute approximativement à la même concentration initiale (2 g L^{-1}) mais est plus importante aux plus fortes concentrations : de l'ordre de 66% pour le substrat extensif, 77% pour le semi-intensif et 87% pour le substrat fibre de coco. Ainsi, les quantités de Cu retenues par ces matériaux ont significativement diminué et vont de 1 à 3 mg g^{-1}. Ces taux de désorption significatifs peuvent être liés à la faible affinité entre matériau et métal sorbé qui peut être interprétée à partir du faible coefficient de Langmuir K_L calculé au paragraphe 2.1.1 de cette partie (Mudhoo *et al.*, 2012).

Les concentrations en COT sont corrélées linéairement avec la quantité de Cu désorbée, en particulier pour les substrats fibre de coco et extensif, pour lesquel les R^2 sont élevés (respectivement 0,99 et 0,95) pour les échantillons avec un taux de désorption > 1%.

2.1.4 Discussion : des cinétiques lentes mais des capacités de rétention significatives, surtout pour l'argile expansée

Des temps d'équilibre élevés

Les **temps d'équilibre de sorption** de Cu et Zn sur les trois substrats et l'argile expansée sont **élevés en comparaison des temps classiquement observés** pour d'autres biosorbants qui sont de l'ordre de quelques dizaines de minutes (Quek *et al.*, 1998 ; Bhattacharya *et al.*, 2006 ; Nehrenheim & Gustafsson, 2008 ; Hanif *et al.*, 2009). Ces temps de réaction sont d'ailleurs relevés dans la littérature pour une utilisation optimale en tant que filtre pour des applications réelles (Nehrenheim *et al.*, 2005). **Un temps d'équilibre long pourrait limiter la capacité des matériaux à retenir les ETM sur des toitures végétalisées réelles**. En effet, selon les événements pluvieux, le temps entre l'arrivée de la pluie sur la toiture et sa sortie de la structure peut varier de plusieurs heures à seulement quelques minutes sur la même structure (Stovin *et al.*, 2012).

Des capacités de rétentions significatives et une faible réversibilité pour l'argile expansée

Mis à part la structure synthétique stockante, les autres matériaux constitutifs des toitures végétalisées expérimentales présentent des **capacités de sorption de Cu et Zn élevées, en particulier l'argile expansée.** Ces capacités sont en effet **comparables** à celles de matériaux potentiellement utilisés comme **biosorbants** (Tableau 20). Seul le compost issu de décharge municipale (Paradelo *et al.*, 2012), la peau de mangue et les tiges de tournesol (Bhatnagar et Sillanpää, 2010) présentent des capacités de sorption plus importantes à la fois pour Cu et Zn.

La **faible réversibilité de la sorption de Cu et Zn par l'argile expansée** peut être expliquée par la prépondérance des liaisons spécifiques entre ces métaux et ce matériau (Gherbi, 2008). Ceci est en adéquation avec les résultats obtenus via les cinétiques (vitesse lente et corrélation avec le modèle de pseudo-second ordre).

Concernant les substrats, ces essais contrôlés en batch permettent de comprendre la corrélation entre teneurs en Cu et en matière organique. La majeure partie du **Cu sorbé par les substrats** est liée à la **matière organique** qui peut être **lessivée par les eaux de ruissellement**, induisant une **réversibilité significative de la sorption**.

Une forte complexité liée à l'hétérogénéité des substrats

Les substrats de toitures végétalisées doivent remplir diverses fonctions (rétention d'eau avec propriété d'écoulement libre, apports de nutriments, supports de développement des végétaux) qui sont atteintes grâce à différentes combinaisons de matériaux minéraux de granulométrie variée et une petite part de matière organique (Dunnet & Kingsbury, 2008). Du fait de cette hétérogénéité, ils sont plus comparables à des sols qu'à des biosorbants classiques. Or les mécanismes de sorption et les comportements cinétiques des sols sont souvent difficiles à caractériser du fait de leur complexité (Singh & Steinnes, 1994). Cela a été confirmé pour les substrats via la difficulté à

modéliser leurs comportements par des modèles simples ou encore le mécanisme « double-site » observé sur les isothermes de sorption.

Quant à l'impact de cette hétérogénéité sur les caractéristiques globales, la **capacité maximale de sorption des substrats semble influencée par l'ensemble des capacités des différents matériaux** qui les constituent. La plupart des matériaux organiques présents dans les mélanges des substrats (fibre de coco, écorce de pin, tourbe et composts de déchets verts) étudiés seuls présentent en effet des capacités de sorption de Cu supérieure à celles des substrats qui en contiennent (Tableau 20). Or ce métal a une forte affinité pour la matière organique (Bradl, 2004) et les substrats sont essentiellement composés de matière minérale. Celle-ci induirait donc une diminution de la capacité globale de rétention de Cu par les substrats.

Limites des conditions expérimentales considérées

Les essais ont été réalisés à des **concentrations relativement élevées en comparaison** des concentrations de quelques dizaines à centaines de µg L^{-1} trouvées habituellement dans les **eaux de pluie** (Partie I paragraphe 1.1.2). Cependant il était nécessaire de pouvoir obtenir une concentration non nulle à l'équilibre à la fin des essais de cinétiques afin de pouvoir observer l'ensemble du processus. Or les matériaux, et en particulier l'argile expansée, ont de fortes capacités d'adsorption qui ont nécessité le recours à ces fortes concentrations.

En outre, **en comparaison aux toitures végétalisées *in situ***, les **matériaux étudiés** sont **concassés**. Cela pourrait fournir un accès à des pores inaccessibles sur des matériaux entiers et par conséquent augmenter le nombre de sites de sorptions pour une même quantité de matériau. Cet impact sera d'ailleurs évalué plus précisément dans la partie suivante. Ainsi, le concassage pourrait augmenter artificiellement la capacité de sorption des matériaux, qui serait alors compensé par l'utilisation de concentrations plus élevées que ce qui est retrouvé en entrée de toiture réelle.

L'**agitation** pourrait également avoir un impact non négligeable sur la diffusion externe ou encore éventuellement l'attrition et donc faire évoluer la capacité de sorption maximale des matériaux (Hanif *et al.*, 2009). Ainsi, comme pour le concassage, l'utilisation de concentrations plus élevées que les concentrations réelles pourrait permettre de compenser la surestimation des capacités de sorption des matériaux induite par l'agitation.

Le concassage et l'agitation sont cependant indispensables pour pouvoir comparer les résultats obtenus sur ces matériaux de toitures végétalisées avec ceux de biosorbants classiques puisque les mêmes protocoles expérimentaux sont toujours utilisés.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

La comparaison à d'autres sorbants permet d'identifier de nouveaux matériaux aux capacités de sorption élevées, qui pourraient être testés en substrat ou drainage de toiture végétalisée. Par ailleurs, les paramètres issus des modèles de Freundlich et Langmuir fournissent une appréciation globale du comportement de sorption du matériau à différentes concentrations proches de celles trouvées dans les dépôts atmosphériques. Enfin, la large gamme de concentration considérée permet de mesurer directement la capacité maximale de sorption des matériaux sans avoir à passer par un calcul via des modèles type Langmuir et Freundlich. Or ces informations seront importantes pour estimer la durée de vie du système avant saturation selon les flux annuels de polluants auxquels est soumise la toiture végétalisée.

Les temps d'équilibre de réactions beaucoup plus longs que le temps de contact entre l'eau de pluie et les matériaux pourraient limiter la rétention des polluants atmosphériques par une toiture végétalisée en conditions réelles. Plusieurs solutions peuvent être envisagées pour augmenter le temps de contact, comme un stockage d'eau en toiture ou encore l'utilisation de matériaux avec des conductivités hydrauliques plus faibles, tout en veillant à un bon écoulement des pluies à travers la surface même avec de fortes intensités. Cette solution sera testée sur les toitures expérimentales. Des matériaux avec des temps d'équilibre plus courts peuvent également être recherchés. Il faut cependant veiller à sélectionner des matériaux dont les liaisons formées avec les ETM sont faiblement réversibles. Or un temps de réaction court est souvent associé à des réactions de type échanges d'ions qui sont généralement peu stables.

Enfin, une évaluation qualitative a permis de montrer l'importance de la capacité de sorption des différents constituants organiques et minéraux pris individuellement sur la capacité de sorption globale de ces matériaux. Ainsi, le choix et la proportion de chaque matériau utilisé pour la fabrication d'un substrat de toitures végétalisées revêtent donc une importance particulière.

2.2 Influence du pH, de la granulométrie et de la proportion de chaque matériau dans un mélange sur les capacités de rétention

Les essais réalisés précédemment portaient sur des matériaux concassés or ceux utilisés en toiture végétalisée présentent des granulométries beaucoup plus importantes. En outre, le pH des solutions entrant en contact avec les matériaux peut varier, en particulier lorsqu'elles arrivent dans le drainage après avoir traversé le substrat. Des essais complémentaires sur matériaux non concassés et à différents pH ont donc été réalisés sur le substrat et le matériau de drainage ayant démontré les capacités de sorption de Cu et Zn les plus importantes dans la partie précédente, à savoir le substrat extensif et l'argile expansée. Afin d'identifier l'impact spécifique des différents constituants d'un mélange, des essais ont été menés séparément sur les trois principaux matériaux constitutifs du substrat extensif (écorce de pin, tourbe et pouzzolane).

2.2.1 Isothermes et cinétiques de sorption sur matériaux entiers

La sorption de Cu sur l'argile expansée est à l'équilibre après 5 h environ, soit un temps assez proche de celui du matériau concassé (4 h). Les temps d'équilibre sont au moins supérieurs à 3,5 j pour l'argile expansée avec Zn et pour le substrat avec les deux ETM (Figure 27). Ils sont donc significativement supérieurs à ceux des matériaux concassés, en particulier pour la sorption de Zn sur le substrat qui était de l'ordre de 5 h.

Les capacités de sorption pour une solution initiale à 2 g L^{-1} sont de l'ordre de 5,5 et 8 mg g^{-1} pour Zn et 8 et 12 mg g^{-1} pour Cu respectivement sur le substrat et l'argile expansée (Figure 28). Dans des conditions initiales similaires, celles du substrat étaient comparables et celles de l'argile expansée significativement supérieures.

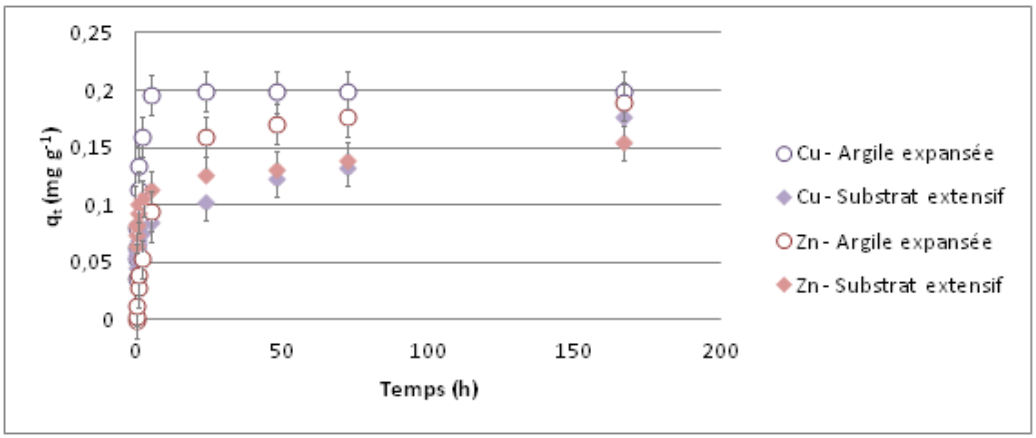


Figure 27 - Evolution de la quantité de Cu et Zn sorbée au cours du temps sur l'argile expansée et le substrat extensif non concassé

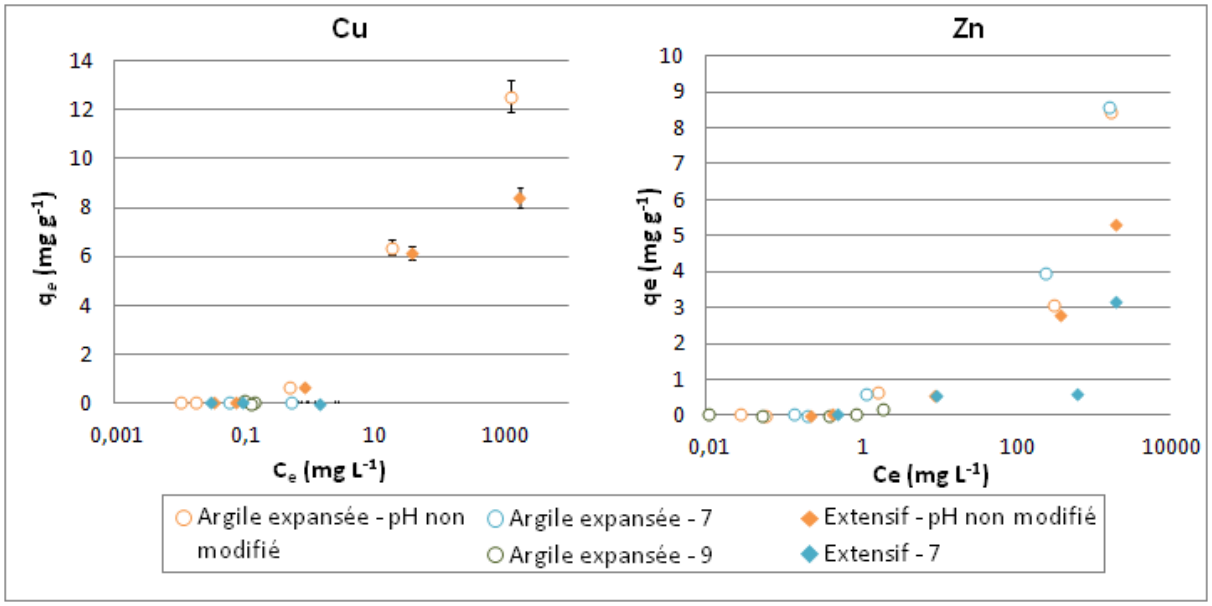


Figure 28 - Evolution de la capacité de sorption pour Cu et Zn de l'argile expansée et du substrat extensif non concassé en fonction de la concentration à l'équilibre à différents pH

2.2.2 Isothermes de sorption à pH contrôlé

Les solutions de sels métalliques réalisées à partir du $CuSO_4$ et du $ZnCl_2$ ont un pH aux alentours de 6 voire moins pour des concentrations de l'ordre du gramme par litre. Or des pH de l'ordre de 7 dans les substrats et de 9 dans l'argile expansée (paragraphe 1.2.1 de cette partie) induiront très probablement une augmentation des pH dans les eaux, en particulier pour celles arrivant dans l'argile expansée après un passage dans le substrat. Pour tester l'influence du pH sur la capacité de

sorption des matériaux, des essais ont été conduits à pH 7 et 9 sur matériaux non concassés et comparés aux essais menés à pH non contrôlé (Figure 28).

Le passage d'un pH légèrement acide à un pH basique a un impact limité sur la sorption de Zn par l'argile expansée. Mais une légère diminution de la capacité de sorption par le substrat extensif apparaît à pH 7 par rapport au pH non contrôlé. Les essais à pH 9 sur Zn et 7 et 9 sur Cu n'ont pas été concluants. En effet, l'augmentation du pH dans les solutions mères métalliques a engendré une forte diminution des concentrations en ions dans la phase dissoute avant même que les matériaux ne soient ajoutés. Cela peut être lié à un phénomène de précipitations avec des anions apportés par l'eau de Volvic comme HCO_3^- par exemple (Hlackova, 2005).

2.2.3 Cinétiques et isothermes de sorption des différents matériaux constitutifs du substrat extensif

Les deux matériaux organiques constitutifs du substrat extensif montrent une capacité de sorption beaucoup plus élevée que celles du matériau minéral, la pouzzolane. Les capacité de sorption du substrat reconstitué à partir de ces trois matériaux en fonction des proportions transmises par le fournisseur ont également été mesurées. Les valeurs obtenues sont significativement corrélées (supérieures à 0,95) avec la moyenne des capacités des matériaux considérés individuellement pondérées par leur fraction massique, en particulier aux faibles concentrations. Les valeurs restent également dans la même gamme aux fortes concentrations. Les temps d'équilibre des différents matériaux sont relativement élevés (de l'ordre de 1h30 à 5 h) et comparables entre eux aussi bien individuellement qu'en mélange. Il est donc difficile de savoir la façon dont les temps d'équilibres individuels jouent sur le mélange.

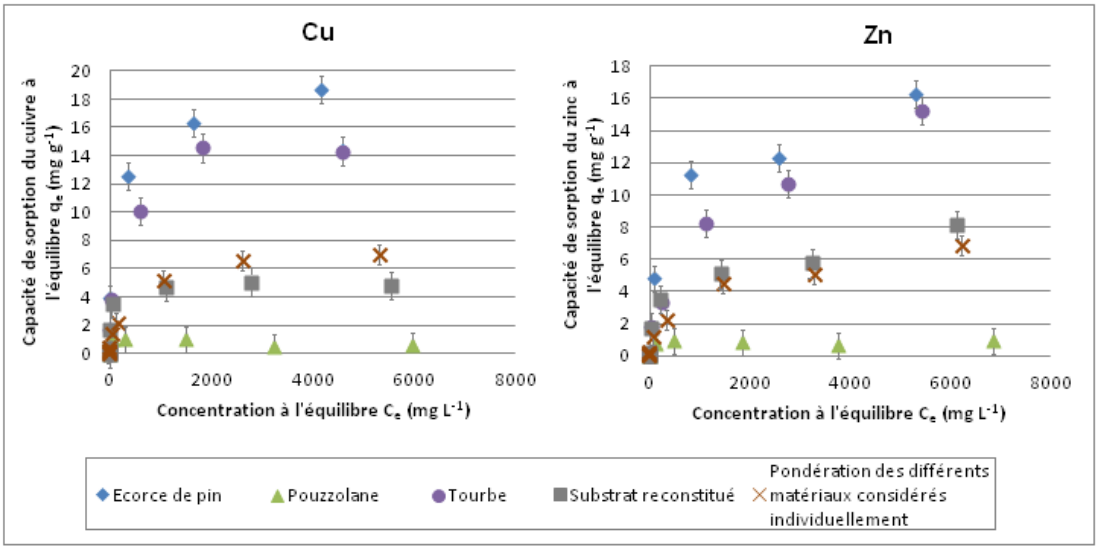


Figure 29 - Evolution de la capacité de sorption du Cu par les principaux matériaux constitutifs du substrat extensif considérés individuellement et en mélange

2.2.4 Discussion : les caractéristiques physiques et chimiques de chaque matériau influent sur le fonctionnement global de la structure

Un effet du pH techniquement difficile à évaluer

Il n'a pas été possible de caractériser précisément l'effet d'une augmentation du pH sur la capacité de rétention des matériaux, du fait de la précipitation des métaux à pH élevé. Cependant, si une **précipitation** de ces éléments s'est produite **à pH élevé en laboratoire**, elle peut également se produire en condition réelle et **contribuer à une rétention d'une partie des ions** apportés à la structure végétalisée.

Une diminution de la capacité de sorption des matériaux non concassés confirmée

Les **temps d'équilibre pour la sorption** sur le substrat extensif et l'argile expansée sont **significativement supérieurs pour les matériaux non concassés** par rapport aux concassés. Initialement réalisés en vue de la modélisation des transferts de polluants dans la toiture végétalisée (Annexe XI), les concentrations utilisées pour les cinétiques de sorption sur les matériaux non concassés sont significativement plus faibles que celles utilisées pour les matériaux concassés, afin d'être moins éloignées des teneurs présentes dans les dépôts atmosphériques. Or des concentrations plus faibles devraient induire des temps d'équilibre plus faibles (Ho & Ofomaja, 2006). Cette tendance serait donc encore plus marquée à concentration égale. Ceci s'explique par le

fait que les plus petites particules permettent un contact plus rapide entre les ions et les sites de sorption (Yu *et al.*, 2006).

La **capacité de sorption sur l'argile expansée non concassée** est **plus faible** d'un tiers pour Cu et de la moitié pour Zn **par rapport au matériau concassé**. Cette tendance peut notamment provenir d'une diffusion limitante et d'une augmentation de la surface spécifique par le concassage du matériau, induisant une augmentation du nombre de sites de sorption (Bhatti *et al.*, 2009 ; Hanif *et al.*, 2009). L'impact sur le substrat est quasiment négligeable. Cela peut s'expliquer par l'hétérogénéité de ce matériau (granulométrie) et de l'affinité variable des métaux pour l'écorce de pin, la tourbe et la pouzzolane, principaux composants de ce mélange. En effet les constituants organiques (tourbe et écorce de pin) ont montré les plus fortes capacités de sorption de Cu et Zn. Or ce sont également les composants présents dans les plus petites phases granulométriques (Annexe V). Ils auront donc probablement été moins influencés par le concassage.

Des capacités de rétention d'un mélange comparables à la moyenne pondérée de celles de chacun de ses composants

La caractérisation des matériaux individuels a également permis de mesurer la capacité de sorption de la **pouzzolane**, encore peu étudiée à ce jour. La capacité de ce matériau à **sorber les métaux** s'avère **très faible**. Celle-ci présente pourtant de l'hématite (Partie II paragraphe 1.2.1) susceptible de retenir les métaux (Bradl, 2004). **Cette faible capacité de sorption influence donc négativement celle du substrat.**

Le temps d'équilibre avec le mélange semble gouverné par celui du matériau présentant le plus long temps d'équilibre. Cependant cela reste à confirmer car les trois matériaux considérés ont des temps d'équilibre comparables. Ils sont également relativement longs par rapport à ce qui peut être observé dans la littérature pour les mêmes matériaux comme l'écorce de pin (Nehrenheim & Gustafsson, 2008). Cela peut provenir de la nature des matériaux en eux-mêmes ou encore des vitesses d'agitation utilisées dans la littérature qui sont souvent plus élevées que celle utilisée dans le cadre de ces essais. Ces faibles vitesses de rotation ont été choisies dans ce contexte d'étude de toiture végétalisée car en condition réelle aucune agitation n'est présente. Il est important de ne pas trop surestimer les cinétiques et capacités de sorptions via ce paramètre afin d'obtenir des temps d'équilibre proches de ceux rencontrés sur les toitures expérimentales.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Ces résultats confirment la pertinence de l'usage d'argile expansée pour la construction de matériaux de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées. En effet, l'argile expansée présente une capacité de sorption plus élevée que celles des matériaux organiques, qui pourtant contrôlent une part importante des liaisons avec les métaux, notamment avec Cu. Elle pourrait également remplacer avantageusement la pouzzolane, qui présente une faible capacité de sorption, pour constituer la part minérale des substrats. En effet, l'argile expansée offre les mêmes types de fonctions qui sont attendues de la part minérale d'un substrat que la pouzzolane, telles que la capacité de rétention d'eau élevée et la faible masse volumique. Le pouvoir de sorption pourrait encore être amélioré en diminuant la granulométrie du matériau par concassage, tout en veillant à ne pas trop augmenter la densité apparente.

La comparaison de la moyenne des capacités de sorptions individuelle pondérée par le pourcentage massique de chaque matériau constitutif du substrat est globalement comparable à celle du mélange reconstitué avec ces mêmes matériaux et proportions. Ceci peut être utile lors de la conception d'un substrat. En effet, en caractérisant seulement chaque matériau individuellement, une estimation de tout un panel de mélanges réalisés à partir de différentes proportions de chacun d'entre eux peut être obtenue à partir de calculs rapides.

Enfin, une plus faible capacité de sorption est enregistrée pour le substrat reconstitué par rapport au substrat commercial. Cela pourrait provenir des amendements complémentaires qui n'ont pas été utilisés dans le mélange reconstitué. Ces éléments représentent cependant une très faible proportion du mélange (de l'ordre de 1 à 2 kg m^{-3}). Or dans la mesure où l'impact d'un composant sur la capacité de sorption globale semble lié à cette proportion, il est peu probable que cela explique ces variations significatives. Cette différence pourrait donc provenir des capacités de sorption propres des principaux éléments constitutifs du substrat. En comparant les capacités de sorption de l'écorce de pin et de la tourbe étudiée dans le cadre de ces essais, avec le même type de matériaux étudiés dans la littérature (Tableau 20), les gammes de capacités de sorption sont d'ailleurs comparables mais pas parfaitement égales. Selon son origine, son mode de production ou encore son âge, les capacités de sorption de différents matériaux d'un même « type » comme des écorces de pin par exemple peuvent donc être différentes. Cela souligne l'importance d'une caractérisation fréquente des capacités de rétentions d'ETM des « matières premières » utilisées par les entreprises pour fabriquer leurs substrats, si celles-ci souhaitent mettre en avant les capacités épuratoires de leurs produits.

2.3 Essais en colonne de sorption du Zn sur l'argile expansée et le substrat extensif

Les essais réalisés en batch ne prennent pas en compte la dynamique de circulation dans les matériaux ni la superposition du substrat et du drainage. Or ce premier aspect a pu être précédemment identifié comme limitant les capacités de rétentions des ETM par les matériaux de toitures végétalisées du fait des cinétiques de réactions lentes et des temps de contact limités. Des essais en colonne ont donc été réalisés sur le substrat extensif et l'argile expansée comme dans la partie précédente. Le choix de l'élément à étudier s'est porté sur Zn car il s'agit de l'ETM le plus présent dans les dépôts atmosphériques et représentant potentiellement une part non négligeable du flux apporté aux milieux urbains (Percot, 2012 ; Gasperi *et al.*, 2014).

2.3.1 Comparaisons des résultats obtenus pour l'argile expansée et le substrat séparément

La comparaison des deux matériaux dans la configuration des ratios de hauteur présents sur la toiture végétalisée Extensive (5 cm d'argile expansée et 10 cm de substrat) permet d'évaluer l'impact potentiel de chacun des matériaux sur la rétention du Zn (Figure 30). V représente le volume de liquide écoulé dans la colonne et V_p le volume poreux des matériaux introduits dans la colonne.

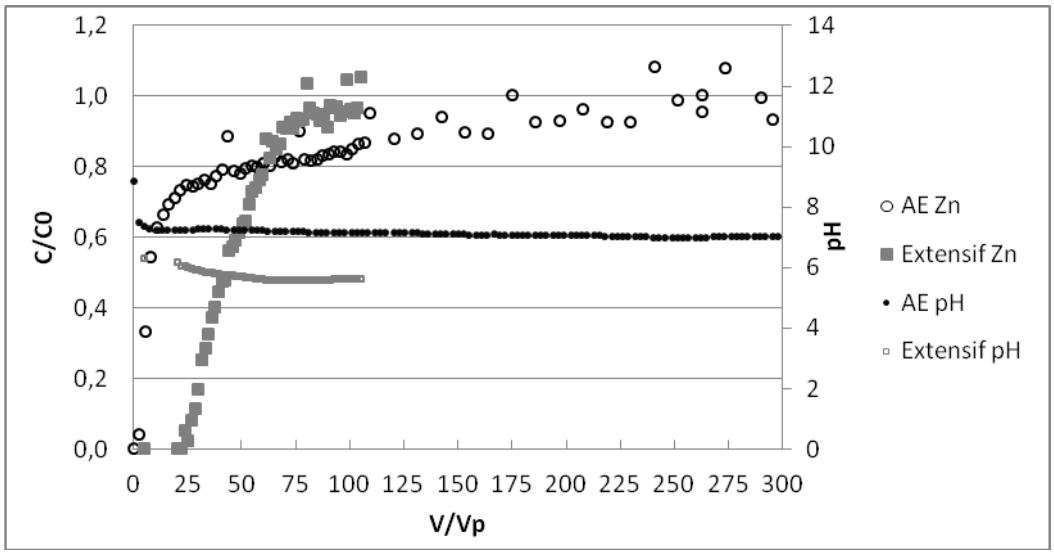


Figure 30 - Evolution de C/C_0 pour le Zn et du pH par rapport à V/V_p pour l'argile expansée et le substrat extensif en configuration similaire au ratio de hauteur des toitures végétalisées expérimentales

La courbe de percée obtenue pour le substrat extensif a une forme en « S » classiquement observée pour la sorption de substances de faible masse moléculaire avec des structures simples comme les métaux, contrairement à des molécules organiques par exemple (Quek et Al Duri, 2007).

La courbe de l'argile expansée montre une percée très rapide et une arrivée à saturation plus longue, qui pourrait être en lien avec la dispersion hydrodynamique.

Dans le cadre de l'étude de matériaux pour la rétention de polluants en traitement d'eaux usées par exemple, les capacités de sorption considérées comme utiles sont généralement celles avant la percée. Des concentrations très faibles en sortie sont en effet recherchées pour ce type d'usage (Taty-Costodes *et al.*, 2005 ; Alvarez-Merino *et al.*, 2005 ; Zhang & Banks, 2006). L'argile expansée aurait donc un faible intérêt dans ce type de contexte. Cependant l'objectif de ce projet n'est pas forcément d'obtenir des concentrations nulles en sortie de toitures végétalisées mais de retenir en partie les polluants apportés par l'atmosphère. Dans la suite de la caractérisation des matériaux, les capacités de rétentions jusqu'à saturation sont donc considérées. A saturation, l'argile expansée aura retenu 17,3 % du Zn écoulé, soit environ 9 mg, et le substrat 66,9 %, environ 28,2 mg (Tableau 25). La quantité de Zn retenue est donc significativement plus élevée dans le substrat par rapport à l'argile expansée. Cependant, la capacité de sorption par unité de masse à saturation de l'argile expansée reste supérieure à celle du substrat, du fait de la faible densité de ce premier et du volume plus faible introduit dans la colonne.

L'évolution du pH est également différente pour les deux matériaux. L'équilibre du pH est atteint rapidement pour l'argile expansée, avant la saturation en Zn de la colonne, tandis que les deux phénomènes arrivent quasiment simultanément pour le substrat. Comme indiqué par Zhang et Banks (2006), les phénomènes de sorption de métaux avec stabilisation du pH proviennent essentiellement d'échanges de protons alors qu'une fois le pH stabilisé, d'autres mécanismes entrent en jeu comme des échanges avec des éléments à plus faible affinité pour la matière ou des mécanismes de complexations. Les échanges de protons seraient donc prépondérants dans le substrat et limités pour l'argile expansée. A l'équilibre, le pH est légèrement supérieur à celui de la solution initiale (pH = 6,5) pour l'argile expansée et légèrement inférieur pour le substrat, ceci étant probablement induit par le pH des matériaux en eux-mêmes (Partie II paragraphe 1.2.1). Ces pH sont inférieurs à ce qui a été obtenu en batch à l'équilibre pour une concentration en Zn identique (6,5 pour le substrat et 8,4 pour l'argile expansée).

Tableau 25 - Caractéristiques des courbes de percées de l'argile expansée et du substrat extensif selon les différentes modalités testées

	Percée				Saturation					
	t_p (h)	V passé (l)	V/V_p	capacité de sorption (mg g^{-1})	t_s (h)	V passé (l)	V/V_p	% retenu	capacité de sorption (mg g^{-1})	Masse de Zn retenue (mg)
Extensif	11,8	0,21	22,7	0,42	52,3	0,94	100	70	1,09	33,2
Argile expansée (5 cm)	0,8	0,01	1,6	0,09	61,3	1,10	208	19	1,61	10,3
Argile expansée (10 cm)	0,8	0,01	1,6	0,12	87,4	1,59	159	47	2,54	28,7
TV simulée	4,0	0,07	13,0	0,10	96,0	1,73	304	49	1,39	42,5

2.3.2 Comparaisons des courbes de sorption de Zn^{2+} et de désorption de Ca^{2+}

En complément de la comparaison avec les variations de pH, la mesure des concentrations en Ca^{2+} en sortie de colonne peut également apporter des informations sur la nature des liaisons créées entre Zn et les matériaux. Ca^{2+} avait été prélablement introduit pour équilibrer la colonne avec une concentration molaire identique à celle de Zn^{2+} apporté par la suite. Pour le substrat extensif, le nombre de mol de Ca^{2+} désorbé est proche de celui de Zn^{2+} sorbé (respectivement 0,38 et 0,43 mmol). En outre,la courbe de sorption de Zn^{2+} et celle de désorption du Ca^{2+} sont symétriques par rapport à l'axe y = 0,5. Cela indique qu'il s'agit d'un échange entre deux cations ayant la même affinité pour les sites échangeurs d'ions de ces matériaux (Gujisaite, 2008).

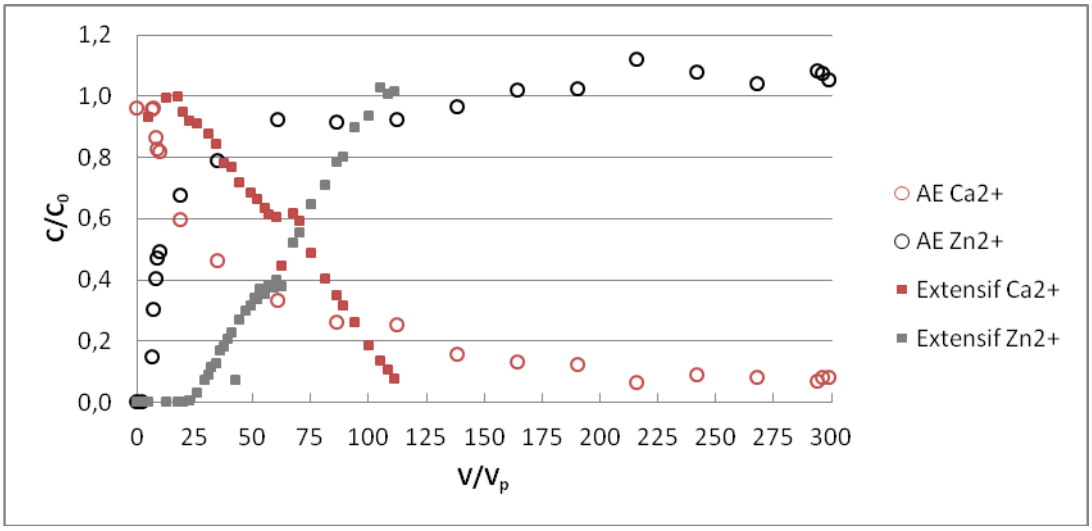


Figure 31 - Evolution du rapport C/C_0 de Ca^{2+} et Zn^{2+} pour l'argile expansée (AE) et le substrat extensif en fonction du volume écoulé sur le volume poreux de la colonne

2.3.3 Impacts de la hauteur de matériaux

La représentation de C/C_0 en fonction de V/V_p permet de montrer que la rétention de Zn est plus élevée que celle qui correspondrait au doublement de la hauteur (Figure 32). Contrairement à d'autres études ayant comparé l'impact de la hauteur de la colonne sur les courbes de percée (Taty-Costodes, *et al.*, 2005 ; Quek et Al Duri, 2007), il n'y a pas d'augmentation sensible du temps de percée. Cela pourrait être dû à une différence dans le tassement des matériaux. En effet pour une hauteur deux fois plus importante, la masse de matériau est légèrement inférieure à 2 fois la masse de la colonne de 5 cm (11,3 contre 6,08). Cependant le temps de saturation est plus long et l'allure des courbes est différente, une inflexion ayant lieu au milieu de la courbe de percée pour la colonne avec 10 cm d'argile expansée. Ceci induit une rétention de 47 % du Zn passé contre 17,3 % à 5 cm. La capacité de rétention est également plus élevée, avec une augmentation de plus de 50% (Tableau 25). Enfin, la quantité de Zn retenue est multipliée par 3 pour un ratio d'augmentation en hauteur de 2. Cela est probablement lié à la présence de ce 2nd front d'échange, observée via l'inflexion de la courbe sur la colonne de 10 cm, qui n'était cependant pas visible sur la colonne de 5 cm. Un autre type d'échange doit donc avoir lieu, soit avec d'autres ions présents dans la solution d'eau de pluie simulée soit avec des éléments initialement présents dans l'argile expansée et libéré au bout d'une certaine durée.

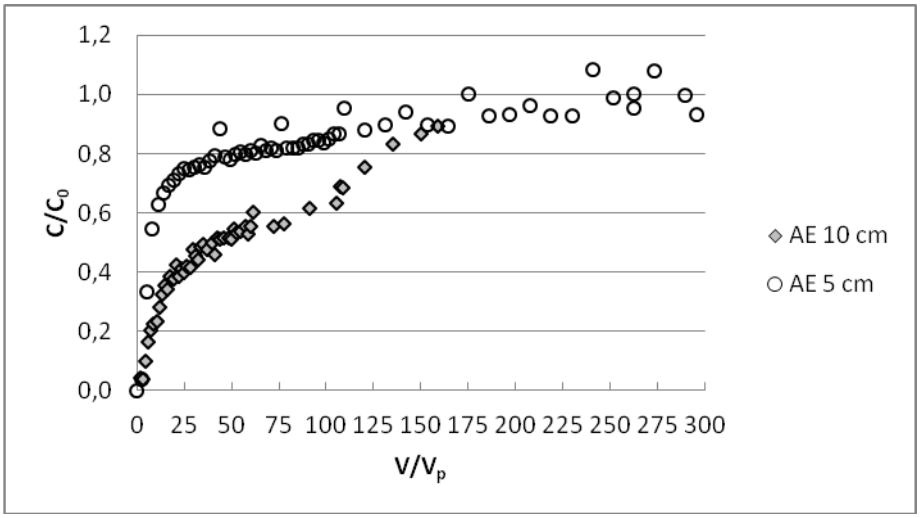


Figure 32 - Impact de la hauteur d'argile expansée sur la courbe de percée de Zn

2.3.4 Impacts de la superposition substrat/drainage

La comparaison des matériaux étudiés individuellement avec la superposition de 10 cm de substrat et 5 cm d'argile expansée (*TV sim*), soit les mêmes ratios de hauteur que sur la toiture végétalisée expérimentale extensive, permet d'identifier d'éventuelles interactions entre les matériaux qui pourraient influencer leur capacité globale à retenir les ETM.

Le point de percée des deux matériaux cumulés est situé, en termes de volume et de temps, entre les deux matériaux considérés individuellement (Figure 33). Pourtant, le flux traverse d'abord le substrat puis l'argile expansée. Le temps de percée de l'argile expansée étant quasiment nul, un temps de percée égal à celui du substrat aurait pu être attendu pour l'association des deux matériaux.

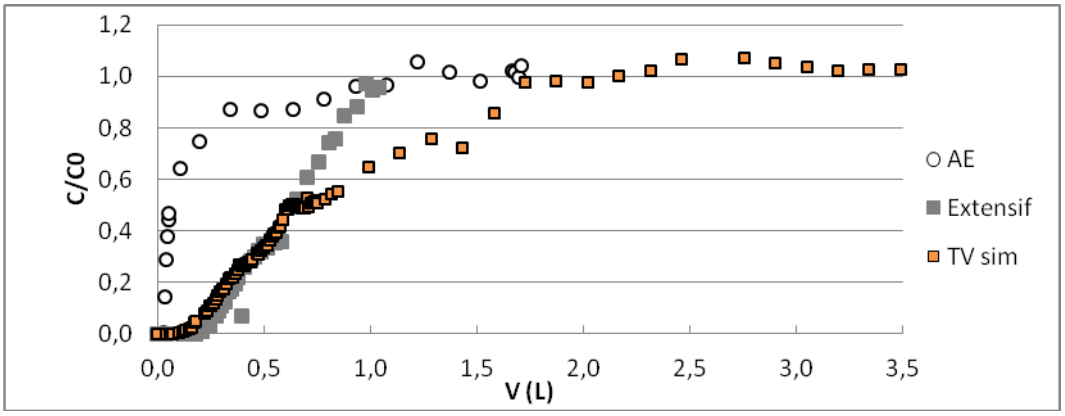


Figure 33 - Impacts de la superposition du substrat et de l'argile expansée sur l'évolution du rapport C/C_0 en fonction du volume écoulé

Sur les courbes rapportées au volume sur le volume poreux (Figure 34), les pentes de la courbe de percée du substrat et des deux matériaux superposés sont comparables jusqu'à un volume écoulé à travers la colonne de l'ordre de 0,5 fois le volume poreux de la colonne. Le substrat jouerait donc jusque là un rôle prépondérant dans la rétention de Zn. Ensuite la pente de la courbe de percée diminue sensiblement pour les deux matériaux superposés par rapport au substrat seul. L'arrivée à saturation est plus étalée et se rapproche de l'allure de la courbe de l'argile expansée. La concentration en Zn augmentant en sortie de la première couche, l'influence de la seconde couche deviendrait alors plus sensible et permettrait de retarder la saturation par rapport au substrat seul. La somme des ratios volumes écoulés à saturation / volumes poreux des deux matériaux considérés séparément est d'ailleurs comparable au ratio des matériaux superposés (Tableau 25).

La masse de Zn retenue par la colonne *TV sim* à saturation est légèrement inférieure à la somme des retenues par l'argile expansée et le substrat étudiés individuellement à des hauteurs identiques (Tableau 25).

2.3.5 Désorption du Zn

Les caractéristiques des courbes de désorption de Zn par les différents matériaux étudiés individuellement et en superposition peuvent également apporter des informations par rapport aux

mécanismes induisant la rétention des éléments et aux éventuelles interactions entre le substrat et le drainage.

L'argile expansée présente une désorption rapide, notamment en comparaison des autres essais (Figure 34). Les courbes de sorption et de désorption de Zn par la colonne contenant le substrat extensif sont symétriques. La désorption dans le cas de la superposition des deux matériaux est également symétrique à la sorption notamment par rapport à la tendance à double pente au niveau des courbes de percées déjà identifiées dans le paragraphe précédent. Une forte similarité est visible entre les courbes de désorption du substrat et de *TV sim*, avec une désorption initiale plus forte de cette dernière. Ensuite, un ralentissement de la désorption est visible sur la colonne *TV sim* alors qu'elle est terminée sur la colonne de substrat, cela provient donc probablement de la désorption du Zn retenu sur l'argile expansée.

A ratio volume écoulé / volume poreux équivalent et égal à 400 (la désorption étant terminée pour l'ensemble des matériaux à cette période), 76 % du Zn initialement retenu sur le substrat et 41 % de celui retenu sur l'argile expansée est retrouvé en sortie. Pour la colonne contenant les deux matériaux, 74 % du Zn retenu est désorbé. Cette valeur est légèrement supérieure à la moyenne des deux matériaux considérés individuellement pondérée par leur proportion massique respective, soit 70 % environ. Une légère augmentation de la désorption issue de l'un et/ou l'autre des matériaux par rapport à chaque matériau pourrait donc avoir lieu.

Ces différences doivent être induites par des interactions entre matériaux lors de la superposition. L'eau entrant dans l'argile expansée a en effet un pH plus faible que celui de l'eau apportée initialement suite à la traversée de la couche de substrat (paragraphe 2.3.1 de cette partie). Celui-ci pourrait notamment expliquer une remise en solution plus importante du Zn sorbé par l'argile expansée dans le cadre d'une superposition par rapport à l'étude du matériau seul.

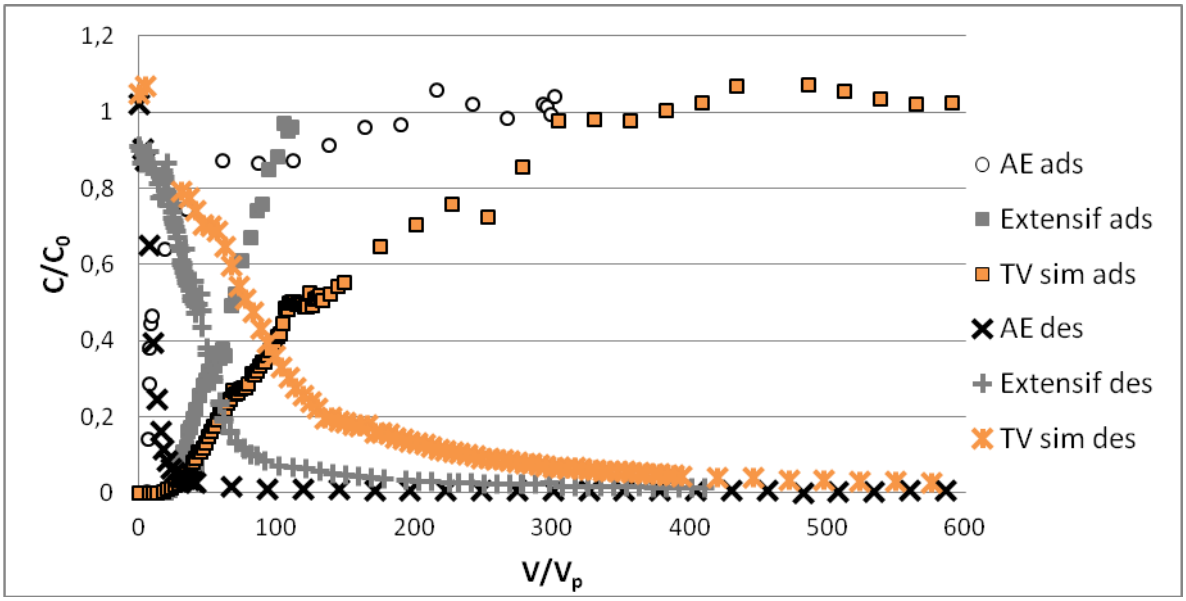


Figure 34- Comparaisons des courbes de sorption et désorption des différents matériaux en fonction de V/V_p

2.3.6 Discussion : des modifications significatives induites par la dynamique de l'écoulement et la superposition des matériaux

Des mécanismes de sorption principalement liés à l'échange d'ions

Les essais réalisés en colonne sur le substrat extensif et l'argile expansée montrent une **forte diminution des capacités de sorption** de Zn par rapport à celles des essais en batch, de l'ordre de 93 % pour le substrat et 95 % pour l'argile expansée.

Le **taux de désorption** est **significativement plus important** en comparaison des 10 à 15 % désorbés uniquement pour les très fortes concentrations initiales dans le cadre des essais en batch. Cela provient de la mise en contact avec une solution renouvelée en permanence dans le cadre des essais en colonne. En outre selon les matériaux, la rapidité des phénomènes de désorption ou encore la relative symétrie entre les courbes de sorption et désorption de Zn^{2+} ainsi que de sorption de Zn^{2+} et désorption de Ca^{2+} tendent à indiquer que la **sorption non spécifique par échange d'ions** est le **phénomène majoritaire** de sorption de Zn sur ces matériaux testés en colonne (Miretzky *et al.*, 2006 ; Gujisaite, 2008). Or les résultats obtenus dans le cadre des essais en batch démontraient la prépondérance de la formation de liaisons spécifiques pour la sorption de Zn^{2+} en particulier sur l'argile expansée (paragraphe 2.1 de cette partie).

Ainsi, la circulation dynamique du flux de Zn dans la colonne induisant un temps de contact beaucoup plus court (de quelques minutes contre plusieurs jours en batch), seuls les sites de sorption permettant un échange d'ions sont sollicités du fait de la formation plus rapide de ces liaisons électrostatiques par rapport aux liaisons chimiques. Or ces sites étant moins nombreux que ceux permettant la formation de liaisons spécifiques, cela induirait une diminution de la capacité de rétention des matériaux en condition dynamique. En outre ils induiraient une plus grande réversibilité de la sorption du fait de leur plus faible force d'interaction (Miretzky *et al.*, 2006).

Une complexité des phénomènes induite par la superposition des matériaux

La nature des liaisons de sorption des deux matériaux superposés semble comparable à ceux des deux matériaux considérés individuellement puisqu'ils démontrent notamment une certaine symétrie entre les mécanismes de sorption et désorption.

Cependant, la superposition des deux matériaux dans la même colonne induit un stockage global légèrement inférieur à la somme des quantités de Zn stockées par les deux matériaux considérés séparément. Le taux de désorption global est quant à lui légèrement supérieur à la moyenne des taux de l'argile expansée et du substrat pondérée par leur masse respective. Cela peut être lié à une différence dans le tassage des matériaux entre les différentes colonnes. En outre, alors que l'on pourrait s'attendre à un temps de percée égal voire supérieur à celui du substrat seul, qui est le premier matériau traversé, ce temps se trouve entre ceux des matériaux considérés individuellement. La **superposition** des deux matériaux a donc bien un **impact sur la sorption du Zn** et **pas uniquement** au niveau des mécanismes induits **dans la couche inférieure** suite à la traversée de la couche de substrat.

La présence d'une stratification dans une colonne favorise notamment l'écoulement de l'eau de la macroporosité vers la microporosité, en particulier dans la zone à l'amont de la séparation, et réduit ainsi l'impact de la macroporosité en termes d'écoulement préférentiel notamment (Muca-Lamy, 2009). Cependant peu d'études existent sur la caractérisation des capacités de rétention de substances par des colonnes composées de différents matériaux et il n'a pas pu être identifié de comparaison entre des matériaux utilisés individuellement puis superposés. En outre, les deux matériaux présentent également des pH significativement différents avec notamment un pH plus élevé pour l'argile expansée de l'ordre de 9 contre 6,8 pour le substrat. Ainsi, bien que situé à l'aval, il pourrait y avoir un impact de l'argile expansée sur le substrat, probablement dans la zone proche de l'**interface entre les deux matériaux** et potentiellement dû aux **différences de pH** entre ces deux matériaux. Or celui-ci conditionne fortement les conditions de sorptions des ETM sur les sols (Bradl, 2004).

Limites et intérêts des conditions expérimentales retenues

Plusieurs éléments relatifs aux **conditions expérimentales diffèrent** de ce qui se passe **réellement sur les toitures végétalisées**. Il est donc important de voir dans quelle mesure cela peut influencer les résultats obtenus. Tout d'abord, l'injection ascendante induit une **saturation du milieu**. Or les substrats et drainages ne sont pas systématiquement saturés en temps de pluie sur les toitures réelles, même si les teneurs restent relativement proches de la teneur à saturation. Gujisaite (2008) a cependant montré que les mécanismes d'échange d'ions, prépondérants dans le cadre de ces essais dynamiques sur les matériaux de toitures végétalisées, ne sont globalement pas affectés par la teneur en eau lorsque l'on reste dans une gamme proche de la saturation.

Du fait de la capacité de rétention de Zn relativement élevées des matériaux, il a également été nécessaire d'utiliser des **débits et concentrations élevés** par rapport à ce qui peut classiquement se faire en colonne ainsi que des hauteurs de colonne faibles pour obtenir une saturation puis une désorption dans des temps raisonnables. Miretzky *et al.* (2006) ont adopté la même stratégie d'utilisation de petites colonnes à des vitesses importantes pour prendre en compte les fortes capacités de rétention du sol considéré et les résultats obtenus ont finalement montré une faible influence de ces paramètres sur les caractéristiques de sorption du matériau considéré. Par ailleurs, le débit de 0,3 mL min^{-1} correspond à une intensité surfacique de 0,57 mm h^{-1} environ. Or cette intensité peut être rencontrée dès certaines pluies annuelles en Lorraine, selon les courbes tracées grâce aux coefficients de Montana. En outre, les matériaux de toitures végétalisées ont des conductivités hydrauliques élevées et bien supérieures au débit introduit. Ainsi un apport de pluie avec une intensité et une circulation à travers le milieu comparable à celle des essais en colonne peut être rencontré ponctuellement sur les toitures expérimentales réelles.

Une étude menée par Seidl *et al.* (2013) a consisté à arroser pendant 4 semaines des colonnes de substrats de différentes épaisseurs avec des pluies d'intensité et de volume globaux comparables à la pluviométrie sur 3 ans à Paris avec des concentrations en Zn plus proches de la réalité que celles utilisées dans le cadre des essais présentés précédemment. Plus représentatif des conditions hydrologiques réelles, ces essais complémentaires ont permis de démontrer **l'impact des caractéristiques des pluies et des périodes de sécheresses** sur la qualité des eaux en sortie. Une rétention d'ETM plus importante lorsque la période préalable à la pluie était plutôt sèche a notamment été observée, probablement en lien avec la répétition de cycle humide/sec qui favorisent la stabilisation des ions sorbés dans les sols (Han *et al.*, 2001). Cependant ces essais n'ont pas mis en évidence l'impact de la hauteur de matériau ni une évolution des capacités de sorption liée à une saturation progressive des sites de sorptions disponibles qui sont visibles grâce aux essais en colonne

avec des débits forcés et des concentrations plus élevées. Or ces deux aspects sont importants à prendre en compte dans un objectif de dimensionnement de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées et d'évaluation de l'efficacité de la structure à long terme.

Ainsi, malgré certaines limites liées au protocole expérimental retenu, ces essais en colonne permettent toutefois d'obtenir des informations intéressantes en termes de mécanisme de sorption de Zn et d'impact de la superposition des matériaux. En outre, ils **permettent de nuancer les résultats obtenus dans le contexte idéal du batch** par rapport à ce qui se déroule réellement en toiture végétalisée.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Les essais sur différentes épaisseurs d'argile expansée apportent des informations importantes en vue de la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées. Une augmentation de la hauteur d'un coefficient 2 a en effet permis d'observer une augmentation proportionnellement plus importante de la quantité de Zn stockée. Ceci peut provenir d'une amélioration des conditions de contacts entre le matériau et les ions en solution, notamment via une augmentation du temps de contact. En comparaison au substrat extensif, une quantité de Zn stockée quasiment similaire est obtenue pour une même épaisseur (10 cm) d'argile expansée avec une masse 5 fois moins importante. Or la masse de la structure est un paramètre essentiel à prendre en compte dans la conception d'une toiture végétalisée.

Conclusion

La caractérisation physico-chimique des différents matériaux utilisés pour la construction des toitures végétalisées expérimentales a montré une hétérogénéité importante entre les trois substrats utilisés ainsi qu'entre les différentes fractions granulométriques d'un même matériau. Des teneurs en ETM très faibles ont été mesurées dans les matériaux synthétiques. Les matériaux minéraux et organiques, notamment le substrat semi-intensif, présentent des teneurs non négligeables en certains éléments. Cependant, la disponibilité estimée par extraction chimique reste faible. Certaines caractéristiques physico-chimiques sont favorables à la rétention des ETM, notamment ceux apportés en phase dissoute grâce à un pH élevé dans les trois substrats et l'argile expansée. Les valeurs peu élevées de la CEC et la présence de grosses particules peuvent cependant limiter cette capacité.

Les différents essais menés en batch et en colonne ont permis de caractériser plus précisément les capacités de sorption individuelles des matériaux et d'identifier certains mécanismes entrant en jeu dans la sorption de Cu et Zn sur les substrats et les matériaux de drainage. Cu notamment semble plus particulièrement lié à la matière organique dans les substrats avec un potentiel de désorption important du fait de la solubilité de cette dernière. Concernant Zn, l'argile expansée a montré une capacité de sorption élevée et stable en lien avec la formation de liaisons spécifiques dans le cadre des essais en batch. Les essais en colonne ont apporté une approche complémentaire permettant d'évaluer l'impact d'une circulation dynamique du flux d'ETM et de la superposition du substrat et du matériau de drainage comme sur une toiture réelle. Ces deux éléments semblent diminuer la capacité de sorption globale des différents matériaux ainsi que la stabilité des liaisons formées. Des variations de pH ainsi que la formation de liaisons d'échange d'ions, moins stables mais se formant plus rapidement, peuvent expliquer ces variations.

Chaque protocole expérimental montre ses limites par rapport aux situations réelles rencontrées sur les toitures végétalisées. Les essais en batch peuvent être considérés comme des conditions expérimentales idéalisés avec des temps de contact beaucoup plus importants qu'en toitures réelles notamment. A l'inverse, ceux en colonne ne prennent pas en compte certains phénomènes, comme l'alternance de périodes sèches et humides, permettant potentiellement une stabilisation des liaisons de sorption. Mais ces deux types d'essais complémentaires permettent donc d'obtenir des

fourchettes basses et hautes de capacités de rétention. Il sera intéressant de voir par la suite si les capacités réelles des matériaux se trouvent à l'intérieur de cette gamme.

Dans un contexte de conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées, ces essais ont également permis de comparer les capacités de sorption des différents matériaux entre eux et par rapport à d'autres biosorbants utilisés dans l'industrie, permettant d'identifier de nouveaux matériaux à tester. La structure synthétique stockante a une très faible capacité de sorption de Cu et Zn contrairement à l'argile expansée, qui est comparable à d'autres biosorbants. Celle des substrats est intermédiaire. Les résultats issus des toitures végétalisées expérimentales permettront de voir si ces tendances se retrouvent en situation réelle. En outre, une augmentation des capacités de sorption a été observée sur les matériaux concassés par rapport aux non concassés. Les essais sur les différents matériaux constitutifs des substrats ont permis une meilleure compréhension des phénomènes complexes de sorption qui se produisent dans ces milieux hétérogènes et d'établir des méthodes d'évaluation de la capacité de rétention globale d'un mélange par rapport aux capacités individuelles des différents constituants. Enfin, plusieurs de ces résultats ont mis en avant la nécessité d'une caractérisation régulière des matières premières utilisées pour la production des matériaux du fait de la variabilité des capacités de sorption selon les caractéristiques spécifiques de chaque lot de différents matériaux portant la même dénomination.

PARTIE III

CONCENTRATIONS ET FLUX DE POLLUANTS DANS LES EAUX ISSUES DES TOITURES VEGETALISEES

Cette partie vise à caractériser les concentrations et flux d'ETM entrant et sortant des structures expérimentales. Le premier chapitre est dédié à l'observation des apports anthropiques et atmosphériques à la structure, afin de vérifier que ces derniers sont comparables à ce que l'on peut trouver en milieu périurbain en France. Le second chapitre présente à la qualité des eaux en sortie de toiture, permettant ainsi de mesurer l'impact réel des toitures végétalisées sur la qualité des eaux pendant plus de deux ans.

Chapitre 1 : Entrées du système

Les deux sources d'ETM sont les apports atmosphériques ainsi que les apports anthropiques. Les premiers peuvent représenter des quantités non négligeables par rapport aux flux de polluants dans le cycle de l'eau dans la ville, notamment pour Zn (Percot, 2012). Concernant les apports anthropiques, la présence d'ETM dans les engrais varie en fonction de la nature des produits utilisés ; certains engrais minéraux, notamment les phosphates, peuvent présenter des concentrations élevées en ETM, tels que Cd ou As. Gregoire & Clausen (2011) ont identifié l'apport d'engrais sur leur toiture végétalisée expérimentale comme une source potentielle de Cu, celui-ci ayant en effet une teneur en Cu de l'ordre de 40 mg g^{-1}.

1.1 Dépôts atmosphériques

1.1.1 Précipitations

A l'échelle nationale, le printemps et l'automne 2011 ont été très secs, ce qui amène l'année 2011 à être classée comme 6ème année la plus sèche depuis 1950 (DEB, 2012). Les mêmes tendances ont été observées sur le site expérimental nancéien (Figure 35). On remarque notamment des hauteurs de pluie très faibles au printemps et à l'automne, fréquemment en dessous des minimales observées entre 2005 et 2009. Les précipitations annuelles durant cette même période présente un déficit de 10 % par rapport à la moyenne de 712 mm, avec 641 mm de pluie sur l'année 2011.

Les précipitations de l'année 2012 sont légèrement supérieures à la moyenne (775 mm) avec trois premiers mois plutôt proches des minimas mensuels, voire inférieurs. Les précipitations sont plus importantes en fin d'année. L'année 2012 se distingue également par un évènement pluvieux exceptionnel qui a eu lieu dans la nuit du 21 au 22 mai 2012. Des orages ont engendré des précipitations de forte intensité, avec près de 95 mm de pluie tombés en trois heures, soit supérieures à la moyenne mensuelle de mai (Gastaud & Poulnois, 2012).

Enfin, le début d'année 2013 présente un cumul proche de la moyenne avec toutefois des précipitations mensuelles hétérogènes, supérieures aux précipitations maximales en janvier et avril et de l'ordre des minimales en février et mars.

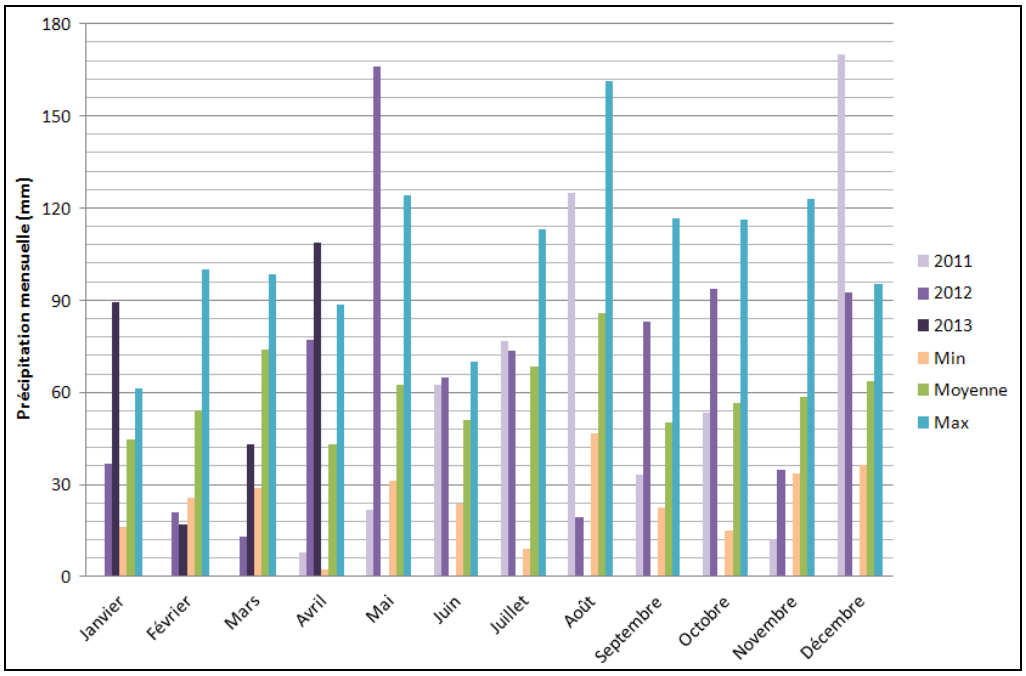


Figure 35 - Pluviométrie mensuelle d'avril 2011 à avril 2013 et comparaison avec les minimums, moyennes et maximums mensuels de 2005 à 2009

1.1.2 Caractéristiques physico-chimiques des retombées totales

Le pH observé (Figure 37), de l'ordre de 6 à 7, est dans la gamme haute de ce qui est généralement observé dans les eaux de pluie en France (Percot, 2012). Les concentrations en ETM présentent une forte variation au cours du temps (Figure 36), classiquement observée dans ce type de dépôt (Azimi *et al.*, 2003). Les concentrations minimales, maximales et moyennes dans les phases dissoutes et particulaires (Tableau 28, Tableau 29) sont comparables à ce qui a été observé sur des sites périurbains de l'agglomération lyonnaise (Dembélé *et al.*, 2008 ; Tableau 2). Les concentrations les plus élevées sont rencontrées pour Cu et Zn. La répartition entre phase dissoute et phase particulaire est également comparable à ce qui est mentionné dans la littérature pour Cu ou Zn qui sont présents essentiellement en phase dissoute, alors que Pb et Cr se retrouvent surtout en phase particulaire. Les flux moyens rapportés à une année sont présentés sur la Figure 41 p. 154.

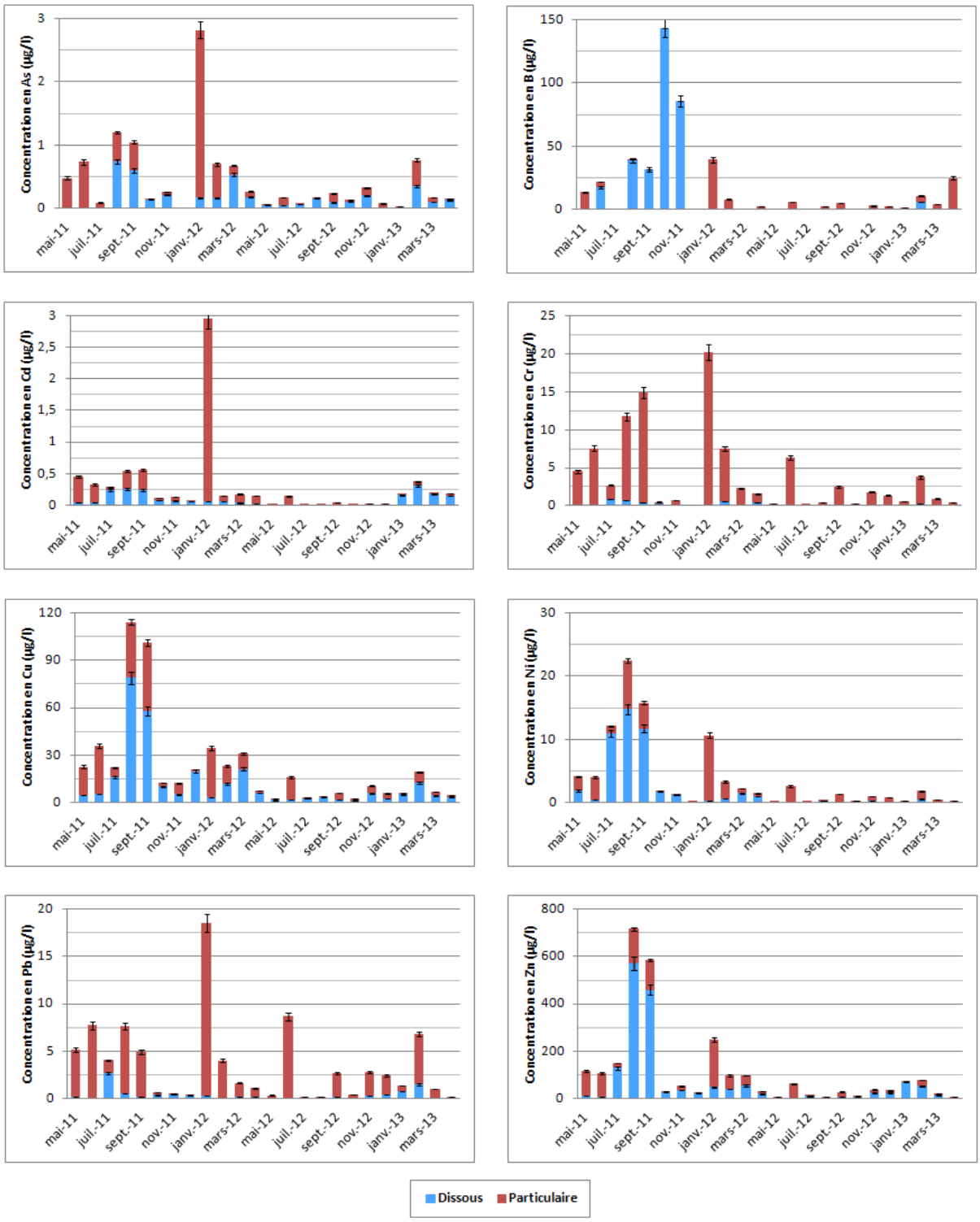


Figure 36 - Concentrations en ETM en phases dissoutes et particulaires dans les dépôts atmosphériques sur la période de suivi des toitures végétalisées expérimentales

1.2 Apports anthropiques

L'engrais utilisé présente des teneurs en Cr et en B non négligeables ; la concentration du Cd est faible (Tableau 26). Etant donnée la faible quantité introduite et le nombre d'applications restreint à un seul apport, seul l'apport surfacique de Cr est véritablement significatif par rapport aux flux atmosphériques évoqués précédemment.

Tableau 26 - Teneur en ETM et en éléments majeurs dans l'engrais incorporé en avril 2010 et équivalent en apport surfacique par m²

Eléments	Teneur (mg kg^{-1})	Apport surfacique (mg m^{-2})
As	0,29	0,002
B	10,60	0,068
Cd	0,04	0,000
Cr	129,81	0,831
Cu	0,07	0,000
Ni	0,77	0,005
Pb	0,18	0,001
Sb	1,81	0,012
Zn	8,08	0,052
P	10303,26	65,941
Ca	390,69	2,500
K	30751,49	196,810
Mg	97,24	0,622
Na	2645,47	16,931

1.3 Discussion : des apports potentiels via les engrais à ne pas négliger

Une estimation qualitative des apports atmosphériques représentatif des apports présents à l'échelle nationale

De récentes recherches ont montré une **variation non négligeable des flux d'ETM** estimés par différentes **méthodes de prélèvement des dépôts atmosphériques** et surtout des flux véritablement retenus par les **surfaces urbaines** selon leur nature et notamment leur rugosité (Percot, 2012). Ainsi les surfaces végétales comme la pelouse captent plus de polluants apportés par temps secs que les surfaces lisses. L'évaluation des concentrations et flux de polluants présentée précédemment est donc une **indication** de ce qui a pu être réellement reçu par les toitures végétalisées expérimentales, probablement dans une gamme légèrement plus basse. Ces résultats ont également pour intérêt de confirmer que le site expérimental considéré présente des **apports d'ETM comparables à d'autres sites périurbains** suivis en France avec le même type d'instrumentation. Cela nous permettra par la

suite de **généraliser les résultats obtenus** à ce qui pourrait être observés sur d'autres toitures végétalisées. En outre, la comparaison des concentrations en ETM dans les phases dissoutes permet d'observer des **dépassements** ponctuels des **seuils de la Directive Cadre sur l'Eau pour Cd, Ni et Pb** et quasi-systématiques pour **Cu et Zn**, soulignant la nécessité d'un **traitement le plus à l'amont possible des eaux de pluie**.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Les quantités d'ETM introduites par les engrais restent limitées en comparaison des flux atmosphériques entrants. Cependant, la forte teneur en Cr montre la nécessité de porter une attention particulière à ces produits. Les teneurs en éléments autres que les éléments nutritifs sont d'ailleurs très rarement fournies par le fabricant. Cela conduit alors la plupart des utilisateurs, professionnels ou non, à penser qu'ils ne contiennent rien d'autres que des phosphates, de l'azote ou du potassium par exemple comme cela a pu être constaté dans le cadre d'une enquête sur les pratiques d'entretien des toitures végétalisées (Schwager *et al.*, 2013a). Peu d'études sont consacrées à l'analyse des polluants organiques et inorganiques dans les engrais. Cependant, un rapport suisse (OFEFP *et al.*, 1991) confirme la présence de Cr à des teneurs importantes, de l'ordre de la centaine à plusieurs centaines de mg kg^{-1} dans les engrais phosphatés et minéraux composés. La présence d'autres ETM comme As, Cd, Cu, Ni, Pb ou encore Zn à des teneurs non négligeables a également été rapportée.

En outre, un seul apport a été réalisé sur ces toitures expérimentales en plus de deux ans tandis que les préconisations d'entretien fournies par les Règles Professionnelles françaises (ADIVET *et al.*, 2007) conseillent une introduction d'engrais pas an. Dans ce cas, l'apport de Cr réalisé en 2010 représente 17 % de la quantité apportée par les dépôts atmosphériques. La contribution de l'apport anthropique au flux entrant global de cet ETM pourrait donc s'avérer non négligeable si l'engrais était introduit chaque année.

Chapitre 2 : Eaux en sortie des parcelles expérimentales

Nous considérons que les flux d'ETM sortants sont majoritairement dus aux eaux en sortie de toiture, la volatilisation des ETM pouvant être considérée comme négligeable (Partie I paragraphe 2.2.4). Les teneurs en sortie sont variables selon les sites et conditions expérimentales (Czemiel Berndtsson, 2010). Mais selon Czemiel Berndtsson (2010), ces structures ne peuvent pas être responsables d'une détérioration significative de la qualité des eaux pluviales. Les résultats de la Partie II laissent présager de capacités de sorption significatives des matériaux utilisés, dans des conditions expérimentales idéales. Ce chapitre permet d'évaluer l'efficacité de ces capacités de sorption en condition réelle et d'identifier d'éventuelles sources d'ETM.

2.1 Caractéristiques physico-chimiques

Le pH en sortie des toitures est significativement plus élevé qu'à l'entrée (Figure 37). Il est systématiquement basique, en particulier pour les toitures Vosges, Plateaux calcaires, Semi-intensive, Fibre coco et Extensive. Seul le mois de mai 2012 montre une faible différence entre les eaux en entrée et en sortie, probablement liée aux fortes précipitations durant ce mois. La capacité de ces structures à augmenter le pH ne semble pas avoir diminué au bout de deux ans et demi, ce qui est cohérent avec les informations fournies par Berghage *et al.* (2007) qui indique que celle-ci commence à diminuer après une dizaine d'années seulement.Le pH est plus élevé que celui rapporté par ailleurs en sortie de toitures végétalisées, qui se situe généralement autour de 7,5-8 (Köhler & Schmidt, 2003 ; Bates *et al.*, 2007 ; Czemiel Berndtsson *et al.*, 2009).

La concentration en Matière en Suspension (MES) montre une forte diminution en sortie de toiture pour l'ensemble des toitures étudiées. Seuls les mois de décembre 2011 et janvier 2012 présentent des concentrations plus élevées en sortie qu'en entrée, peut-être liées à la remise en suspension de particules décantées pendant la période avec bouchon de stockage lorsque ceux-ci ont été enlevés fin décembre 2011.

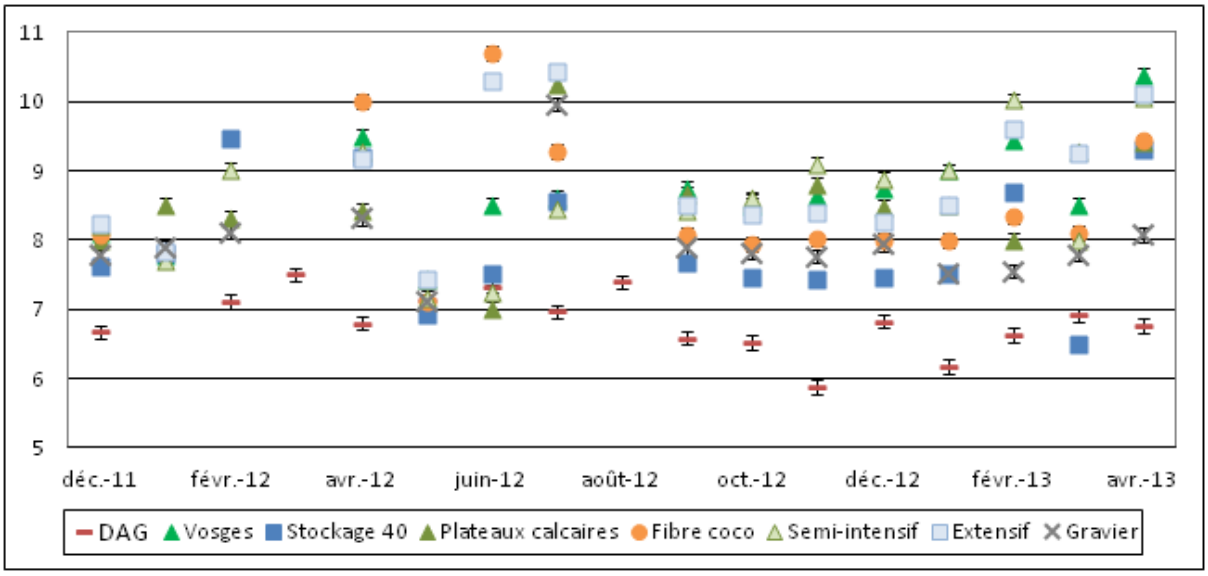


Figure 37 - Evolution du pH en entrée et sortie de toitures entre décembre 2011 et avril 2013

Tableau 27- Ratio concentration en MES en sortie / concentration en MES en entrée en sortie des différentes toitures au cours du temps

Mois	Vosges	Stockage 40	Plateaux calcaires	Fibre coco	Semi-intensive	Extensive	Graviers
mai-11	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
juin-11	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
juil-11	0,76	0,00	1,31	1,39	0,22	6,62	0,92
août-11	0,05	0,05	0,07	0,03	0,05	0,05	0,03
sept-11	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
oct-11	6,07	1,82	1,75	7,56	0,28	1,29	0,24
nov-11	0,14	0,05	0,82	0,55	0,02	0,14	0,34
déc-11	3,41	9,57	1,97	0,51	2,89	2,10	6,16
janv-12	1,20	8,75	1,75	1,32	2,03	1,63	2,29
févr-12	0,00	0,94	0,33	0,00	1,12	0,00	0,03
mars-12	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
avr-12	0,16	1,02	1,47	0,14	3,47	0,13	0,24
mai-12	0,06	0,22	0,14	0,07	0,09	0,45	0,03
juin-12	0,00	0,00	0,02	0,00	0,09	0,00	0,00
juil-12	1,18	1,91	3,30	0,24	4,08	0,28	6,36
août-12	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
sept-12	0,18	0,74	1,23	0,33	0,15	0,35	1,67
oct-12	0,27	1,34	0,73	0,28	0,55	0,22	0,38
nov-12	0,03	0,14	0,32	0,28	0,39	0,05	0,64
déc-12	0,05	0,12	0,02	0,86	0,03	0,06	0,03
janv-13	0,45	0,82	1,08	0,27	0,78	0,47	0,99
févr-13	0,30	0,12	0,06	0,11	0,15	2,69	0,51
mars-13	0,66	0,92	0,25	0,55	0,23	0,71	2,18
avr-13	4,27	2,15	0,42	0,39	0,32	0,48	0,66

2.2 Concentrations en ETM

Les concentrations en sortie des différentes toitures montrent des différences importantes entre les parcelles (Tableau 28 et Tableau 29). Les valeurs minimum et valeurs maximum varient également sur une même toiture. Les concentrations moyennes en As, B, Ni et Zn sont presque toujours supérieures aux concentrations retrouvées dans les dépôts atmosphériques pour l'ensemble des toitures. Seule la toiture Extensive présente une concentration en Zn plus faible en sortie. Les concentrations moyennes en Cd, Cu, Cr (sauf toiture Semi-intensive) et Pb (sauf toiture Plateaux calcaires) sont inférieures aux concentrations entrantes. Ces tendances et concentrations sont similaires à celles des toitures végétalisées observées dans la bibliographie (Tableau 9) sauf pour les concentrations maximales en Ni et moyennes en Zn qui présentent des concentrations sensiblement plus importantes. Pour Zn, les concentrations dans les dépôts atmosphériques de ces toitures végétalisées sont également significativement supérieures à celles apportés sur les toitures végétalisées recensées précédemment. A l'inverse, les concentrations en Cu et Pb sont inférieures à ce qui a été observé sur d'autres toitures végétalisées expérimentales dont la tendance était en outre à l'augmentation en sortie par rapport à l'entrée (Tableau 10).

As, B, Cu, Ni et Zn se trouvent essentiellement en phase dissoute en sortie des toitures expérimentales, avec des proportions en phase dissoute de l'ordre de 98 % As, 87 % B, 87 % Cu, 89 % Ni et 83 % Zn. Le pourcentage de Cd, Cr, et Pb en phase particulaire est plus variable selon les espèces considérées. Pour le premier, il va de 30 % pour la toiture Semi-intensive à 80 % pour la toiture Stockage 40, pour Cr de 5 % pour la toiture Semi-intensive à 60 % pour la toiture Fibre de coco, pour Pb, de 6 % pour la toiture semi-intensive à 100 % pour la toiture des Vosges. De façon générale, une augmentation de la part d'ETM en phase dissoute en sortie des toitures est visible par rapport à la part de cette phase dans les dépôts atmosphériques. Les prélèvements d'eaux issues des toitures ayant lieu une fois par mois, une partie de ces eaux est restée dans le bidon pendant quelques jours avant filtration. Cependant, les pH étant élevés, les conditions seraient plus favorables à un passage des ETM dissous en phase particulaire plutôt que l'inverse. Les conditions expérimentales ne doivent donc pas induire de biais significatif sur cette tendance d'augmentation de la part dissoute.

Tableau 28 - Concentrations (µg L^{-1}) en ETM dans les phases dissoute et particulaire des dépôts atmosphériques et des eaux en sortie de toitures expérimentales

		Phase dissoute									Phase particulaire								
		As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Sb	Zn	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Sb	Zn
	Min.	0,0	0,0	0,0	0,0	1,5	0,0	0,0	0,0	1,6	0,0	0,0	0,0	0,1	0,2	0,0	0,1	0,0	0,8
Dépôts atmosphériques	***Moyenne***	0,1	8,4	0,1	0,2	13,8	2,7	0,5	0,0	80,0	0,2	2,5	0,2	3,0	7,8	1,5	2,4	0,1	31,2
	Max.	0,7	143,6	0,3	0,8	79,0	14,8	2,7	0,0	570,9	2,7	39,2	2,9	20,1	43,4	10,4	18,3	1,1	198,8
	Min.	33,4	0,0	0,0	0,2	5,1	1,6	0,0	0,0	13,3	0,0	0,0	0,0	0,1	0,1	0,0	0,0	0,0	1,8
Vosges	***Moyenne***	36,1	100,6	0,0	0,3	9,5	5,7	0,1	0,0	123,4	0,2	2,0	0,0	0,3	0,5	0,2	0,1	0,0	13,2
	Max.	48,9	336,2	0,2	0,6	17,2	11,4	0,1	0,0	264,2	3,3	37,1	0,1	1,1	1,9	3,0	0,2	0,0	102,6
	Min.	0,7	0,0	0,0	0,2	5,2	1,9	0,1	0,0	34,5	0,0	0,0	0,0	0,1	0,1	0,0	0,0	0,0	3,8
Stockage 40	***Moyenne***	1,7	8,4	0,1	0,5	11,2	37,3	0,4	0,0	182,3	0,1	7,9	0,0	0,4	1,0	0,3	0,1	0,0	14,7
	Max.	3,7	69,9	0,4	1,7	26,3	335,8	2,2	0,0	507,0	0,4	112,7	0,2	1,4	8,3	1,5	0,6	0,0	295,4
	Min.	21,5	0,0	0,0	0,2	6,8	1,8	0,0	0,0	16,5	0,0	0,0	0,0	0,1	0,1	0,0	0,0	0,0	1,1
Plateaux calcaires	***Moyenne***	38,2	143,8	0,0	0,3	9,5	6,0	1,8	0,0	155,8	0,3	3,6	0,0	0,8	1,4	0,7	1,5	0,0	25,7
	Max.	51,1	453,0	0,1	0,4	14,7	10,8	14,3	0,0	367,7	3,0	34,2	0,3	7,1	13,9	8,0	14,0	0,0	223,8
	Min.	9,2	0,0	0,0	0,1	3,9	1,4	0,0	0,0	18,5	0,0	0,0	0,0	0,1	0,2	0,0	0,0	0,0	1,6
Fibre coco	***Moyenne***	18,5	21,9	0,0	0,3	9,2	17,3	0,1	0,0	118,3	0,4	3,3	0,0	0,3	0,7	0,2	0,1	0,0	21,9
	Max.	44,1	130,9	0,2	0,6	14,8	120,6	0,5	0,0	286,4	4,5	10,9	0,0	1,3	4,3	2,2	0,2	0,0	143,9
	Min.	23,8	0,0	0,0	0,0	4,7	2,0	0,0	0,0	20,1	0,0	0,0	0,0	0,1	0,1	0,0	0,0	0,0	0,8
Semi-intensive	***Moyenne***	34,6	108,4	0,0	0,3	8,5	5,8	0,1	0,0	82,5	0,4	9,1	0,0	7,6	3,9	5,4	1,7	0,0	44,4
	Max.	46,7	374,7	0,2	0,6	11,7	11,8	2,0	0,0	184,9	1,2	50,7	0,2	40,9	6,4	10,0	3,0	0,0	101,0
	Min.	22,4	0,0	0,0	0,1	6,9	1,8	0,0	0,0	9,5	0,0	0,0	0,0	0,1	0,2	0,0	0,0	0,0	0,5
Extensive	***Moyenne***	41,6	38,4	0,1	0,4	14,9	43,7	0,1	0,0	48,2	0,2	2,0	0,0	0,5	1,5	0,6	0,2	0,5	17,7
	Max.	107,9	213,6	0,2	1,1	37,9	278,7	0,4	0,0	201,1	0,8	39,4	0,1	3,1	7,8	4,3	0,9	5,7	156,6
	Min.	0,4	0,0	0,0	0,0	1,8	0,2	0,0	0,0	33,0	0,0	0,0	0,0	0,1	0,1	0,0	0,0	0,0	1,1
Gravier	***Moyenne***	1,0	3,7	0,0	0,1	4,0	0,7	0,1	0,0	147,1	0,0	0,8	0,0	0,4	0,9	0,1	0,2	0,0	17,0
	Max.	3,7	26,4	0,2	0,4	13,6	2,2	0,5	0,0	445,7	0,3	25,6	0,1	3,5	6,6	1,4	2,6	0,7	190,0

Tableau 29 - Concentrations totales (µg L^{-1}) en ETM dans les dépôts atmosphériques et les eaux en sortie de toitures expérimentales

		As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Sb	Zn
Dépôts	***Min.***	0,0	0,0	0,0	0,1	2,3	0,1	0,2	0,0	6,0
atmosphériques	***Moyenne***	0,3	10,9	0,2	3,2	21,6	4,2	2,9	0,1	111,2
	Max.	2,8	143,6	3,0	20,3	114,3	22,4	18,5	1,1	717,3
	Min.	33,7	0,0	0,0	0,3	5,6	2,0	0,0	0,0	26,6
	Moyenne	36,3	102,7	0,0	0,6	10,0	5,9	0,1	0,0	136,6
Vosges	***Max.***	49,0	336,2	0,2	1,4	17,4	11,6	0,2	0,0	280,7
	Min.	0,8	0,0	0,0	0,4	5,5	2,0	0,2	0,0	38,3
	Moyenne	1,8	16,3	0,1	0,9	12,1	37,6	0,5	0,0	197,0
Stockage 40	***Max.***	3,7	112,7	0,5	2,2	27,5	336,0	2,2	0,0	802,4
	Min.	24,5	11,2	0,0	0,3	7,7	4,0	0,1	0,0	69,2
	Moyenne	38,5	147,5	0,1	1,0	10,8	6,7	3,3	0,0	181,5
Plateaux calcaires	***Max.***	51,2	453,0	0,3	7,3	27,7	11,0	19,2	0,0	374,2
	Min.	9,2	0,0	0,0	0,2	4,2	1,5	0,0	0,0	27,7
	Moyenne	18,9	25,1	0,1	0,5	9,9	17,5	0,2	0,0	140,2
Fibre coco	***Max.***	48,5	130,9	0,2	1,7	19,0	121,5	0,7	0,0	288,4
	Min.	23,9	0,7	0,0	0,2	5,2	2,1	0,0	0,0	29,6
	Moyenne	34,9	117,3	0,1	5,9	12,2	11,0	1,7	0,0	125,0
Semi-intensive	***Max.***	46,8	374,7	0,2	54,0	12,5	11,9	3,0	0,0	191,2
	Min.	22,4	0,0	0,0	0,2	7,2	2,4	0,0	0,0	13,0
	Moyenne	41,8	40,3	0,1	0,9	16,3	44,3	0,3	0,5	65,9
Extensive	***Max.***	108,0	213,6	0,2	3,3	39,7	279,2	0,9	5,7	357,7
	Min.	0,5	0,0	0,0	0,1	2,6	0,2	0,1	0,0	76,4
	Moyenne	1,0	4,4	0,1	0,5	4,9	0,8	0,4	0,0	164,1
Gravier	***Max.***	3,7	26,4	0,2	3,6	13,8	2,3	2,6	0,7	451,0

Afin de mieux comprendre comment certains paramètres peuvent faire varier les flux en sortie d'une même toiture, les concentrations en sortie ont été comparées à partir du coefficient de Pearson aux caractéristiques des entrées (volume de pluie et concentrations en ETM). L'âge des toitures qui peut influencer la qualité des eaux en sortie est également considéré (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2005 ; Czemiel Berndtsson, 2010). Aucune corrélation n'a pu être établie avec les volumes de pluie cumulés sur un mois contrairement à ce qui été observé par Vijayarghavan *et al.* (2012) sur des évènements pluvieux individuels.

Dans le cadre d'essais menés sur des bancs expérimentaux, une dépendance à certaines caractéristiques des événements pluvieux comme le nombre de jour de temps sec avant l'évènement pluvieux ou la concentration en Cu a été identifiée (Seidl *et al.*, 2013). Sur les toitures végétalisées expérimentales du Laboratoire de Nancy, des corrélations significatives ont également pu être observées entre concentrations en entrée et en sortie en particulier sur la phase dissoute pour certains

ETM et selon les toitures. C'est notamment le cas pour Cd avec l'ensemble des toitures expérimentales (coefficient de Pearson entre 0,62 et 0,75 ; Vosges<Fibre coco<Semi-intensive<Plateaux calcaires<Gravier<Stockage 40 et Extensive). Pour Ni en phase dissoute (coefficient entre 0,7 et 0,89) le même résultat est obtenu sur l'ensemble des toitures, sauf pour Semi-intensive et Graviers pour les concentrations totales en Ni et dissoutes en Cr notamment. Une forte corrélation avec l'âge des toitures a également été observée pour certains ETM. Ainsi les coefficients de Pearson sur les concentrations dissoutes et l'âge de la toiture sont de l'ordre de -0,75 pour B avec les toitures des Vosges, des Plateaux Calcaires et Semi-intensive. La décroissance des concentrations en sortie de ces toitures au cours du temps est également bien visible sur la Figure 38. Ces coefficients sont également significatifs pour les toitures Stockage 40, Extensive et Fibre coco avec Ni. Une tendance à la diminution des concentrations en Cu sur les phases dissoutes et particulaires des toitures Stockage 40 et Extensive est également suggérée par des coefficients de Pearson de l'ordre de -0,65 à -0,7. D'importantes augmentations des concentrations en As par rapport aux apports atmosphériques sont observées en sortie des toitures Vosges, Plateaux Calcaires, Semi-intensive, Stockage 40, Fibre coco et Extensive. Une corrélation inverse des concentrations avec l'âge des toitures n'est cependant visible que pour les trois dernières (coefficient de Pearson de -0,8). L'observation des concentrations au cours du temps des trois autres toitures montrent la même tendance de stagnation des concentrations en sortie de ces structures (Figure 39). Les concentrations obtenues en 2012, période pendant laquelle l'écoulement en sortie de toitures était libre, ont également été comparées à celles obtenues sur les années 2011 et 2013, durant lesquelles une lame d'eau était retenue en toiture. Aucun impact significatif des modifications de ces conditions expérimentales n'a alors été identifié sur les concentrations en sortie des différentes toitures.

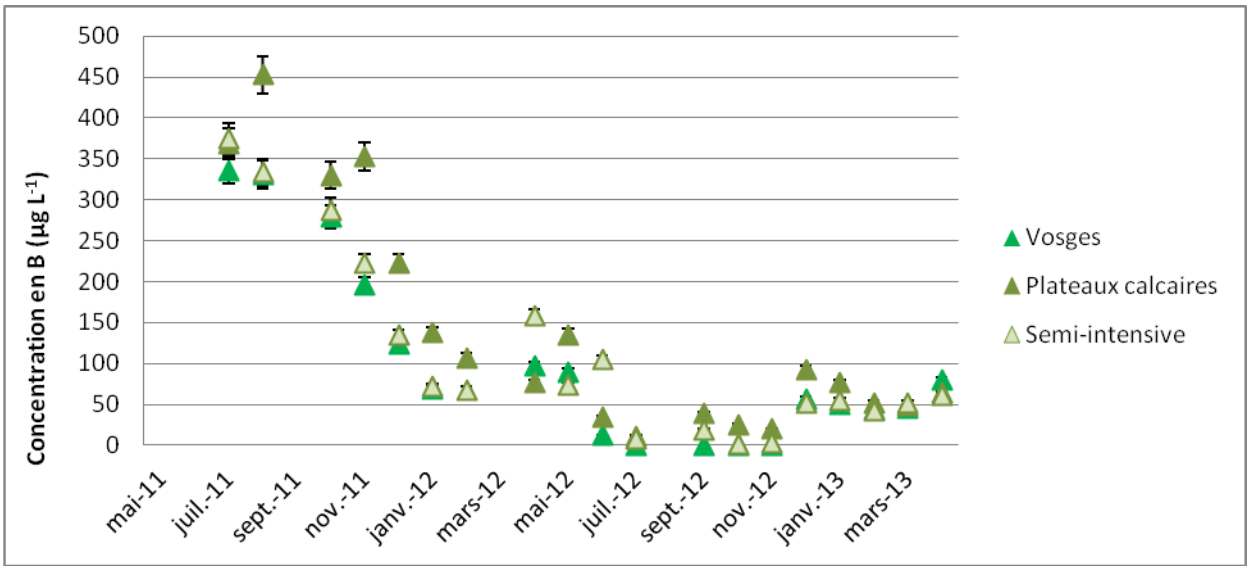


Figure 38 – Diminution des concentrations totales en B en sortie des toitures végétalisées Vosges, Plateaux calcaires et Semi-intensive entre mai 2011 et avril 2013

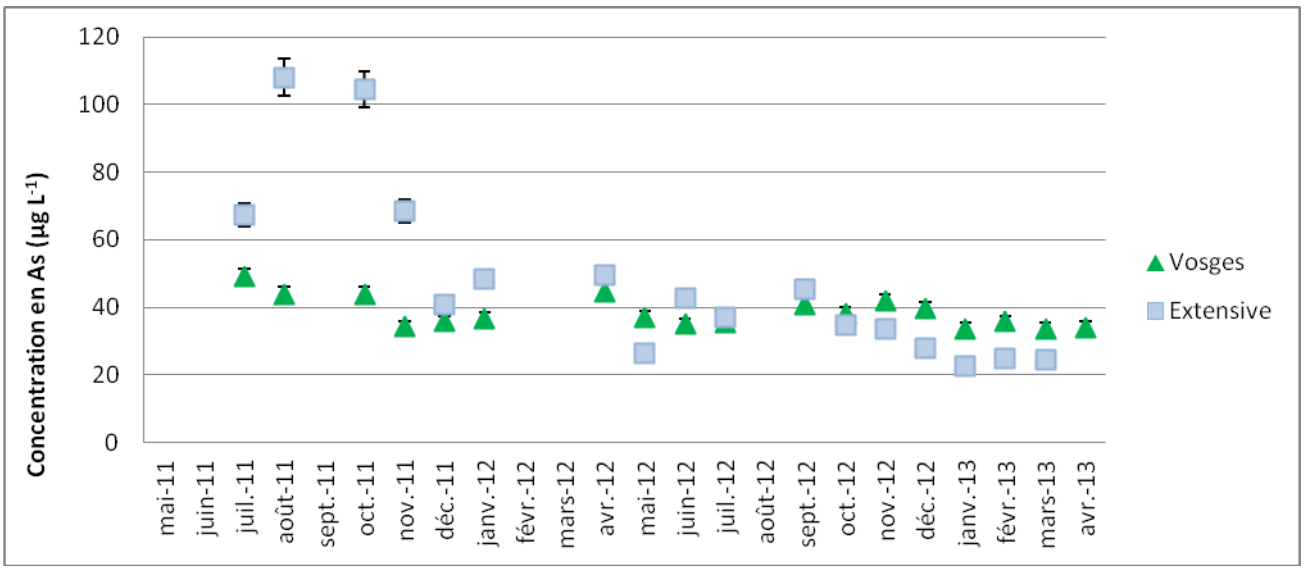


Figure 39 – Comparaison de l'évolution des concentrations totales en arsenic en sortie des toitures végétalisées Vosges et Extensive entre mai 2011 et avril 2013

Les corrélations entre concentrations en sortie des toitures végétalisées et concentrations avec la toiture témoin ont également été calculées. Il s'agissait d'identifier d'éventuels rejets liés strictement à la structure de la toiture. Une corrélation élevée a été observée pour Cd sur les derniers mois de l'expérimentation (entre décembre 2012 et avril 2013). Les concentrations en Cd en sortie des toitures ont d'ailleurs tendance à augmenter avec le temps voire à dépasser les concentrations entrantes dans cette période (Figure 40).

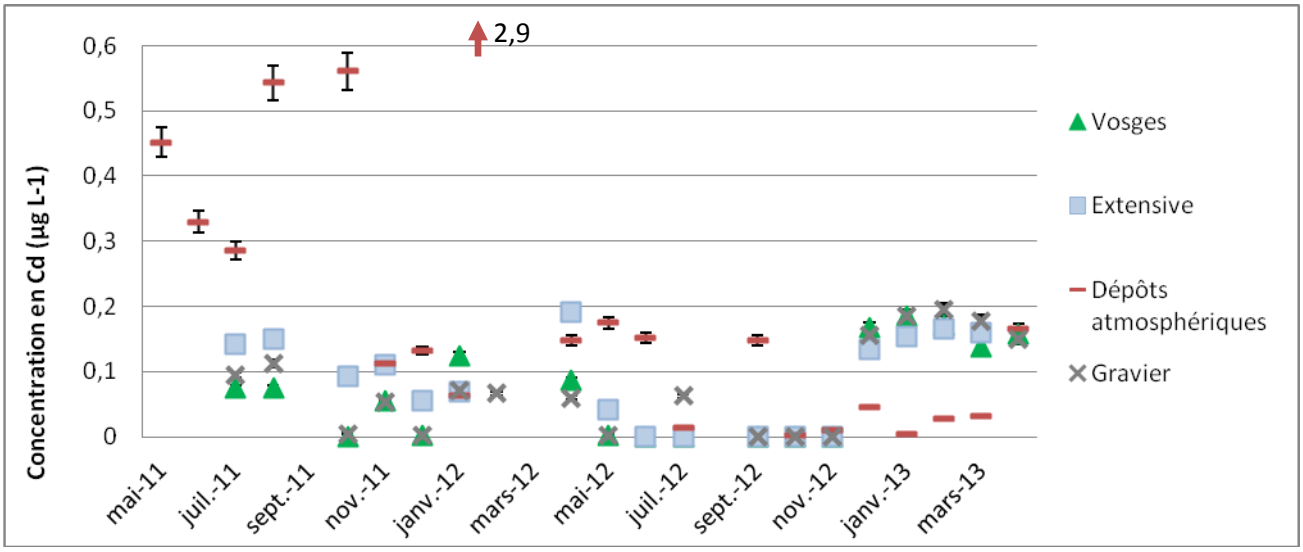


Figure 40 - Comparaisons des concentrations totales en cadmium dans les dépôts atmosphériques et les eaux en sortie des toitures Vosges, Extensive et Graviers

2.3 Flux

Tout comme les concentrations, les flux en sortie de toiture sont très différents selon les toitures et les ETM considérés (Figure 41). Des tendances globales se dégagent cependant pour certains ETM. Ainsi, une diminution des flux de Cd, Cr, Cu, Pb, Sb et Zn est observée à la sortie de l'ensemble des toitures. La capacité de rétention en Zn reste cependant moins importante que pour les autres ETM. A l'inverse, toutes les toitures présentent des flux d'As plus importants en sortie qu'en entrée, et particulièrement les toitures Fibre coco, Extensive, Vosges, Plateaux calcaires et Semi-intensive. Pour B et Ni, les résultats dépendent des structures. Une diminution des flux de B en sortie est visible sur les toitures Stockage 40, Fibre coco, Extensive et Graviers et de Ni pour les toitures Graviers, Plateaux calcaires et Vosges. Enfin, les flux en sortie de la toiture témoin en gravier sont du même ordre de grandeur que ceux issus des toitures végétalisées.

Les ordres de grandeur de ces flux rapportés à une année sont comparables à ceux observés sur les toitures expérimentales recensées dans la bibliographie (Tableau 4) pour Zn et Pb. Les flux sont légèrement supérieurs pour Zn sur les toitures expérimentales du Laboratoire de Nancy, peut-être en lien avec les zingueries neuves posées sur les murs entourant les toitures en même temps que la construction de ces parcelles, et inférieures pour Pb. Les flux de Cu issus de ces toitures sont par contre significativement inférieurs à ceux recensés dans la littérature notamment pour des toitures disposant d'une gouttière en Cu (Czemiel Berndtsson *et al.*, 2005 et 2006).

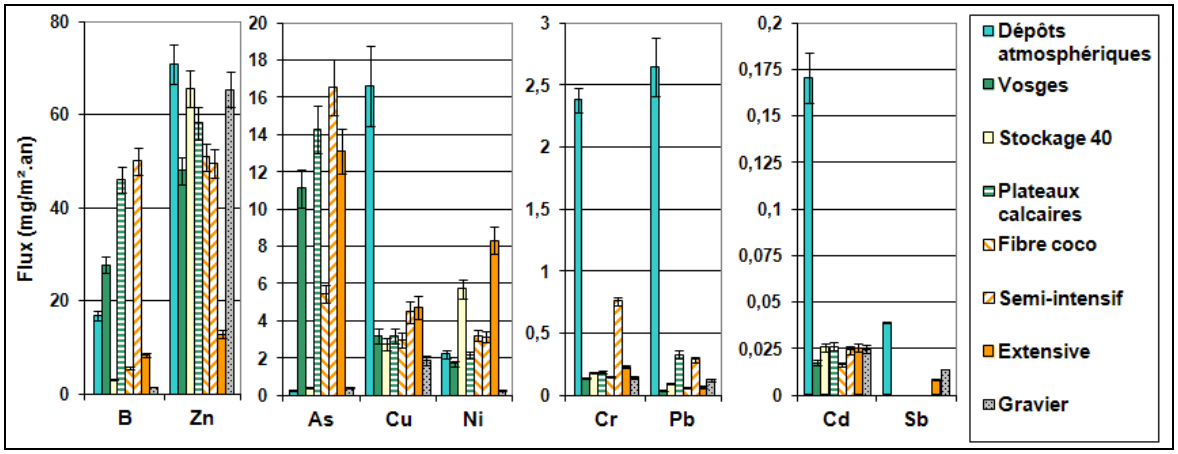


Figure 41 – Comparaison des flux d'ETM moyen annuel en entrée et sortie des différentes toitures

Les capacités épuratoires de ces structures ont été calculées pour chaque année et en moyenne sur la période de suivi 2011-2013 (Tableau 30). La capacité épuratoire diminue entrainant une augmentation des rejets des ETM durant l'année 2012, période durant laquelle le dispositif de rétention d'eau en toiture n'était pas présent. Afin, d'estimer l'évolution des capacités épuratoires par les structures au cours du temps, seuls les résultats obtenus sur les années 2011 et 2013 ont été comparés puisqu'ils présentent la plus grande période de temps avec des conditions expérimentales comparables.

Deux principales tendances d'évolution se dégagent. Tout d'abord pour les ETM présentant un abattement important des flux (Cd, Cr, Cu et Pb pour toutes les structures), les capacités épuratoires des différentes structures restent du même ordre de grandeur et importantes. Une diminution des rejets voire une légère diminution des flux en sortie par rapport à l'entrée (capacité épuratoire positive) est visible en 2013 pour B et Ni en sortie de l'ensemble des structures qui présentent en moyenne une augmentation des flux en sortie par rapport à l'entrée (Vosges, Plateaux calcaires et Semi-intensive pour B ; Stockage 40, Fibre de coco, Semi-intensive et Extensive pour Ni). Enfin une tendance spécifique aux toitures Vosges, Plateaux calcaires et Semi-intensive est également enregistrée pour Zn, avec une diminution de la capacité épuratoire au cours du temps. La capacité épuratoire pour Ni diminue et s'accompagne d'un léger rejet en 2013. Enfin, une amélioration significative de la capacité de rétention de B par les toitures Fibre coco et Extensive est observée entre 2011 et 2013.

Les capacités épuratoires des différentes structures sur les phases dissoutes et particulaires sont considérées séparément (Tableau 31). Les ETM dont les flux sont plus importants en sortie qu'en entrée de toitures végétalisées (As pour l'ensemble des structures, sauf Fibre coco, B pour la semi-intensive et Ni pour Stockage 40, Fibre coco et Extensive) sont exclusivement apportés par la phase dissoute. Une autre tendance générale se dégage : la forte capacité épuratoire de l'ensemble des structures sur la phase particulaire des ETM étudiés. As se comporte toutefois différemment sur les toitures Fibre coco, Semi-intensive et Extensive. Ceci explique les capacités de rétentions globales importantes 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. Les différences globales observées proviennent donc essentiellement de la variabilité des capacités épuratoires sur la phase dissoute. 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 toitures Fibre coco, Semi-intensive et Extensive montrent des capacités épuratoires plus importantes que celle de Stockage 40 (de 0,63 à 0,90 contre 0,24). Les capacités épuratoires sur la phase dissoute pour Cr sont moyennes (entre 0,4 et 0,6) et variables selon les structures.

Tableau 30 - Evolutions des capacités épuratoire des différentes toitures de 2011 à 2013 et moyenne sur cette période

Toiture	Période considérée	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Sb	Zn
Vosges	***2011***	-49,76	-2,07	0,96	0,94	0,91	0,55	0,98	1,00	0,53
	2012	-72,64	-4,12	0,71	0,93	0,53	-0,74	0,99	Sans objet*	-0,10
	2013	-6,54	0,87	0,96	0,96	0,88	0,49	1,00	Sans objet*	0,51
	Moyenne	-42,30	-0,64	0,90	0,94	0,81	0,23	0,99	1,00	0,32
Stockage 40	***2011***	-0,44	0,91	0,88	0,94	0,92	-1,67	0,95	1,00	0,12
	2012	-1,92	0,30	0,68	0,91	0,64	-2,02	0,96	Sans objet*	-0,07
	2013	0,50	0,85	0,92	0,94	0,81	0,21	0,98	Sans objet*	0,04
	Moyenne	-0,62	0,82	0,85	0,92	0,84	-1,60	0,96	1,00	0,07
Plateaux calcaires	***2011***	-56,76	-3,93	0,89	0,95	0,91	0,48	0,65	1,00	0,44
	2012	-88,72	-7,87	0,62	0,88	0,57	-1,10	0,93	Sans objet*	-0,33
	2013	-19,39	0,75	0,93	0,97	0,81	-0,19	1,00	Sans objet*	0,34
	Moyenne	-54,57	-1,72	0,85	0,92	0,81	0,03	0,88	1,00	0,18
Fibre coco	***2011***	-34,17	0,39	0,95	0,94	0,90	-0,69	0,95	1,00	0,64
	2012	-26,80	0,11	0,77	0,92	0,59	-0,20	0,98	Sans objet*	-0,32
	2013	-2,46	0,94	0,94	0,98	0,89	0,55	1,00	Sans objet*	0,05
	Moyenne	-20,23	0,67	0,90	0,94	0,82	-0,46	0,98	1,00	0,28
Semi-intensive	***2011***	-86,43	-5,08	0,93	0,92	0,83	0,19	0,96	1,00	0,52
	2012	-91,32	-6,07	0,66	0,39	0,44	-2,16	0,87	Sans objet*	-0,04
	2013	-17,38	0,73	0,91	0,94	0,83	-0,08	0,87	Sans objet*	0,01
	Moyenne	-63,41	-1,96	0,86	0,68	0,73	-0,42	0,89	1,00	0,30
Extensive	***2011***	-84,30	0,08	0,85	0,91	0,79	-3,75	0,97	0,79	0,86
	2012	-65,62	-0,16	0,68	0,89	0,48	-1,24	0,97	Sans objet*	0,76
	2013	-7,17	0,89	0,94	0,93	0,85	0,28	1,00	Sans objet*	0,72
	Moyenne	-50,13	0,51	0,85	0,90	0,72	-2,78	0,98	0,79	0,82
Gravier	***2011***	-1,34	0,85	0,89	0,96	0,92	0,90	0,93	0,64	0,44
	2012	-1,04	0,69	0,59	0,91	0,77	0,80	0,95	Sans objet*	-0,64
	2013	0,88	0,99	0,96	0,99	0,95	0,97	1,00	Sans objet*	0,28
	Moyenne	-0,44	0,92	0,85	0,94	0,89	0,88	0,95	0,64	0,08

* Flux nul en entrée et en sortie.

Tableau 31 - 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

2.4 Discussion : une capacité épuratoire effective pour certains ETM

Les toitures végétalisées : une solution à la problématique des pluies acides ?

Le passage dans les différentes structures et en particulier celles disposant d'argile expansée **augmente** fortement **le pH** des eaux. La comparaison de bacs expérimentaux avec et sans végétaux a permis de montrer que la présence de certains sedums comme *S. mexicanum* pouvait permettre de neutraliser le pH (Vijayagaraghavan *et al.*, 2012). Mis à part au mois de mai 2012 dont les conditions pluviométriques étaient très spécifiques (Partie III paragraphe 1.1), tous les mois au moins une des parcelles végétalisées **dépasse le seuil** supérieur de pH de 8,2 **définissant le « bon état d'une masse d'eau »** dans l'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. Rappelons toutefois que le pH des eaux de pluie sur ce site expérimental est plus élevé que ce qui est généralement observé dans des milieux comparables. La capacité de certains matériaux à augmenter le pH des eaux issues de toitures végétalisées peut cependant être **mise à profit sur les territoires soumis à des retombées de pluies acides** comme souligné par Czemiel Berndtsson *et al.* (2009) et Vijayagaraghavan *et al.* (2012). De plus, un pH élevé favorise l'immobilisation des métaux (Partie III paragraphe 1.2.3).

Des concentrations comparables à celles de toitures classiques

Afin d'évaluer l'intérêt de la végétalisation sur la qualité des eaux pluviales, il est important de **comparer les concentrations en ETM** obtenues à celles définies par la **réglementation** du domaine (Tableau 5 p. 38) et aux concentrations présentes dans les eaux issues de **toitures classiques** (Tableau 4 p. 36). **Quatre tendances** principales se dégagent en comparaison avec la réglementation. Les concentrations dans les phases dissoutes de ces toitures **dépassent** systématiquement ou presque les **seuils de la DCE.** Ils sont parfois supérieurs à ceux relatifs aux eaux douces superficielles utilisées pour la production d'eaux potables pour **As** (en particulier les toitures Plateaux calcaires et Extensive) et **Ni**, surtout pour les toitures Fibre coco, Stockage 40 et Extensive. D'ailleurs ces concentrations en Ni sont également supérieures à celles qui peuvent être observées en sortie de toitures classiques. Pour As, aucune référence bibliographique fournissant des concentrations en sortie de toitures n'a pu être identifiée. Cependant la World Health Organization préconise la récupération et l'utilisation d'eaux de pluie issues des toitures comme ressource en eau dans les pays dont les masses d'eaux sont fortement contaminées en As. Or ce même organisme a fixé des seuils de potabilité à 10 µg L^{-1} pour As (Sharma *et al.*, 2014). Les concentrations dans les eaux de toitures doivent donc être majoritairement inférieures à ce seuil et par conséquent à ce qui a été trouvé en sortie de certaines toitures végétalisées expérimentales. Il est à noter également que les concentrations en Ni dans les dépôts atmosphériques dépassent également ponctuellement les seuils de la DCE. Pour **Cu et Zn**, les **seuils** de la DCE sont systématiquement **dépassés** aussi bien dans les **dépôts atmosphériques** que dans les eaux en sortie de toitures mais les concentrations observées sont compatibles avec les autres réglementations. Ces concentrations en Zn sont du même ordre de grandeur que celles observées sur des toitures classiques et celles en Cu plutôt inférieures. Pour **Cd et Pb**, les concentrations maximales **dépassent ponctuellement la NQE** Maximale admissible de la DCE en particulier pour les toitures Stockage 40, Plateaux calcaires et Semi-intensive pour Pb. Par rapport à des toitures classiques, les concentrations en Cd sont dans la même gamme et celles en plomb significativement inférieures. Enfin, les concentrations en **B et en Cr** sont **compatibles avec les réglementations** qui leurs sont associées même si les concentrations observées peuvent être supérieures à celles de toitures classiques notamment pour Cr avec certaines toitures comme Vosges, Plateaux calcaires et Semi-intensive. Ainsi, selon les paramètres et les structures expérimentales, les **toitures végétalisées** peuvent présenter des **concentrations inférieures ou supérieures à celles de toitures classiques**. Ceci peut être à prendre en compte dans le cas d'un rejet dans un milieu naturel ou d'un usage spécifique pour lesquels des concentrations élevées en un ETM spécifique pourraient être problématique. En outre, comme pour les toitures classiques, les seuils de la DCE sont fréquemment dépassés, montrant la nécessité d'améliorer la qualité de ces eaux dans un contexte de gestion à la source des eaux pluviales.

Des diminutions de flux significatives pour certains ETM, des augmentations non négligeables pour d'autres

La mesure des flux en entrée et sortie de toiture permet de calculer ce qui a été retenu ou apporté par les matériaux de la toiture. L'ensemble des structures présentent des **capacités de rétentions importantes** pour plusieurs ETM comme **Cr, Cd, Cu, Pb, Sb et Zn**. D'ailleurs les flux observés pour Cd, Cu et Pb sont significativement inférieurs à ceux observés par Robert-Sainte (2009) sur des planches expérimentales représentant différents types de toits classiques. Les fortes capacités épuratoires sur la phase particulaire associée à la diminution des concentrations en MES observées dans les eaux en sortie de toiture semblent indiquer que ces structures permettent une **filtration mécanique des particules** arrivant dans le système. Cette hypothèse est corroborée par le fait que, dans les filtres plantés également, le mécanisme de dépollution prépondérant est la rétention de la phase particulaire polluée par décantation (Walker *et al.*, 2002). Ensuite, pour les éléments en phase dissoute, deux mécanismes différents peuvent avoir lieu voire se combiner. Les matériaux peuvent présenter une affinité, et donc une capacité épuratoire, plus ou moins importante selon les espèces. Ils peuvent également être responsables d'une émission d'ETM en quantité inférieure à celle qu'ils ont retenue par rapport au flux apporté par l'atmosphère.

Des rejets de certaines substances ont également été identifiés et l'observation des caractéristiques communes à ces structures permet d'établir que **sur ces toitures expérimentales** :

- La présence d'**argile expansée** a induit une **émission d'As** de l'ordre de 20 à 26 mg m^{-2} sur deux ans pour certaines structures
- La présence du **substrat semi-intensif** a induit une **émission de B** de l'ordre de 55 mg m^{-2} sur deux ans
- La présence des **substrats extensif et fibre de coco** a induit une **émission de Ni**, qui a atteint 11 mg m^{-2} sur deux ans pour l'une des toitures.

Dans une moindre mesure, d'autres émissions d'ETM, compensées par une rétention plus importante des polluants atmosphériques entrant induisant une capacité épuratoire globale, peuvent également être observées comme B par le substrat extensif. Une diminution des rejets au cours du temps de ces différents ETM a cependant été observée aussi bien au niveau des concentrations que des flux pour quasiment l'ensemble des structures, laissant supposer qu'au bout de quelques années, le stock d'éléments disponibles sera épuisé et que ces matériaux n'émettront plus ces ETM.

En outre, des **ETM peu mobiles** au début de la vie de la toiture semblent cependant **devenir plus disponibles au cours du temps**. Les toitures disposant du substrat semi-intensif présentent une réduction moindre des apports d'As que celles composées de substrats extensifs ou fibre de coco. Ainsi, il semblerait que ce substrat commence à émettre certaines substances comme As ou encore Ni et Zn après deux années de vie de la toiture comme l'indique les diminutions des capacités épuratoires au

cours du temps. Enfin, l'augmentation des concentrations en Cd sur les derniers mois peut indiquer un début d'émission de cet ETM par l'un des matériaux constitutifs des toitures non associés à leur végétalisation comme par exemple les couvertines, les gouttières ou encore l'étanchéité.

Ces résultats montrent ainsi que, contrairement à ce qui a été indiqué par Czemiel Berndtsson (2010), certains matériaux utilisés en toiture végétalisée peuvent se révéler comme **des sources significatives de polluants métalliques transportés par les eaux pluviales**. **L'évolution de la mobilité** de ces ETM au cours du temps montre l'importance d'**étudier** ces structures **sur le long terme** afin de voir si le vieillissement des matériaux n'induit pas des rejets étalés dans le temps de différentes substances.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Il est important de noter que les flux en sortie de la toiture témoin en gravier sont comparables voire moins importants que ceux de certaines toitures végétalisées. Cependant, pour la majorité des éléments, il existe au moins une structure ayant une capacité épuratoire plus performante que celle de la toiture disposant d'un revêtement classique. En sélectionnant les matériaux adaptés, il doit donc être possible de développer des toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées.

Une attention particulière doit être portée à l'affinité des matériaux pour les éléments en phase dissoute. Celle-ci doit être importante afin d'améliorer la capacité épuratoire globale de l'ensemble des ETM et notamment pour ceux fortement présents en phase dissoute en entrée.

Les matériaux permettant d'augmenter durablement le pH doivent également être favorisés afin de limiter la mobilité des ETM apportés par l'atmosphère voire par les matériaux. Celui-ci ne doit cependant pas atteindre des valeurs qui pourraient avoir un impact négatif sur un milieu naturel sensible, dans le cas d'un rejet direct au milieu par exemple.

La capacité de rétention d'eau d'une structure végétalisée est souvent identifiée comme l'un des principaux paramètres influençant la qualité des eaux issues de ces structures (Steusloff, 1998 ; Czemiel Berndtsson, 2010). Ici nous démontrons que les dispositifs de stockage d'eau en toiture ont un effet sur les flux d'ETM mais pas sur les concentrations. Cela indique donc que ce système influence la capacité de rétention des polluants essentiellement d'un point de vue hydrodynamique en diminuant le volume écoulé et donc la quantité de métaux rejetés à concentration constante.

Il est important de veiller à choisir des matériaux ne rejetant pas d'ETM. Même si la fonction d'épuration des eaux de pluie n'est pas celle recherchée lors de la construction de la structure, ce critère devient important dans un contexte de récupération et d'utilisation des eaux. D'une façon plus générale, la limitation des impacts potentiels sur les milieux naturels devrait devenir prioritaire si la technique venait à se généraliser.

Conclusion

Les apports atmosphériques d'ETM aux toits végétalisés expérimentaux sont dans la même gamme que pour d'autres milieux périurbains en France. Les apports anthropiques liés à l'ajout d'engrais lors de l'introduction des végétaux est une source potentielle d'ETM à ne pas négliger, en particulier si ces apports sont fréquents comme préconisés par les règles professionnelles. D'un point de vue physico-chimique, le pH en sortie de structure est plus élevé qu'en entrée. Ce phénomène contribue à contrôler les effets des pluies acides. Les concentrations en sortie des structures végétalisées sont parfois inférieures à celles de toitures classiques. Elles peuvent, à l'inverse, être supérieures, selon les structures et les ETM. Les valeurs observées sur certaines structures sont supérieures au seuil défini par la DCE. Une diminution des flux a été observée pour plusieurs ETM sur l'ensemble des structures : Cr, Cd, Cu, Pb, Sb et Zn. Certains matériaux se sont comportés comme des sources potentielles d'As, Ni et B. Les émissions semblent toutefois évoluer au cours du temps et débuter à différentes périodes de la vie de la toiture. Afin de comprendre les mécanismes ayant engendré ces phénomènes de rejets et rétentions d'ETM, il est nécessaire d'étudier l'évolution des structures végétalisées sous l'action des précipitations et des apports de polluants atmosphériques.

PARTIE IV

EVOLUTION DES STRUCTURES

Cette partie est dédiée à l'observation de l'évolution des structures végétalisées au cours des deux années pendant lesquelles des prélèvements d'eau ont été réalisé et essentiellement dans le cadre de prélèvements effectués en avril 2013. Le premier chapitre s'attache à l'observation des caractéristiques globales des différents matériaux à l'échelle de la parcelle. Grâce à des observations aux échelles méso- et microscopiques, le second chapitre permet de mettre en avant les interactions entre les végétaux et le substrat.

Chapitre 1 : Approche globale par parcelle

Peu d'informations sur l'évolution des caractéristiques de structures végétalisées sont disponibles à ce jour. Les règles professionnelles françaises (ADIVET *et al.*, 2007) donnent toutefois des indications concernant le développement attendu au niveau du pourcentage de recouvrement par la végétation sur les deux premières années de vie de la toiture. Une étude menée dans un contexte de culture de plantes médicinales et potagères a montré une tendance à l'augmentation au cours du temps des concentrations en ETM dans les végétaux notamment en lien avec les teneurs élevées dans le substrat (Ye *et al.*, 2013). Les teneurs dans les végétaux étaient cependant très faibles en comparaison de celles du substrat sauf pour Zn. Des variations significatives des teneurs en Ni et Cd dans le substrat ont également été enregistrées, expliquées partiellement par les apports atmosphériques industriels. Une autre étude sur les teneurs en ETM d'une toiture âgée de plusieurs années à différentes épaisseurs de la structure montre une absence de variation significative des teneurs avec la profondeur (Speak *et al.*, 2014). Les caractéristiques initiales des substrats n'étant pas disponibles, il n'est pas possible de conclure quant à leur évolution.

La réalisation des prélèvements de végétaux et de substrats à différentes périodes des trois premières années de vie des toitures végétalisées expérimentales du Laboratoire de Nancy nous a permis d'obtenir des informations plus précises sur les évolutions rencontrées dans les structures de toitures végétalisées au cours du temps.

1.1 Végétaux

1.1.1 Développement des végétaux sur les différentes parcelles

Le développement de la végétation sur les différentes parcelles a été rapide durant le printemps et l'été de la première année, avec un pourcentage de recouvrement atteignant les 60 % pour l'ensemble des toitures en août 2011. L'année suivante, un recouvrement de 80 % a été obtenu, objectif à atteindre en 2 ans environ pour une plantation en micro-mottes (ADIVET *et al.*, 2007). Ce taux a été atteint en août 2012 sur l'ensemble des toitures quel que soit le mélange de végétaux considéré (Figure 42). En fin d'expérimentation, les plantes les plus présentes sont des sedums de différentes espèces, essentiellement *S. album*, *S. reflexum, S. floriferum et S. spurium* (Figure 43).

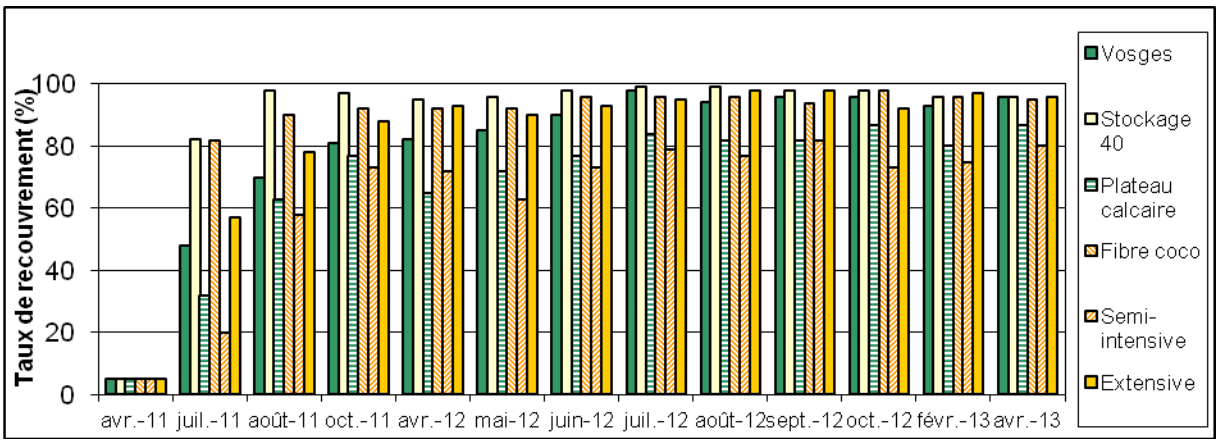


Figure 42 - Evolution du pourcentage de recouvrement par la végétation des différentes toitures d'avril 2011 à avril 2013

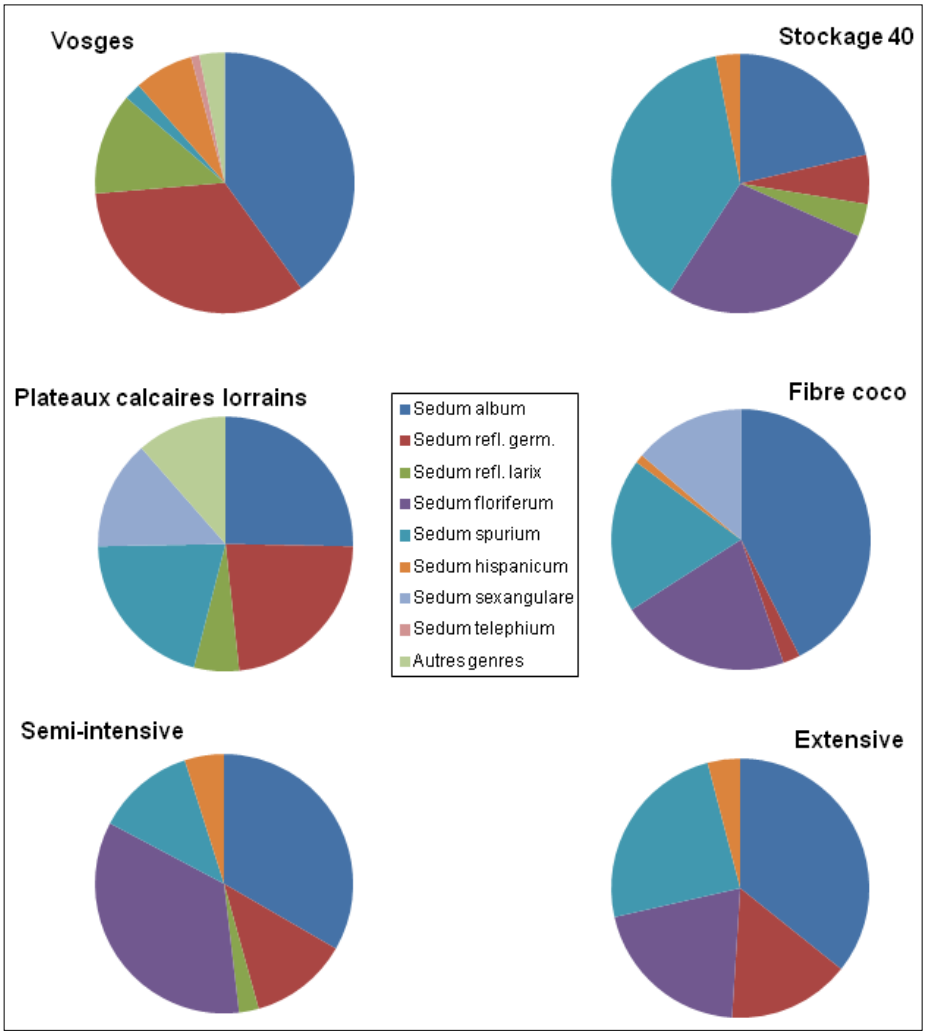


Figure 43 - Part des différents végétaux dans le recouvrement des toitures végétalisées en avril 2013

La hauteur et le diamètre des végétaux permettent d'estimer la biomasse présente sur la toiture. Les évolutions de ces deux paramètres sont représentées pour *S. reflexum g.* avec les quatre modalités différentes d'associations des trois substrats et deux drainages (Figure 44). Les tendances sont les

mêmes pour le *S. album*. Ainsi, la quantité de biomasse varie surtout en été pour ces deux sedums, avec des hauteurs et diamètres maximaux des plants rencontrés en juillet. Entre les mois d'avril et octobre, les variations de hauteur et diamètre de ces sedums sont relativement faibles.

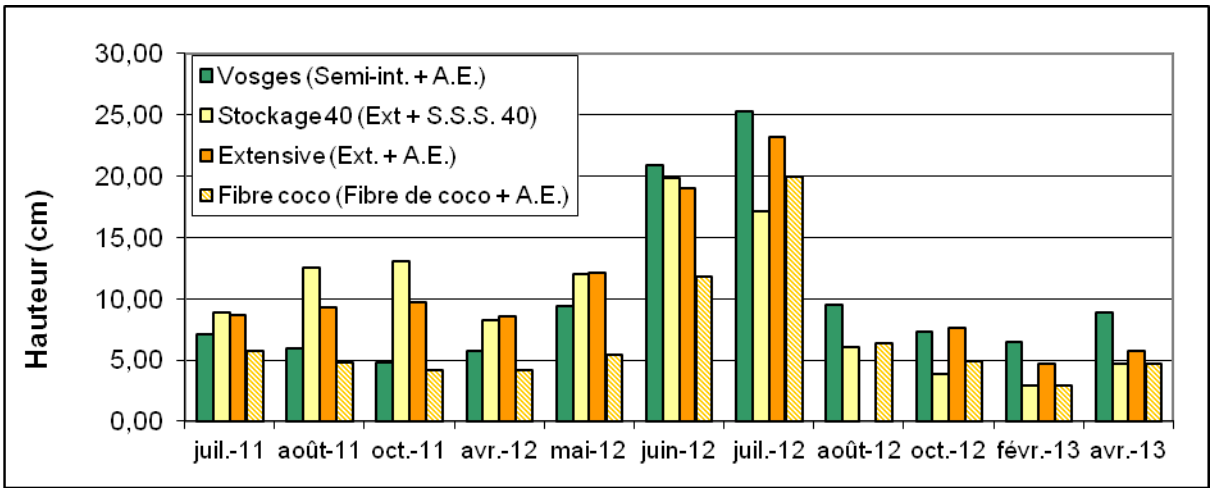


Figure 44 - Evolution de la hauteur moyenne des plants de* S. reflexum germanium *selon les associations de substrats et drainages de juillet 2011 à avril 2013

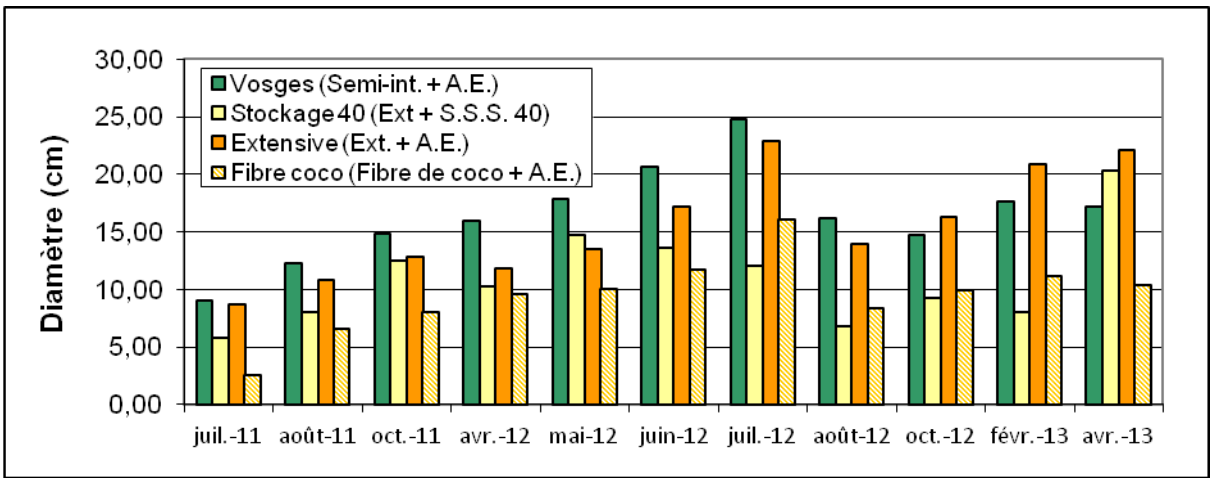


Figure 45 - Evolution du diamètre moyen des plants de* S. reflexum germanium *selon les associations de substrats et drainages de juillet 2011 à avril 2013

1.1.2 Teneurs en ETM

Le rapport teneur parties aériennes / teneur parties souterraines ne présente pas d'évolution significative pour les différents ETM dans les *S. album et S. reflexum g*. Il reste inférieur à un pour l'ensemble de ces éléments sauf pour B, comme remarqué dans les teneurs initiales avant introduction sur les toitures expérimentales (Partie II paragraphe 1.1.1). C'est pourquoi seules seront présentées par la suite les évolutions des teneurs dans les racines de ces végétaux.

Pour les six toitures végétalisées et les deux sedums, deux ETM, Cd et Sb, présentent une forte diminution voire une disparition une fois installés sur les toitures expérimentales dès le premier prélèvement sur site d'octobre 2011. Concernant Sb, seules les parties aériennes de *S. album* présentent des teneurs ponctuellement non nulles mais très faibles sur deux toitures (Vosges et semi-intensive) dans l'ensemble des prélèvements de *S. album* et *S. reflexum g.* réalisés au cours de l'étude. Cet ETM ne sera donc pas étudié par la suite. Ensuite différentes tendances se dégagent selon les substrats et végétaux considérés. Les teneurs de As dans *S. album* diminuent au cours du temps sur l'ensemble des substrats alors qu'elles augmentent significativement dans *S. reflexum g.* sur le substrat semi-intensif (Figure 46 a, b et c). A l'inverse, les teneurs en Pb augmentent dans les racines de *S. album,* alors qu'elles sont constantes pour *S. reflexum g*. Pour ce dernier, les teneurs en Zn et Ni augmentent fortement en octobre 2011 sur l'ensemble des toitures sauf la toiture extensive. Il en est de même pour *S. Album* sur le substrat semi-intensif avec Zn également avec ensuite des diminutions variables selon les structures considérées. D'autres éléments comme Cr pour *S. album* et Cu pour *S. reflexum g.* montrent une forte augmentation des teneurs en avril 2012 sur substrat semi-intensif puis une diminution par la suite.

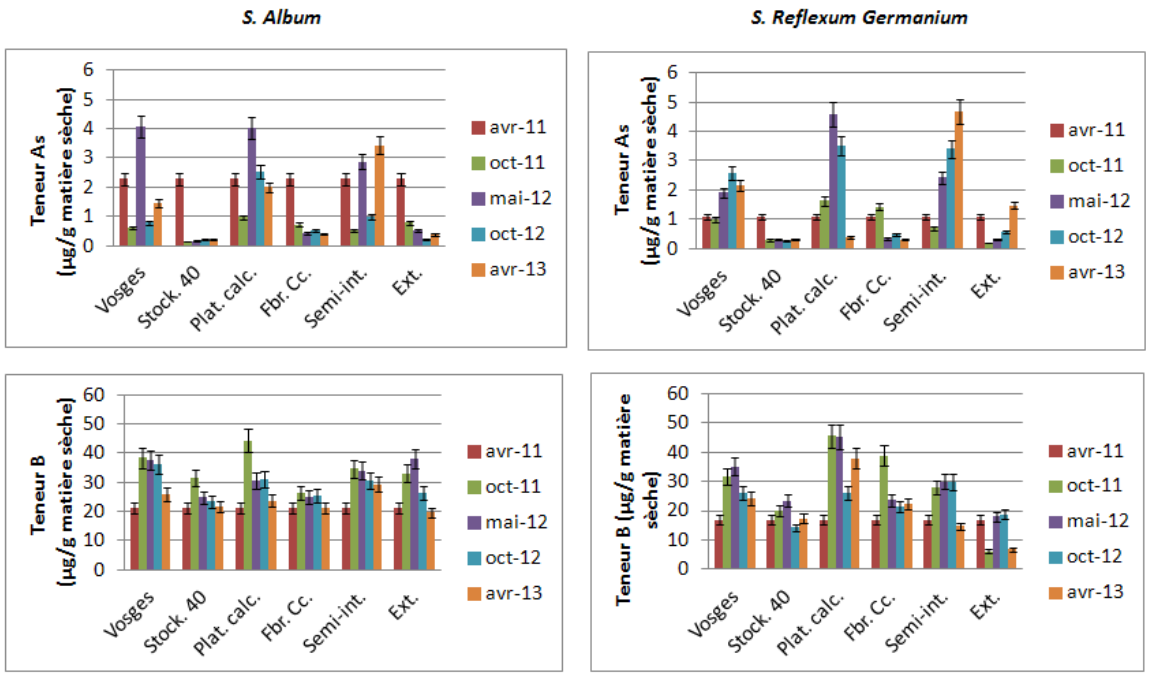


Figure 45.a – Evolution des teneurs en ETM dans les* S.album *et* reflexum g. *sur les différentes parcelles végétalisées d'avril 2011 à avril 2013

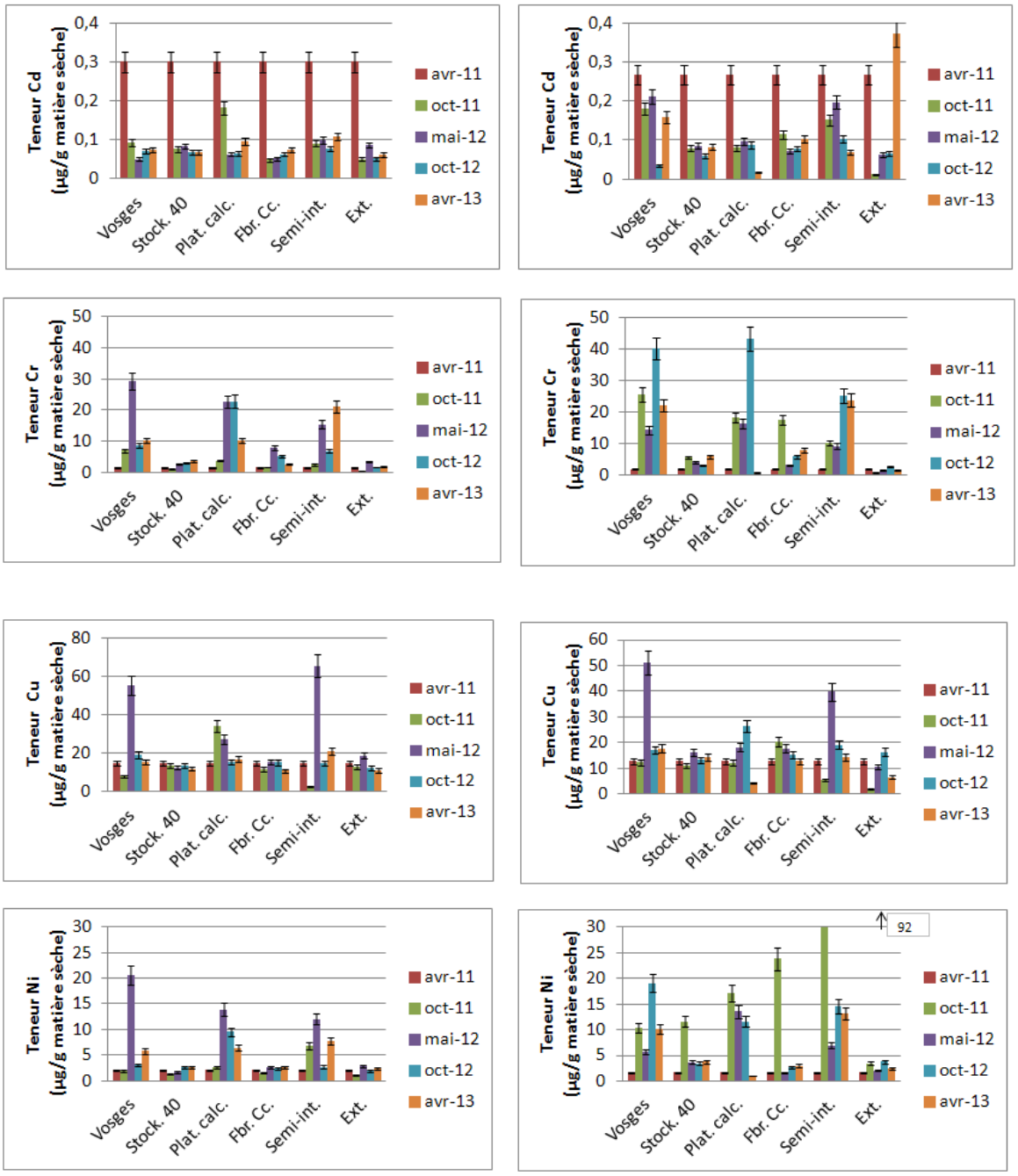


Figure 45.b – Evolution des teneurs en ETM dans les* S.album *et* reflexum g. *sur les différentes parcelles végétalisées d'avril 2011 à avril 2013

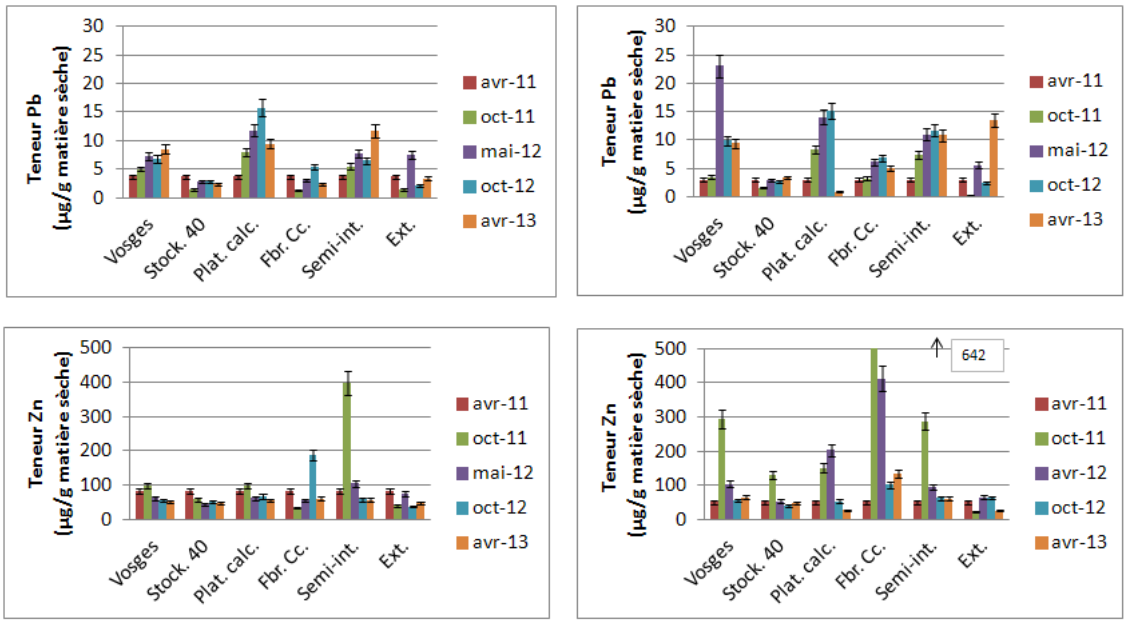


Figure 46.c – Evolution des teneurs en ETM dans les* S.album *et* reflexum g. *sur les différentes parcelles végétalisées d'avril 2011 à avril 2013

Concernant les variations saisonnières, les teneurs sont légèrement plus élevées à l'automne dans les parties aériennes du *S. reflexum g.* pour As et B sur les toitures des Fibre coco, Vosges et Extensive et sur B pour les deux dernières avec le *S. album*. La même tendance est observée sur les racines du *S. reflexum g.* sur la toiture des Vosges pour Cr et sur cette toiture ainsi que la toiture des Plateaux calcaires lorrains pour Ni. Celles-ci sont cependant beaucoup plus faibles que celles observées par Ye *et al.* (2013) et ne sont pas généralisables à l'ensemble des ETM considérés. La tendance inverse est observée pour plusieurs éléments sur différentes toitures avec les deux sedums : As pour le *S. album* sur toitures des Vosges et Semi-intensive, Pb pour les toitures contenant du substrat semi-intensif avec le *S. reflexum g.* et les toitures des Vosges, Semi-intensive et Extensive avec le *S. album*. L'élément accumulé pendant l'hiver dans les racines a peut-être été transféré au printemps et en été dans les parties aériennes et les inflorescences qui sécheront par la suite, mécanisme fréquent de protection des végétaux pour se débarrasser des métaux absorbés (Kamal *et al.*, 2004). En octobre, les inflorescences ont pour la plupart déjà séché et sont tombées, elles n'ont donc pas été analysées.

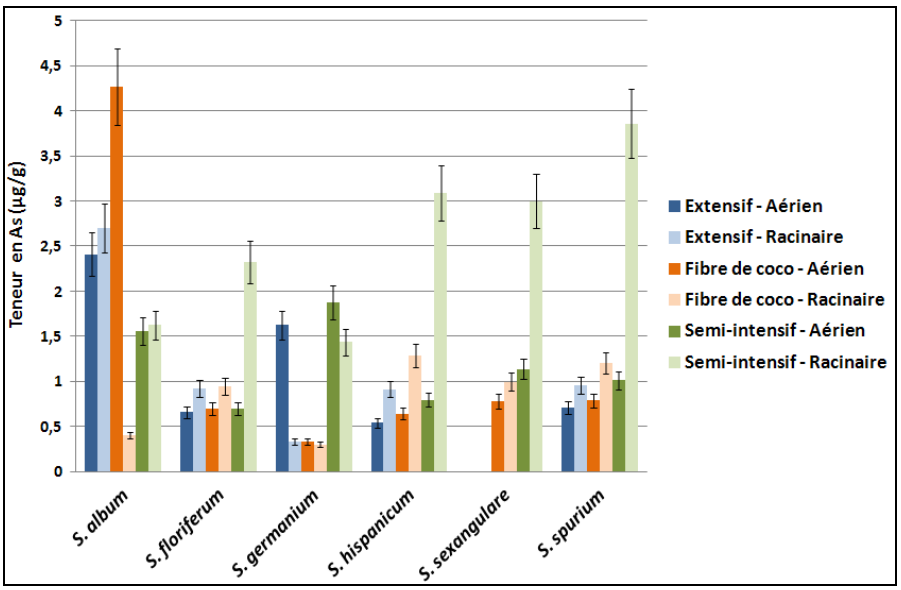


Figure 47 - Teneurs moyennes en As dans les principaux végétaux présents sur les toitures en avril 2013 selon les substrats

Les teneurs moyennes par substrat des différents éléments dans les six espèces de sedum prélevées en avril 2013 sont comparées. Les teneurs en Sb étant nulles dans l'ensemble des sedums prélevés en complément de *S. album* et *S. reflexum g*., l'étude de cet ETM dans les végétaux ne sera pas poursuivie. Pour les autres ETM, les teneurs moyennes par substrat dénotent une dépendance à la nature du substrat, plus particulièrement sensible dans la partie racinaire. Les teneurs en Cu et Ni sont notamment supérieures dans les végétaux ayant poussé dans le substrat semi-intensif pour plus de 50 % des espèces de sedum*s* considérées. Sur ce même substrat, les teneurs en As, Cd, Pb et Cr sont supérieures pour tous les sedums sauf *S. album* (Figure 47). Enfin, les teneurs en Zn sont plus importantes sur le substrat fibre de coco pour tous les sedum*s* sauf *S. sexangulare*. Les coefficients de Pearson établis entre les teneurs initiales dans les substrats et les teneurs racinaires dans chaque espèce de sedum pour ces différents substrats sont d'ailleurs proches de 1 pour *S. floriferum*, *hispanicum*, *sexangulare* et *spurium* pour l'ensemble des éléments sauf Cd et Zn, et ponctuellement Ni pour le *S. floriferum* (Tableau 32). Seul *S. album* semble avoir un comportement différent et présente des teneurs généralement plus importantes sur les substrats extensifs et fibre de coco que sur le substrat semi-intensif. Les coefficients de Pearson calculés comme précédemment sont d'ailleurs <0 pour l'ensemble des éléments sauf As et Cu. Il est toutefois à noter que cette espèce de sedum semblait rencontrer des difficultés à redémarrer son développement après l'hiver 2012-2013 contrairement aux autres, ce qui aurait peut-être pu influencer ponctuellement les mécanismes d'assimilation d'ETM mis en jeux.

Tableau 32 - Coefficients de Pearson entre les teneurs initiales en ET dans les substrats et les teneurs dans les racines des végétaux ayant poussés dans ces substrats, prélevés en avril 2013

Espèce de sedum	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
S. album racinaire	0,05	-0,84	0,00	-0,47	1,00	-0,15	-0,08	-0,98
S. floriferum racinaire	1,00	1,00	-0,19	0,98	0,99	-0,13	0,99	-0,98
S. germanium racinaire	1,00	-0,15	0,58	0,18	0,59	0,81	0,51	-0,64
S. hispanicum racinaire	0,99	0,98	0,00	1,00	0,97	1,00	0,98	-0,44
S. sexangulare racinaire	1,00	1,00	-1,00	1,00	-1,00	1,00	1,00	-1,00
S. spurium racinaire	1,00	0,96	0,24	0,91	0,97	0,39	0,91	-0,21

Tableau 33 - Ratio teneurs dans les végétaux / teneurs initiales dans les substrats

Substrat	Espèce de sedum	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Extensif	*S. album racinaire*	1,32	28,37	0,63	0,17	0,43	0,22	0,66	0,87
Fibre de coco	*S. album racinaire*	0,23	16,71	0,13	0,01	0,42	0,09	0,23	0,85
Semi-intensif	*S. album racinaire*	0,09	1,28	0,40	0,01	0,35	0,03	0,04	0,33
Extensif	*S. floriferum racinaire*	0,45	14,38	1,00	0,01	0,42	0,16	0,23	0,76
Fibre de coco	*S. floriferum racinaire*	0,53	11,22	0,20	0,01	0,48	0,11	0,18	0,76
Semi-intensif	*S. floriferum racinaire*	0,12	1,39	0,44	0,01	0,47	0,02	0,06	0,26
Extensif	*S. germanium racinaire*	0,16	25,38	0,21	0,00	0,18	0,04	0,10	1,24
Fibre de coco	*S. germanium racinaire*	0,17	17,54	0,18	0,04	0,49	0,11	0,51	1,88
Semi-intensif	*S. germanium racinaire*	0,08	1,93	0,48	0,01	0,30	0,03	0,05	0,52
Extensif	*S. hispanicum racinaire*	0,45	20,62	0,85	0,02	0,41	0,07	0,37	1,12
Fibre de coco	*S. hispanicum racinaire*	0,72	17,78	0,18	0,02	0,48	0,09	0,48	3,89
Semi-intensif	*S. hispanicum racinaire*	0,16	2,40	0,93	0,01	0,41	0,06	0,09	0,59
Extensif	*S. sexangulare racines*	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Fibre de coco	*S. sexangulare racinaire*	0,56	13,94	0,12	0,02	0,67	0,11	0,62	1,03
Semi-intensif	*S. sexangulare racinaire*	0,16	1,80	0,46	0,02	0,26	0,04	0,07	0,57
Extensif	*S. spurium racinaire*	0,47	12,89	1,01	0,01	0,96	0,36	0,12	0,53
Fibre de coco	*S. spurium racinaire*	0,68	11,72	0,28	0,04	0,63	0,15	0,46	1,42
Semi-intensif	*S. spurium racinaire*	0,21	1,59	0,81	0,02	1,18	0,07	0,09	0,41

Les ratios teneurs racinaires dans les végétaux en avril 2013 / teneurs initiales dans les substrats sont inférieures à 1 pour l'ensemble des végétaux et des ETM sauf pour B et Zn (

Tableau 33). Pour Pb sur le substrat semi-intensif, Cr et Ni, ce ratio est même inférieur à 0,1 pour la majorité des végétaux et substrats. Trois sedums présentent des teneurs significativement plus importantes que les autres pour un à deux ETM spécifiques. *S. spurium* présente par exemple des teneurs en Cu et Ni près de deux fois supérieures à celles des végétaux ayant les deuxièmes teneurs les plus élevées. La teneur moyenne en Cr dans le *S. album* est 2,7 fois supérieure à celle du *S. spurium* qui présente la deuxième teneur la plus élevée. Enfin, la teneur en Zn est 50 % plus importante dans le *S. hispanicum* que dans le sedum avec la deuxième plus forte teneur. L'ensemble de ces teneurs reste

cependant dans les mêmes gammes et aucun des sedums ne présente donc des capacités de rétentions de l'ensemble des ETM significativement plus élevées que les autres.

1.1.3 Discussion : des teneurs en ETM dans les végétaux fortement influencées par les teneurs des substrats

Pour la plupart des ETM, il existe une corrélation significative entre les teneurs dans les végétaux et la concentration initiale dans les substrats. Ainsi, les polluants adsorbés ne sont pas exclusivement issus de l'atmosphère mais proviennent aussi du stock initialement présent dans le matériau. En outre, une **variation de la quantité de biomasse** a pu être observée entre les périodes estivales et hivernales avec notamment le dessèchement des inflorescences après l'été. La décomposition progressive de cette matière organique pourrait conduire à une libération dans le substrat des ETM initialement stockés. Le **stockage dans la partie végétale** serait donc **cyclique**. Enfin, les évolutions de teneurs observées dans *S. album* et *S. reflexum germanium* au cours du temps, avec notamment des pics à certaines périodes, peuvent potentiellement indiquer une **variation de la biodisponibilité** des ETM présents dans les substrats, liée au vieillissement des matériaux.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Aucun des *sedums* utilisés sur ces toitures ne se distingue par ses capacités de rétentions d'ETM significativement plus importantes que les autres. Pour l'ensemble des végétaux, les teneurs en ETM observées dans l'ensemble des *sedums* analysés en avril 2013 sont très éloignées des critères de teneurs de l'ordre de 100 µg g^{-1} de Cd, 1000 µg g^{-1} de Ni, Cu et Pb ou encore 10 000 µg g^{-1} de Zn permettant d'identifier les espèces végétales hyperaccumulatrices (Baker *et al.*, 2000), comme *S. alfredii* (Wu *et al.*, 2007). S'il s'avérait que les capacités de rétentions des ETM par les végétaux de ces toitures expérimentales étaient arrivées à saturation, il pourrait être pertinent d'introduire des espèces avec de plus fortes capacités de stockage. Des études à plus long terme et sur des supports de cultures avec de plus fortes teneurs seraient nécessaires pour le déterminer. Par ailleurs, si la végétation était envisagée comme une nouvelle sortie du système possible pour les ETM apportés par l'atmosphère et présents dans le substrat, une réflexion serait nécessaire sur les pratiques d'entretien de ces toitures. En effet, un fauchage ou une tonte serait nécessaire pour éviter que les ETM présents dans les parties qui disparaîtront à l'automne ne se trouvent à nouveau dans le substrat voire emportés par les eaux une fois la matière organique décomposée. Enfin les capacités de rétention du mélange de plantes locales sont comparables à celles des mélanges classiques de toitures végétalisées, incitant ainsi à la prise en compte de cet aspect dans la conception de futures structures.

1.2 Evolution des caractéristiques des compartiments non végétaux

1.2.1 Caractéristiques physico-chimiques

Mis à part dans l'argile expansée, les trois substrats présentent une forte diminution de la teneur en matière organique sur l'ensemble des profils avec une tendance à la décroissance de la surface jusqu'au fond de la couche de substrat (Figure 48). Ces diminutions sont moins importantes dans le substrat semi-intensif que dans les autres substrats. Celui-ci, qui présentait les teneurs initiales les plus faibles offre, en fin d'expérience, une teneur parmi les plus élevées. La perte de masse est de l'ordre de 2 à 3 % pour le substrat semi-intensif, environ 5 % pour le substrat fibre de coco et 7 % pour le substrat extensif. Les substrats extensifs et fibres de coco présentent également une importante décroissance de la CEC par rapport à celles du substrat semi-intensif (Figure 48). La CEC et la teneur en matière organique sont fortement corrélées pour les toitures disposant du substrat extensif (coefficient de Pearson de l'ordre de 0,86). Pour les toitures avec substrat semi-intensif ce coefficient est plus faible (de l'ordre de 0,67). Enfin la corrélation reste limitée sur la toiture Fibre coco avec un coefficient de l'ordre de 0,48.

Une augmentation du pH est également visible dans l'ensemble des substrats ainsi que dans l'argile expansée dans la majorité des structures (Figure 48). Le pH atteint dans les substrats extensifs et fibre de coco est élevé (de l'ordre de 8,5 à 9) et dépasse les préconisations des Règles Professionnelles françaises (Partie II paragraphe 1.2.1). En parallèle, les teneurs en $CaCO_3$ ont diminué dans tous les substrats et l'argile expansée (Figure 48).

Le rapport C/N dans les différents substrats a augmenté pour les trois matériaux, en particulier les substrats extensif et semi-intensif (Figure 48). La teneur en COT dans les différents substrats a, quant à elle, fortement diminué dans ces différents substrats également, en particulier dans l'extensif dont la teneur moyenne a été divisée par près de 5 sur les toitures Extensives et Stockage 40 (Figure 48). La teneur en N à encore plus fortement diminuée que la teneur en COT.

Une diminution importante de la part des particules les plus fines est observée (Figure 49) : de l'ordre de 5 % pour le substrat fibre de coco, 8 % pour l'argile expansée, 15 % pour le substrat extensif et 28 % pour le substrat semi-intensif.

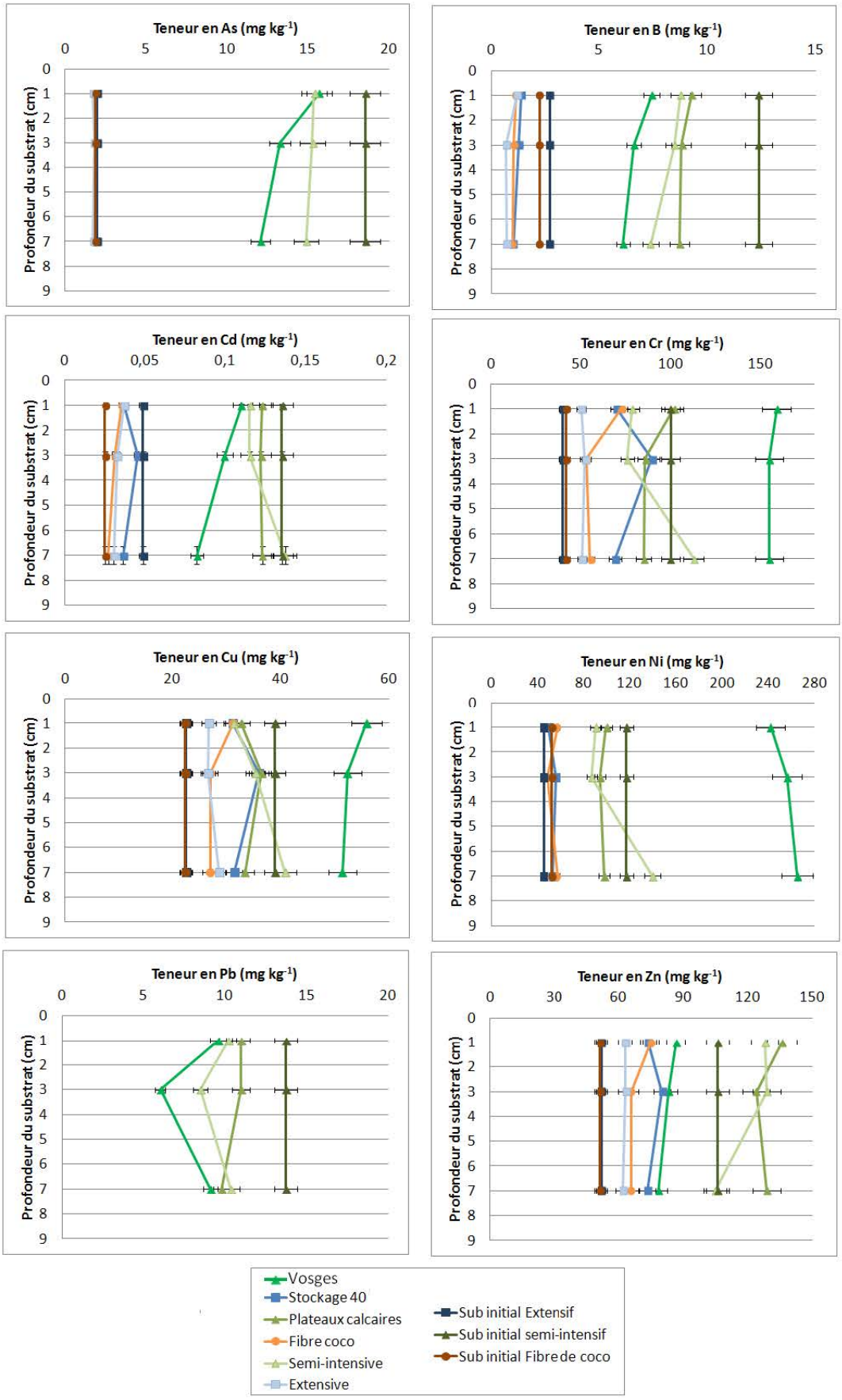


Figure 48 - Evolution des paramètres globaux sur les profils des différentes toitures végétalisées entre octobre 2010 et avril 2013

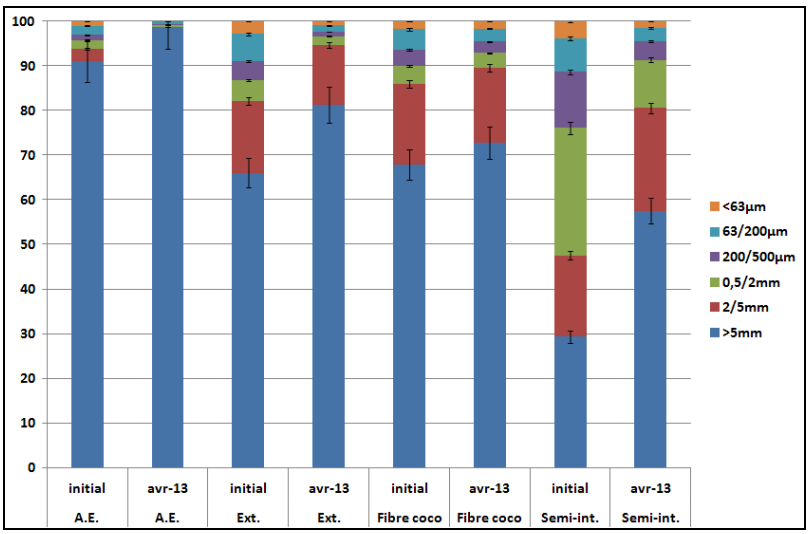


Figure 49 - Evolution de la répartition granulométrique entre octobre 2010 et avril 2011 dans les substrats et l'argile expansée

1.2.2 Evolution des teneurs totales en ETM sur les profils de substrats et dans l'argile expansée

Substrats

Des différences significatives sont observées dans les substrats et dans les couches de drainage constituées d'argile expansée avec des augmentations ou des diminutions pouvant être de l'ordre de 50 % de la teneur initiale selon les ETM et les matériaux (Figure 51 et Figure 54). Les substrats extensifs et fibre de coco ont des comportements comparables sur l'ensemble des toitures disposant de ces substrats. On observe notamment une augmentation des teneurs en Cr, Cu et Zn et une diminution des teneurs en B. Les teneurs en As sont stables. Celles en Pb restent sous la limite de quantification. Seule la teneur en Ni augmente légèrement dans le substrat extensif mais pas dans le substrat fibre de coco. Le substrat semi-intensif présente un comportement différent avec notamment une diminution des teneurs pour tous les éléments sauf le Zn sur les toitures Semi-intensives et Plateaux calcaires. La toiture Vosges présente des profils de teneurs significativement différents et des évolutions opposées à celles de ces deux autres toitures pour Cr, Cu, Ni et Zn.

Aucune tendance claire ne se dégage en termes d'évolution des profils de teneur en fonction de la profondeur dans le substrat. Même à plus long terme, aucune tendance de ce type ne semble se dégager comme en témoigne une étude réalisée sur les teneurs en Cu, Pb et Zn dans un substrat de 17 cm âgé d'une quarantaine d'année. Les teneurs observées sur les prélèvements réalisés tous les 1,7 cm sont généralement constantes tout au long du profil ou présentent des variations sans lien avec la profondeur (Speak *et al.*, 2014).

Filtre géosynthétique

Les teneurs en ETM dans les échantillons de filtres géosynthétiques prélevés en avril 2013 sont significativement supérieures à celles présentes initialement dans le matériau (Figure 52), en particulier pour les toitures disposant du substrat semi-intensif. Une forte corrélation apparaît entre les teneurs en ETM dans les substrats et les teneurs en ETM dans les géosynthétiques (Pearson moyen de 0,98 pour le substrat semi-intensif, 0,84 pour le substrat extensif et 0,75 pour le substrat fibre de coco). L'augmentation des teneurs en ETM doit donc être due en grande partie à la présence de particules de substrat dans le géosynthétique. La présence de ces particules est également visible sur les prélèvements (Figure 50). Lors des analyses, les particules collées superficiellement au filtre avaient été enlevées mais celles imbriquées dans la structure non tissée avait été conservées.

Figure 50 - Présence de particules de substrat en surface et dans le filtre géosynthétique (prélèvement d'avril 2013 - toiture des Vosges)

Drainage

La structure synthétique stockante ne présente pas de variation de teneurs en ETM significatives aux regards des incertitudes associées à ces résultats (Figure 53).

Les teneurs en ETM dans l'argile expansée utilisée en drainage présentent des tendances d'évolutions différentes selon les éléments et dans des ordres de grandeurs variables selon les substrats présents au-dessus également. Il est notamment à noter une augmentation significative des teneurs en Zn et Cr, une légère diminution des teneurs en B et enfin une stagnation des teneurs en As dans ce matériau entre les caractéristiques initiales et celles d'avril 2013. Ces teneurs sont généralement plus importantes sur les toitures disposant d'un substrat semi-intensif, en particulier Vosges et Plateaux calcaires, que sur la toiture Extensive qui présente généralement les plus faibles teneurs. Ce drainage aurait donc potentiellement pu retenir une partie des ETM apportés spécifiquement par le substrat.

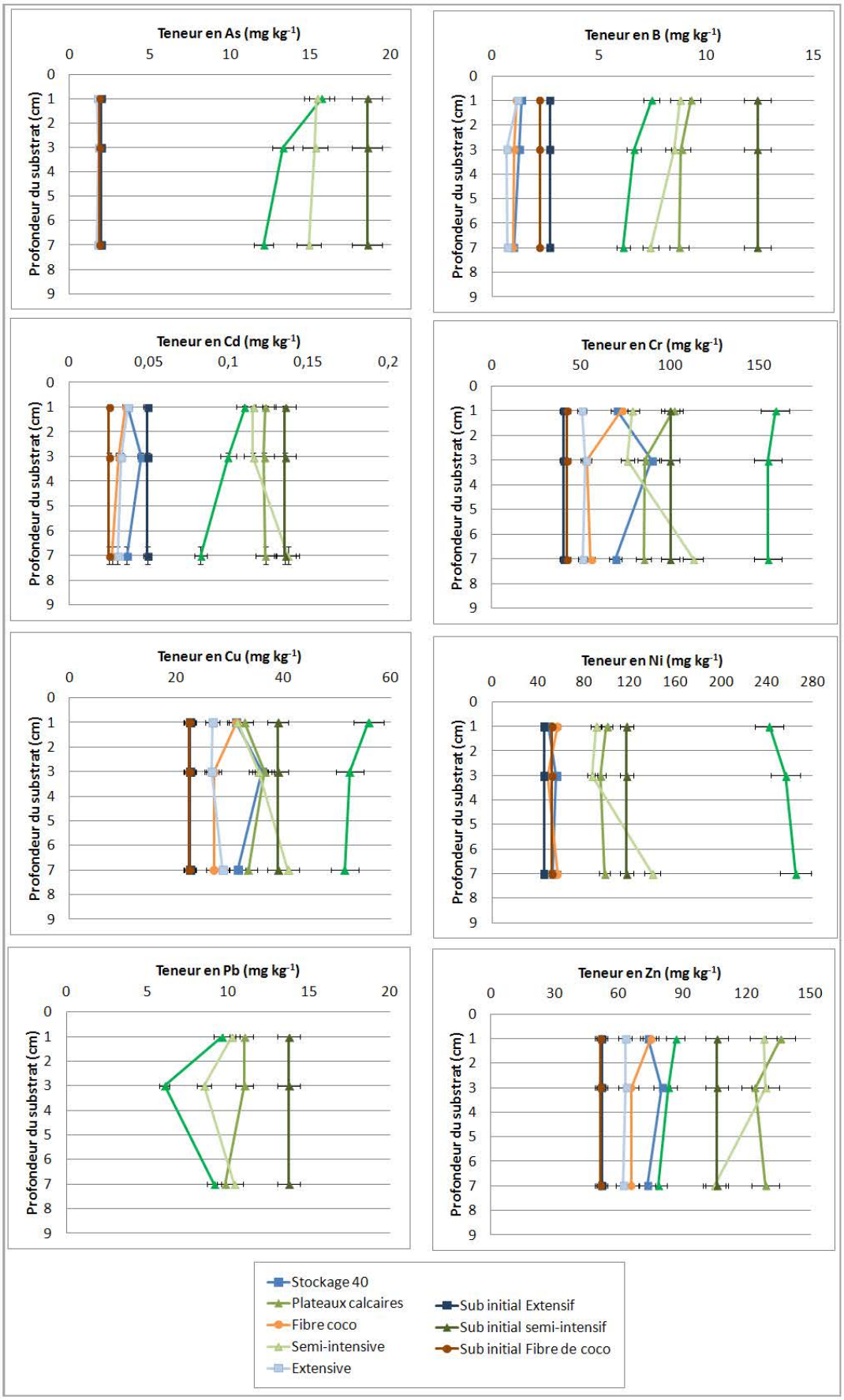


Figure 51 - Evolutions des teneurs en ETM sur les profils de substrat des parcelles expérimentales

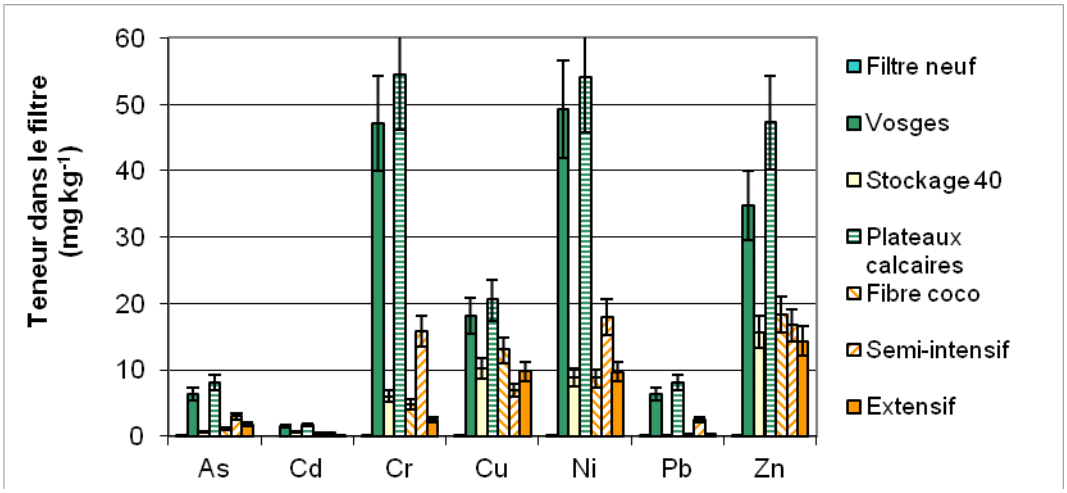


Figure 52 - Evolution des teneurs en ETM dans le filtre géosynthétique

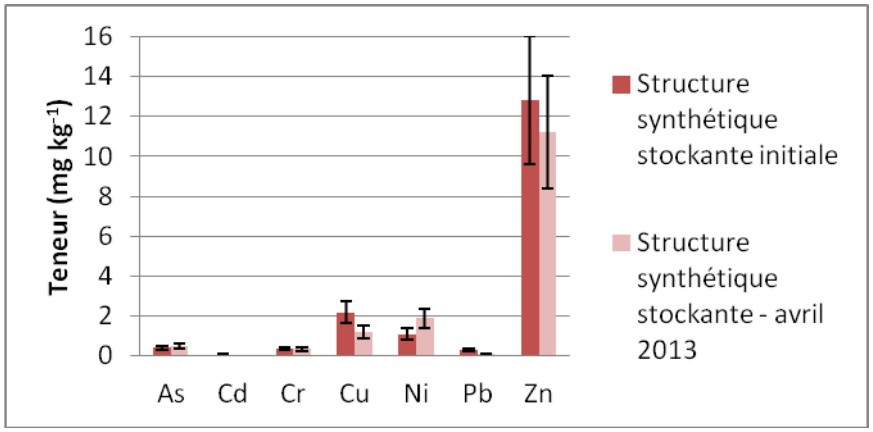


Figure 53 - Evolution des teneurs en ETM dans la structure synthétique stockante entre le matériau initial et celui prélevé en avril 2013

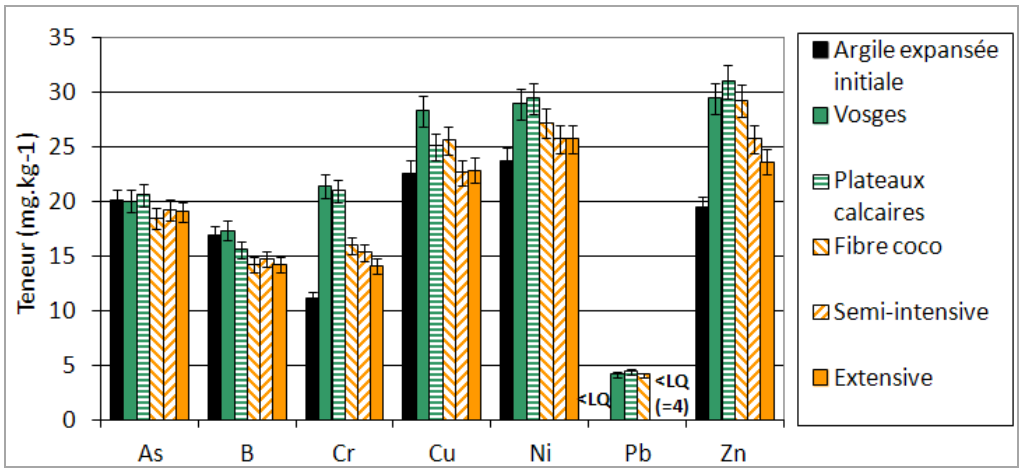


Figure 54 - Evolution des teneurs en ETM dans les couches de drainage constituées d'argile expansée

1.2.3 Discussion : Une évolution à court terme qui interroge sur l'évolution à long terme

Une évolution importante des caractéristiques physiques et chimiques des matériaux minéraux et organiques

Les **évolutions de différents paramètres** peuvent être reliées entre elles pour mieux **comprendre les mécanismes** d'évolution des matériaux. L'augmentation du pH dans les eaux en sortie des toitures et certaines évolutions observées au sein des matériaux comme une diminution des CEC corrélées à une diminution des teneurs en $CaCO_3$ peuvent expliquer ce phénomène (Voegelin *et al.* 2003 ; Citeau, 2006). Concernant la matière organique, des profils de décroissance de la surface jusqu'au fond du substrat ont été observés, comme sur des sols « naturels » avec des teneurs toutefois significativement inférieures (Chrastny *et al.*, 2012). Des **diminutions** non négligeables de teneurs en **matière organique** ont d'ailleurs été observées tout comme pour la part des particules les plus fines. La forte corrélation entre la perte de particules fines et la perte de matière organique dans le **substrat** fibre de coco peut indiquer que ces deux phénomènes sont corrélés et qu'il y a essentiellement eu une disparition de particules fines composées de matière organique liée à une décomposition de celle-ci. Pour les substrats semi-intensif et extensif, la perte de masse liée à la diminution de la quantité de matière organique est plus faible que la diminution de la part des particules fines. Cela peut provenir d'un lessivage de particule fine minérale, que l'on retrouve d'ailleurs en partie dans le filtre géosynthétique, ou encore de la formation d'agrégats entre particules fines organiques et minérales. Enfin, l'**argile expansée** présente également une diminution de la part des particules fines sans lien avec une disparition de matière organique importante. En outre, les gammes granulométriques jusqu'à 5 mm sont concernées et il n'a pas été observé de formation d'agrégats de diamètre supérieur à 5 mm. Ce phénomène est donc probablement lié à un **lessivage des particules fines minérales**.

Des évolutions de teneurs en ETM pas systématiquement indicatrices d'une forte capacité de rétention des matériaux

Des évolutions des teneurs en ETM significatives ont pu être observées dans les différents substrats et l'argile expansée. Les **teneurs en ETM** dans les substrats ne présentent cependant **pas de décroissance avec la profondeur du substrat** comme ceux généralement observables dans les 10 premiers cm de sols soumis à une infiltration d'eaux pluviales (Barraud *et al.*, 1999). Ces toitures sont jeunes mais des profils réalisés sur des toitures plus âgées ne montrent pas non plus ce type d'évolution spécifique (Speak *et al.*, 2014). Cela pourrait provenir de la **forte conductivité hydraulique des matériaux** de toitures végétalisées en comparaison de celles des sols utilisés en infiltration évoqués précédemment (Partie II paragraphe 1.2.3) qui limite le temps de contact entre matériau et eaux et donc la capacité globale de la toiture à retenir les ETM présents dans les eaux pluviales.

Un « même » matériau peut présenter des évolutions très différentes

La variabilité des teneurs en ETM dans l'argile expansée en fonction des substrats présents en surface montre l'impact des caractéristiques physico-chimiques des eaux issues du substrat sur le potentiel de rétention ou de rejets d'ETM initialement présents dans l'argile expansée. Cela souligne donc la nécessité de prendre en compte les **interactions** entre les **différentes couches** de ce type de structure.

Par ailleurs, les différences significatives de teneurs finales de certains ETM dans les trois toitures contenant du substrat semi-intensif laissent supposer que ces matériaux n'avaient **pas les mêmes caractéristiques initiales** en termes de teneur en ETM. L'ensemble du lot a pourtant été **fourni** par le professionnel **comme un seul type de substrat** puisque composé du même mélange d'argile expansée, pouzzolane, compost, brique concassée et scories de charbon. Ceci peut provenir de la **nature de la matière première utilisée**, en particulier dans le cas d'usage de matériaux recyclés qui peuvent avoir des origines très diverses malgré une dénomination commune. Dans le cas du compost par exemple, la littérature montre la présence de gammes de teneurs en ETM très larges selon les différentes catégories de composts (déchets verts, boues de STEP, ordures ménagères brutes et fractions fermentescibles) et même au sein d'une même catégorie du fait de la variabilité des teneurs initiales des éléments compostés (ENSP, 2002). L'origine et les différents processus menant à l'obtention de ces matériaux à recycler peuvent également influencer la disponibilité des polluants présents dans la structure. Wei *et al.* (2013) ont ainsi démontré que plus l'atmosphère dans laquelle sont produits les scories de charbon est réductrice, plus des éléments comme Pb et Zn seront facilement extractibles de ces matériaux.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

La variabilité des teneurs totales en ETM dans un substrat présenté sous la même dénomination par un fournisseur met en avant une fois de plus la nécessité de caractériser fréquemment les teneurs en ETM d'une même catégorie de matériaux puisque celles-ci peuvent varier selon leur origine notamment.

Différentes évolutions observées dans les substrats amènent à se questionner sur la pérennité du développement des végétaux classiquement utilisés en toiture végétalisée. C'est le cas du pH dans la mesure où il a considérablement augmenté sur toutes les toitures végétalisées et dépasse les préconisations établies par les Règles Professionnelles (ADIVET *et al.*, 2007).

Des questions se posent également quant à la diminution des teneurs en matière organique qui pourrait s'avérer problématique à long terme pour différentes raisons. Tout d'abord, une teneur trop faible pourrait compromettre un développement pérenne de la végétation. Des études à long terme sont nécessaires pour faire le lien entre développement des végétaux et évolution des teneurs en matière organique sur les toitures végétalisées. Cependant les résultats d'une étude menée sur le développement des végétaux au début de la vie de la toiture montrent qu'une teneur en matière organique de l'ordre de 10 % est nécessaire pour une implantation durable de la végétation (Nagase & Dunnet, 2011). Par ailleurs, la matière organique joue un rôle important sur la rétention d'eau par la structure végétalisée (Brady & Weil, 2008). Or l'importance de cette fonction dans la diminution des flux de polluants a déjà été évoqué précédemment (Partie I paragraphe 1.2.3). En outre, la CEC et donc la capacité de rétention des ETM est fortement liée à la présence de matière organique (Bradl, 2004). Enfin, lorsqu'elle passe en solution, la matière organique augmente la solubilité de ces mêmes ETM et peut favoriser leur mobilisation (Marseille & Denot, 2007). Ainsi une diminution de la teneur en matière organique pourrait doublement influencer la qualité des eaux en sortie de toiture. Elle pourrait jouer d'une part sur la capacité de rétention des ETM par le substrat en termes de diminution des sites d'adsorptions disponibles et d'augmentation des flux sortant de la toiture liés aux volumes d'eaux rejetés plus importants. D'autre part, une augmentation les rejets de substances initialement présentes dans le matériau et peu mobiles pourrait avoir lieu. Ces différents arguments montrent l'importance de conserver des teneurs en matière organique importantes au cours du temps. Le choix des matériaux utilisés est essentiel. Dans le cas des substrats étudiés, la matière organique du substrat semi-intensif, du compost, a présenté sur ces deux premières années et demie une diminution moins importante que celles des autres substrats composés de fibre de coco, d'écorce de pin et de tourbe blonde. Des études complémentaires seraient nécessaires pour déterminer si cela se poursuit à long terme. Par

ailleurs, la mise en place d'un écosystème sur le toit peut également permettre de conserver une teneur en matière organique importante à long terme comme en témoigne une toiture végétalisée âgée d'une quarantaine d'année qui présente une teneur en matière organique de l'ordre de 20 % (Speak *et al.*, 2014). Mais cela nécessite peut-être de s'orienter vers la végétalisation semi-intensive, comme cette toiture qui disposait peut-être d'une teneur initiale plus importante et surtout d'une épaisseur de substrat plus élevée (de l'ordre de 17 cm).

Aucune étude n'a permis de caractériser l'évolution des caractéristiques des matériaux de toitures végétalisées à long terme. Ces premiers résultats sur moins de trois ans montrent déjà des variations significatives or la durée de vie d'une toiture végétalisée est au moins de l'ordre de 25 à 30 ans. Il serait intéressant de poursuivre ce type de suivi surtout dans la mesure où ces évolutions pourraient impacter diverses fonctions attendues des toitures végétalisées.

Chapitre 2 : Changement d'échelle, zoom sur la toiture extensive

Le chapitre précédent a permis d'identifier des variabilités significatives des teneurs en ETM sur différentes parcelles expérimentales construites avec les mêmes substrats, probablement liée aux rétentions et émissions de polluants par les matériaux ainsi qu'à l'hétérogénéité initiale présente entre différents lots fournis par un même producteur. Sur une parcelle âgée d'une quarantaine d'année, Speak *et al.* (2013) ont observé des teneurs en Pb variant de 100 à 300 mg kg^{-1}. Ce second chapitre va donc étudier la variabilité à l'échelle de la parcelle. Des observations à échelle mésoscopique (de quelques µm à quelques mm) sont également nécessaires notamment pour comprendre les mécanismes (lessivage ou agrégation) impliqués dans la diminution de la part de fines observées précédemment. Enfin, le passage à une échelle microscopique fournira des informations complémentaires sur les interactions entre substrat et végétaux ainsi que sur la répartition des ETM dans ces sedums et la pérennité de ce stockage. L'ensemble de ces expérimentations complémentaires a été réalisé sur la toiture Extensive, celle-ci disposant des matériaux ayant démontré les meilleures capacités de rétention dans le cadre des essais en laboratoire (Partie II). Cinq prélèvements ont été réalisés sous quatre espèces de sedum*s* différentes (*spurium* : point 1, *floriferum* : point 2*, album* 3, *reflexum g.* : à 4) et sous une zone dépourvue de végétaux (point 5).

2.1 Caractéristiques physico-chimiques aux différents points de prélèvement

2.1.1 Caractéristiques physico-chimiques

Les différences de pH entre les différents points de prélèvements ne sont pas significatives, sauf pour le prélèvement dans la rhizosphère au point 1 (Figure 55). Par contre, des différences importantes de teneurs en matière organique et de CEC sont visibles entre les différents points, en particulier dans la rhizosphère (Figure 56). Le point 5 (sans végétaux en surface) y présente des valeurs significativement plus faibles que celles des zones avec végétaux. Comme pour le pH, les valeurs les plus élevées sont également rencontrées pour le point 1, couvert de *S. spurium*. Le coefficient de Pearson entre les teneurs en matière organique et la CEC est très élevé (0,96) et montre une corrélation importante entre ces paramètres, confirmant ce qui a été observé pour ce substrat au paragraphe 1.2.1 de cette même partie.

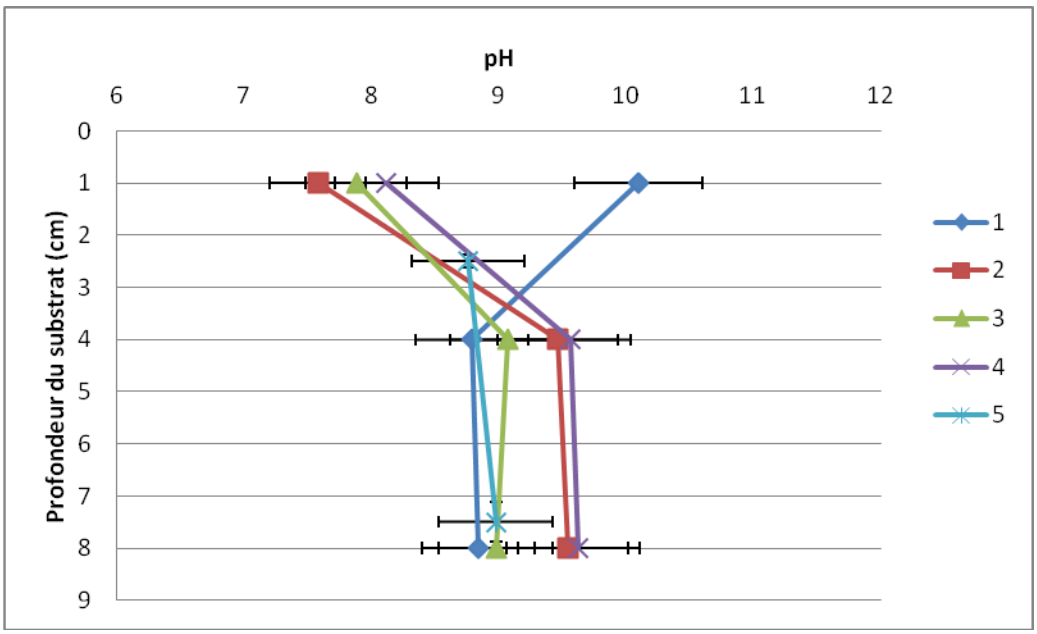


Figure 55 - Variabilité du pH entre les différents points de prélèvements sur la toiture Extensive

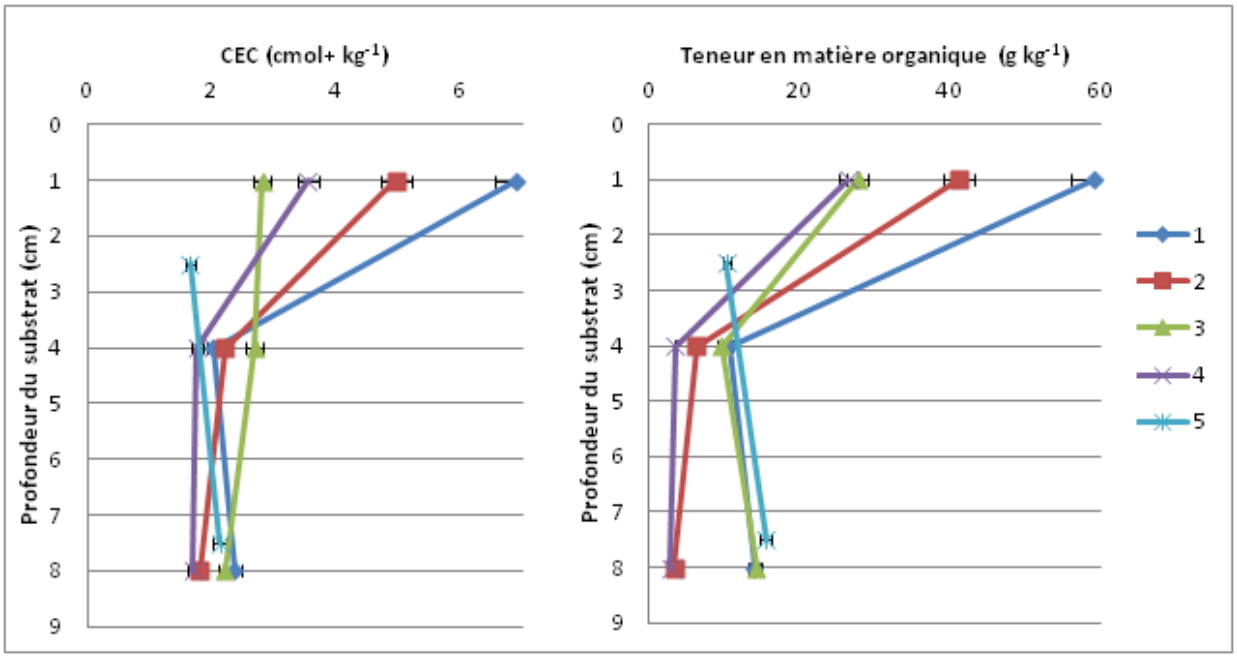


Figure 56 - Variabilité de la CEC et de la teneur en matière organique entre les différents points de prélèvements sur la toiture Extensive

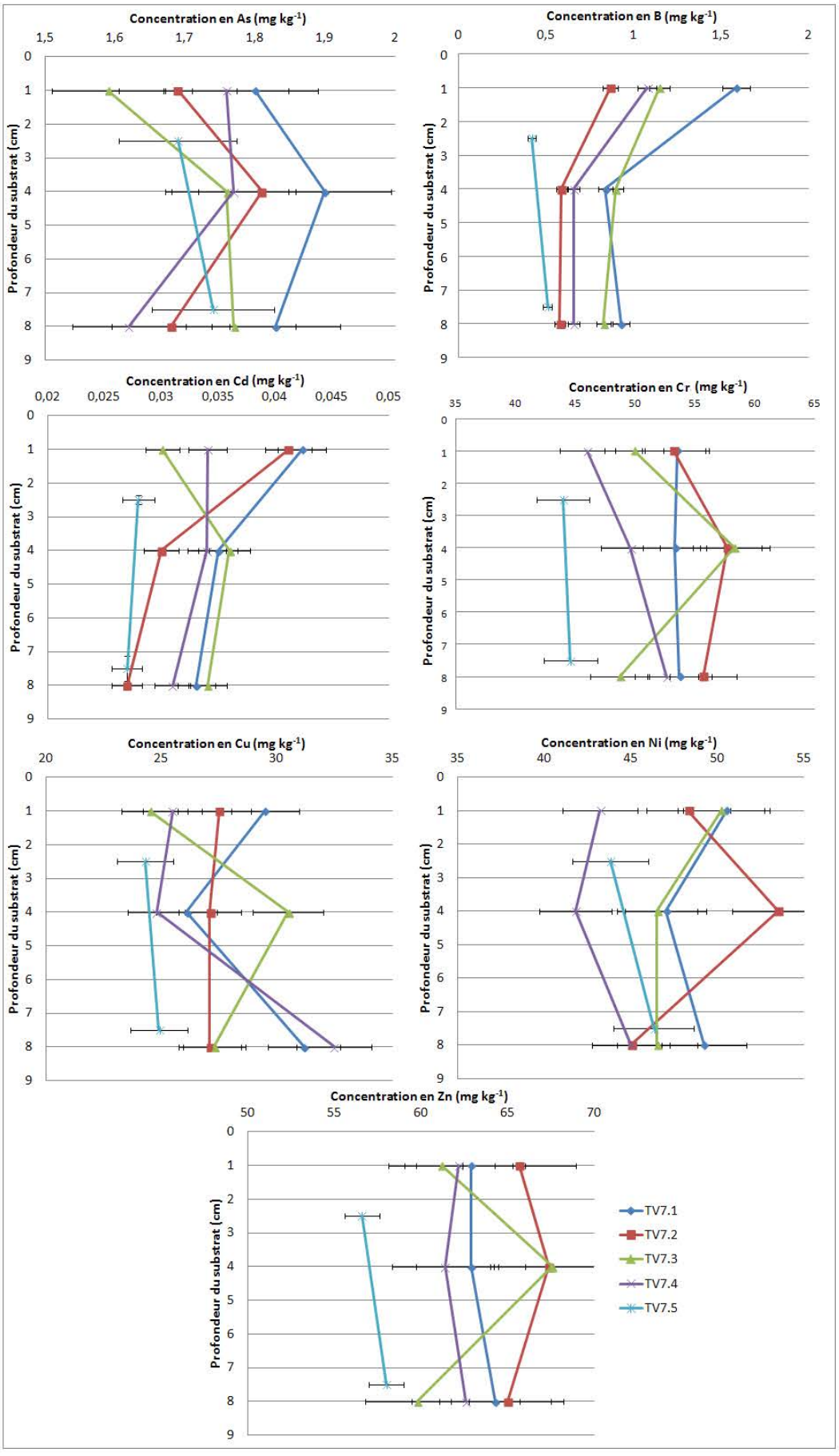


Figure 57 - Variabilité des teneurs en ETM

entre les différents points de prélèvements sur la toiture Extensive

2.1.2 Variabilité des teneurs en ETM

Le point 5 (sans végétaux) se distingue par des teneurs en ETM systématiquement dans la gamme basse par rapport aux teneurs présentes sur l'ensemble des points de prélèvements (Figure 57, page précédente). Au regard des incertitudes liées aux méthodes d'analyses, celles-ci sont d'ailleurs significativement plus basses que l'ensemble des teneurs présentes dans les zones disposant de végétaux pour B, Cr et Zn. Des différences significatives sont également visibles entre ces dernières sur l'ensemble du profil pour B, Cd, Cr et Cu. Pour Ni et As, elles ne sont significatives qu'au niveau de la rhizosphère et de la zone S1 pour le premier, de la zone S2 pour le second.

Les teneurs en B et en Cd présentent des corrélations significatives avec les teneurs en matière organique (Pearson respectivement de 0,83 et 0,73). Pour tous les autres éléments, ce paramètre est inférieur à 0,4 voire à 0 pour As, Cr et Cu.

2.1.3 Discussion : des caractéristiques variables pour certains paramètres, en particulier en l'absence de végétaux

Parmi les cinq points considérés, le point 5 **dépourvu de végétation** se distingue des autres par des **teneurs en ETM, matière organique et CEC plus faibles**. Les quatre autres points montrent des différences parfois significatives sans pour autant que l'un d'entre eux se distingue spécifiquement des autres. Trois hypothèses peuvent être avancées pour expliquer ces tendances.

La première est liée à l'**hétérogénéité initiale des matériaux introduits** sur la toiture. En effet lors du transport et du stockage des « *big bags »* de substrats, une migration des particules fines au fond du sac peut avoir lieu et les méthodes de mise en œuvre n'intègrent pas de mélange préalable avant apport sur le toit (Partie I paragraphe2.1.3.). Ainsi la répartition granulométrique sur l'ensemble de la surface ne doit pas être homogène et peut entraîner des différences de teneurs en ETM et en matière organique, l'analyse de ces paramètres sur différentes phases granulométriques ayant montré une hétérogénéité entre celles-ci (Partie II paragraphes 1.2.1 et 1.2.2).

La seconde hypothèse est une variabilité des apports auxquels est soumise la toiture. Les cinq points de prélèvements se trouvent cependant dans une zone de surface limitée de l'ordre de 4 m de diamètre, ne présentant pas de différences significatives d'expositions aux apports atmosphériques. Il est donc peu probable que cela puisse expliquer les variations observées.

Enfin, les points de prélèvements disposaient de couverts en surface distincts qui pourraient avoir un impact sur ces paramètres. Le nombre restreint d'échantillon (un par espèce) et les différences limitées ne permettent pas d'identifier un impact spécifique des différentes espèces de sedums. Cependant, des variations significatives ont été observées entre les points avec (de 1 à 4) et sans

végétation (5). Le **couvert végétal** permettrait ainsi de **conserver des teneurs en matière organique** plus importante, en en apportant notamment au fur et à mesure de la croissance de la plante et en limitant peut-être le lessivage de la matière initialement présente. Comme la matière organique présente une affinité forte pour les ETM, cela peut expliquer que les teneurs en ETM soient plus élevées sous les végétaux que dans la zone nue. Ainsi sans prendre en compte les ETM potentiellement stockés dans les végétaux en eux-mêmes, leur présence peut **permettre indirectement d'améliorer les capacités de rétentions des polluants** par la structure dans leur ensemble.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Un pourcentage de recouvrement le plus important possible devra donc être recherché afin de limiter les diminutions de teneurs en matière organique dans le substrat. Des études complémentaires sont nécessaires afin de déterminer si la perte de matière organique se fait rapidement (dans les premiers mois de la vie de la toiture) ou sur plusieurs années, les prélèvements ayant été réalisés après plus de deux ans et demi de mise en place des substrats sur les toitures. Si cette diminution est lente, des techniques de plantations avec un recouvrement de plus de 80 % sur un an à deux ans, comme l'utilisation de micro-mottes, restent appropriées. Cependant, si la teneur en matière organique diminue rapidement, les techniques de plantation favorisant un recouvrement très rapide de la surface seraient à préconiser, comme des tapis préplantés. Des retours d'expériences semblent cependant indiquer que la durabilité de la végétation introduite de cette façon est moindre par rapport aux micro-mottes (Ernewein, 2010 ; Monnereau, 2013). Des techniques de plantation permettant d'atteindre rapidement et durablement un recouvrement important de la parcelle sont donc encore à développer.

2.2 Observation de l'évolution du substrat sur lames minces

L'ensemble de la description des lames minces est basé sur la méthodologie préconisée par Bullock *et al.* (1985).

2.2.1 Caractéristiques générales

Agencement des particules

L'observation des lames à l'œil nu montre qu'elles présentent un degré de tri granulométrique modéré, avec 10 à 30 % de l'ensemble des fractions autres que la principale de l'ordre de 0,5 – 1,5 cm associée à la pouzzolane (Figure 58 et Figure 59). La distribution relative entre les matériaux les plus grossiers et les plus petits est de type « Enaulic » avec un squelette de gros matériaux, en contact avec les uns avec les autres, puis des particules de plus petites tailles dans les vides interstitiels.

Matière minérale

La pouzzolane, matériau majoritaire du substrat extensif (Annexe V), est bien visible à l'œil nu (Figure 58). Elle est présente dans les gammes de granulométrie annoncée par le constructeur (3-6 mm et majoritairement 7-15 mm). Cependant une certaine hétérogénéité se dégage dans la répartition granulométrique entre les différentes lames avec un nombre plus important de particules dont au moins une dimension dépasse 1 cm (Figure 59) aux points de prélèvements 3 et 4 (au moins 6 à 8 particules) par rapport aux points 1 et 2 (de 1 à 4 particules). Celle-ci peut provenir de l'hétérogénéité de la répartition granulométrique du substrat dans le « *big bag »* au moment de son déversement sur la toiture, évoquée dans le paragraphe précédent. La surface de ces particules est d'ondulante à rugueuse (indentations plus profondes que larges). Cela provient notamment de la forte porosité initiale du matériau (p. 192). Ainsi, si une petite partie se désolidarise en surface, des cavités de grandes dimensions sont rapidement creusées.

Figure 58 - Lames minces de substrat extensif prélevées aux points de prélèvements 1 (S. spurium) et 2 (S. floriferum) sur la toiture Extensive

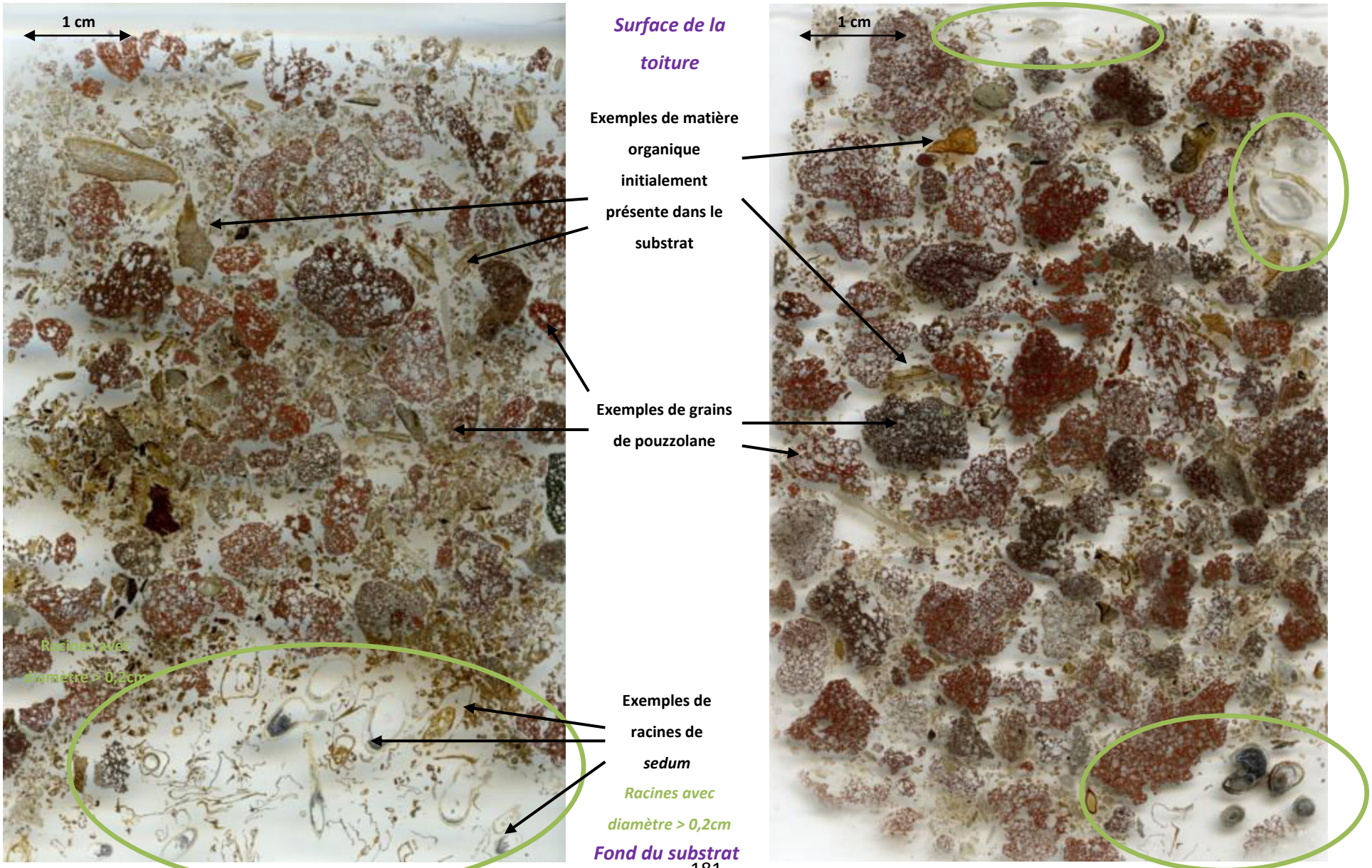
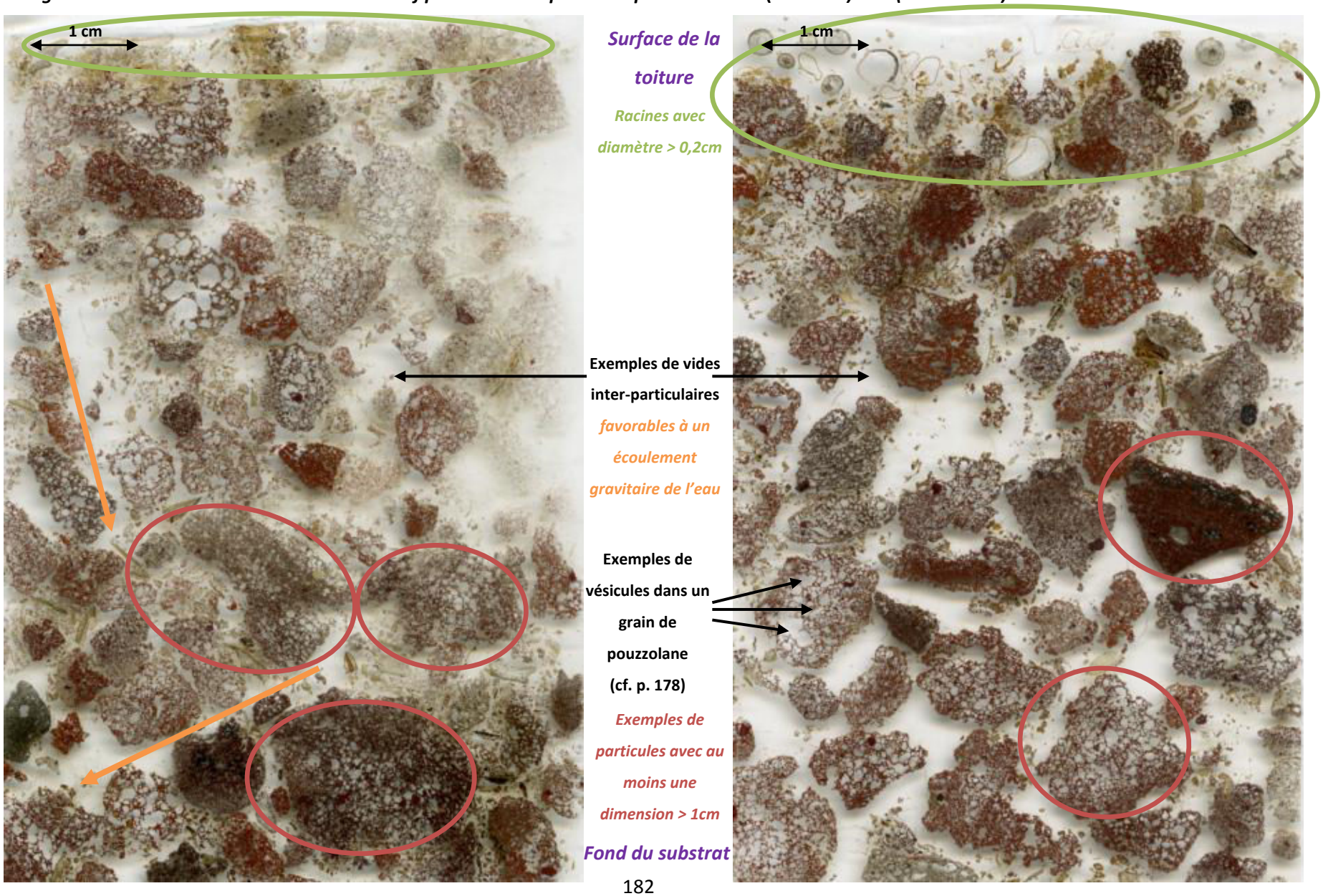


Figure 59 - Lames minces de substrat extensif prélevées aux points de prélèvement 3* (S. album*) et 4 (*S. reflexum*) sur la toiture Extensive



Matière organique

Deux principaux types de matière organique se distinguent (Figure 58), la matière organique :

- endogène au substrat, soit celle initialement apportée dans le mélange par le fabricant : tourbe blonde et écorce de pin compostée,
- colonisatrice du milieu : soit les végétaux qui se sont développés dans cette zone, essentiellement des racines dont certaines sont en voie de décomposition.

Ces matières organiques sont majoritairement de teintes jaunes-orangées à marrons, en fonction de leur origine, de la nature des tissus ou de leur degré de décomposition. La teinte grise qu'elles peuvent également présenter est un artéfact lié à l'utilisation de carbure de silicium utilisé lors de la réalisation des lames minces.

Différents degrés de dégradation sont visibles, parfois sur un même élément de matière organique comme sur la Figure 60 qui montre la dynamique d'évolution de la matière. Dans les racines mortes des sedums présents, certaines présentent encore de la matière à l'intérieur tandis que pour d'autres seul le rhizoderme (enveloppe externe de la racine) est encore visible (Figure 61).

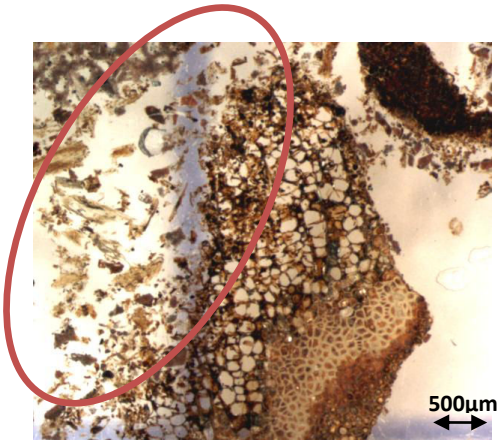


Figure 60 – Dégradation progressive et hétérogène de la matière organique initialement présente dans le substrat (point de prélèvement 2)

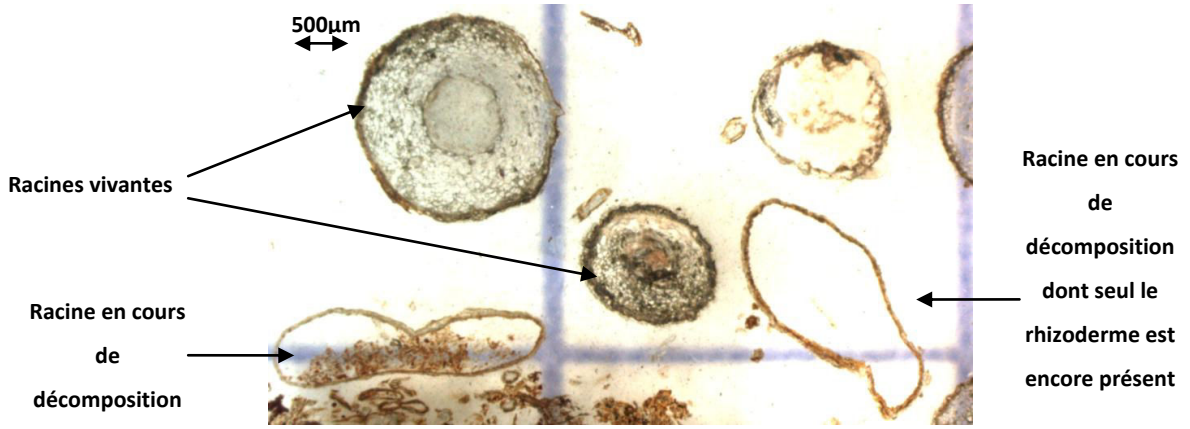


Figure 61 - Racines de* S. reflexum *vivantes et mortes avec différents stades d'avancement de dégradation (point de prélèvement 4)

Deux principaux types de porosité

Le substrat présente une porosité complexe avec notamment deux principaux types de vides (Figure 59). Le premier correspond aux vides fortement interconnectés présents entre les particules fines et grossières. Le second, de type « vésicule » [18], est celui présent dans les particules de matières minérales. Sur les lames des points de prélèvements 3 et 4, les plus grands vides inter-particulaires sont de l'ordre de 1 à 1,5 cm de largeur et sont répartis de façon homogène sur l'ensemble de l'épaisseur du substrat. Ces vides peuvent atteindre jusqu'à 3 cm sur les lames des points de prélèvements 1 et 2 autours des zones en profondeur présentant des racines de diamètre important (de l'ordre de 0,5 cm). En moyenne, les différentes lames présentent un pourcentage de vide inter-particulaire sur l'ensemble de la profondeur de l'ordre de 36 % et un vide de type vésiculaire de l'ordre de 18 %, soit au total environ 54 % de vide.

Agrégats

Les premiers cm de substrat présentent une accumulation progressive de particules fines majoritairement organiques dans les vides inter-particulaires. Ce phénomène est plus particulièrement visible sur la coupe du point de prélèvement 1 (Figure 58). Il présente d'ailleurs un pourcentage de vide inter-particulaire inférieur dans les 3 premiers cm de substrat (de l'ordre de 40%) par rapport au reste du profil, notamment en profondeur avec environ 60% de vide inter-particulaire sur les 3 derniers cm. Plus en profondeur, des vides inter-particulaires apparaissant comme non connectés sur ces coupes en 2D montrent également une accumulation progressive de mélanges de matières minérales et organiques (Figure 63), tout comme certains vides intra-particulaires (Figure 62). En outre, des mélanges de matières minérales et organiques se fixent sur

[18] Vésicule : vide autre qu'inter-particulaire dont les contours sont des courbes simples et lisses selon Bullock *et al.*, 1985

certaines anfractuosités en surface des particules minérales. Observée à une échelle plus fine, la surface de la pouzzolane semble se fractionner par endroit et s'associer à d'autres types de matériaux (Figure 64). Des processus d'agrégation sont donc bien présents et pourraient conduire progressivement au colmatage de certains vides. Ces agrégats sont généralement poreux, de forme arrondie et sont dissociés entre eux. Leurs tailles varient de très fines (0,5 à 1 mm) à ultrafines (<0,5 mm) avec de très rares occurrences de fines (1-2 mm).

Figure 62 - Colmatage progressif de vides intra-particulaires (vésicules) par des particules fines et notamment de la matière organique (point de prélèvement 3)

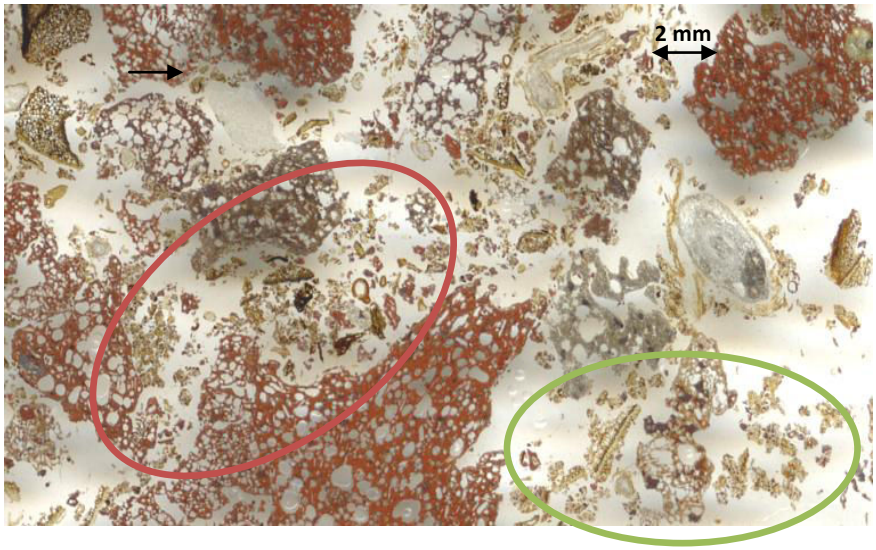


Figure 63 - Formation d'agrégats dans des vides inter-particulaires (point de prélèvement 2)

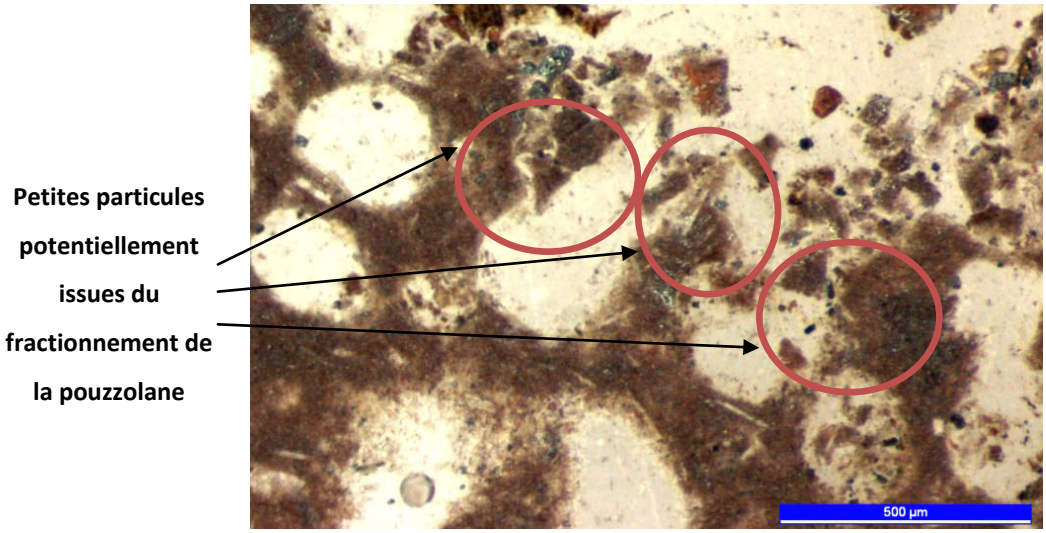


Figure 64 - Observation à plus fort zoom des agrégats et de leurs associations avec la surface de la pouzzolane (point de prélèvement 4)

Dynamique d'écoulement et de lessivage

Les lames minces montrent des vides dont l'orientation est favorable à un écoulement des eaux (Figure 59), sans qu'il n'y ait toutefois de vide avec une orientation parfaitement verticale indiquant un écoulement direct de l'eau. Celle-ci doit circuler gravitairement d'un vide à l'autre avec des déplacements latéraux au fur et à mesure de son écoulement dans le substrat. Par ailleurs, des zones présentent également une orientation de particules fines (Figure 65) qui peut indiquer une dynamique de lessivage progressif de ces éléments.

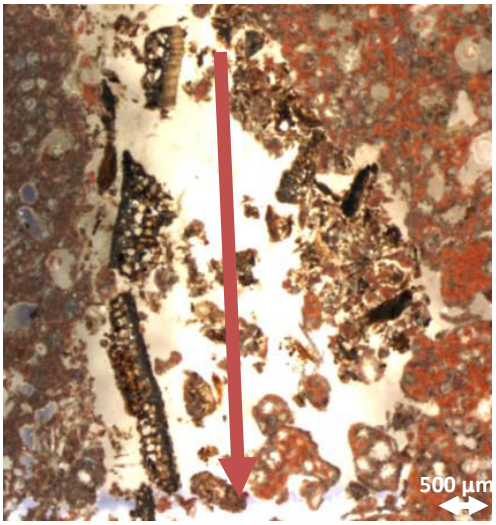


Figure 65- Orientation de particules dans un vide inter-particulaire pouvant indiquer un lessivage de celles-ci (point de prélèvement 3)

2.2.2 Caractéristiques de la végétation

A l'œil nu, les quatre variétés de sedums présentent différentes répartitions des racines de diamètres les plus importants (de 0,2 à 0,5 cm voire plus). Elles se trouvent essentiellement en surface pour *S. album* et *S. reflexum* (Figure 59) et en profondeur pour *S. spurium* (Figure 58). *S. floriferum* présente une répartition plus homogène des racines sur l'ensemble de la lame, d'environ 1,5 cm de profondeur jusqu'à 8 cm (Figure 58). Depuis le mois de février 2013, le système de stockage d'eau dans la couche de drainage était de nouveau effectif. Les teneurs en eau dans le substrat en profondeur devaient donc être significativement plus élevées qu'en surface durant la période ayant précédé les prélèvements finaux. La répartition des racines peut donc indiquer un besoin en eau plus important pour *S. spurium* que pour *S. album* et *S. reflexum* ou encore un développement racinaire différent par nature entre ces différentes espèces. Comme évoqué précédemment, ces racines de dimensions importantes sont généralement entourées de vides inter-particulaires de grandes dimensions.

Observées à la loupe binoculaire, ces lames révèlent la présence de racines de diamètre inférieur à celles évoquées précédemment, réparties sur l'ensemble des profils des différents points de prélèvements. Ces racines plus petites sont systématiquement entourées d'agrégats organo-minéraux comme le montrent les coupes transversales et longitudinales des figures ci-dessous (Figure 66).

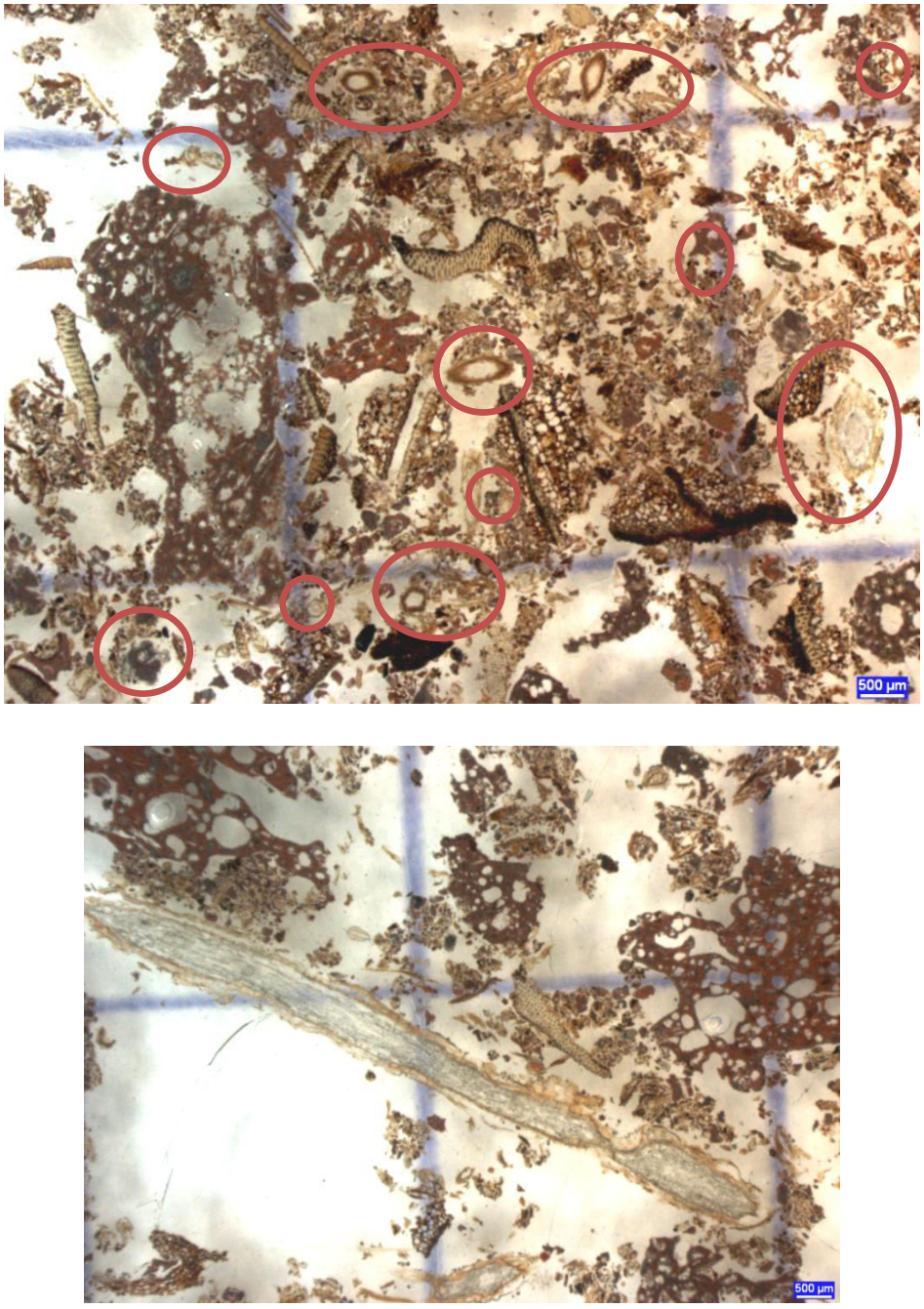


Figure 66 – Agrégation et accumulation de particules au-dessus de racines de* S. spurium *(haut) et* S. floriferum *(bas) (points de prélèvement 1 et 2)

De multiples interactions entre les racines des végétaux et la matière minérale sont visibles sur les deux lames minces réalisées au point de prélèvement 2 (en présence de *S. floriferum*). Des racines sont présentes dans les porosités de la pouzzolane (Figure 67). D'autres sont en contacts directs et semblent avoir séparé deux particules initialement en contact (Figure 68) ou avoir induit une légère dégradation/fragmentation de la matière minérale (particules fines qui semblent se détacher de la particule principale Figure 69). Ce phénomène n'a pas été observé sur les autres lames. Des répétitions seraient nécessaires pour confirmer la présence de différences significatives selon les

espèces de sedums étudiées. *S. floriferum* pourrait être venu chercher de l'eau stockée dans ces pores ou encore de l'air si le substrat était trop humide. Il n'a cependant pas été possible d'identifier dans la littérature de besoins différents pour ce sedum par rapport aux autres variétés.

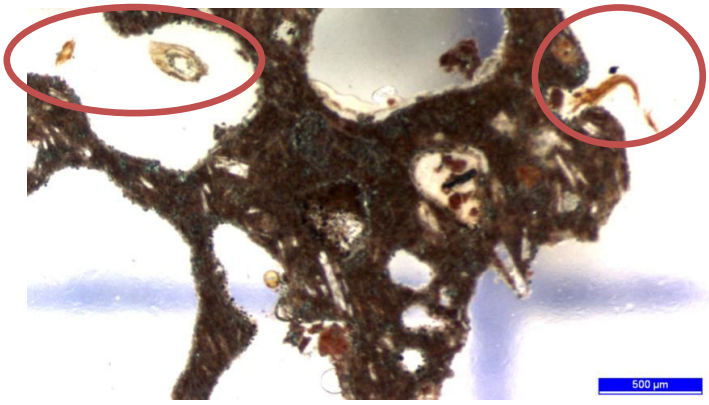


Figure 67 - Racines de S. floriferum introduites dans les porosités d'un grain de pouzzolane (point de prélèvement 2)

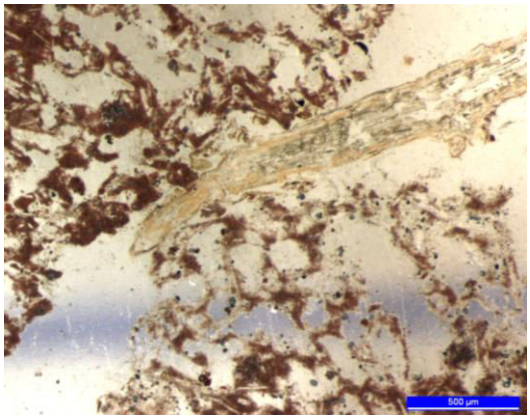


Figure 68 - Racine de S. floriferum introduite entre deux grains de pouzzolane probablement en contact au préalable (point de prélèvement 2)

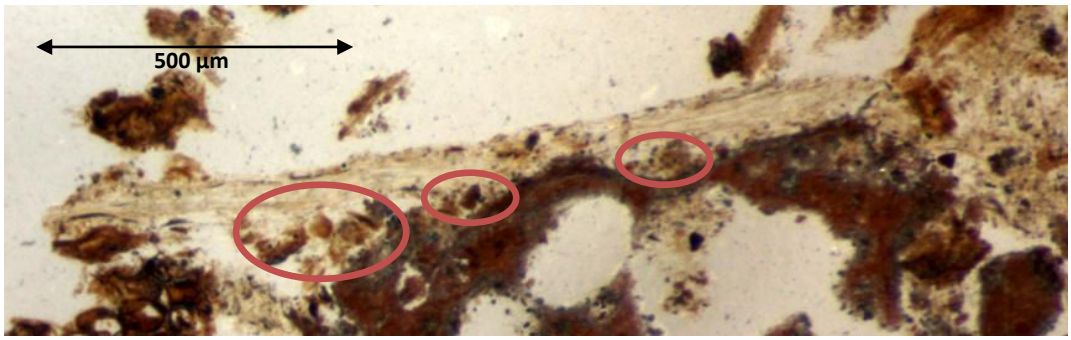


Figure 69 - Racine de S. floriferum en contact direct avec un grain de pouzzolane semblant induire un fractionnement de petites particules de pouzzolane dans la zone de contact (point de prélèvement 2)

2.2.3 Activité de la faune

Différents types de boulettes fécales ont été observés sur l'ensemble des lames (Figure 70). Près d'une dizaine de racines en cours de décomposition présentent des agrégats majoritairement organiques de couleur orangé à brun clair, de formes rondes à ovales, d'environ 125 µm de diamètre. L'origine de ces boulettes fécales peut être attribuée à des acariens, responsables de la biodégradation de certains tissus végétaux. D'autres de diamètres plus importants (environ 500 µm) et de formes arrondies, mélangeant matière minérale et organique et présentes dans des vides inter-particulaires, peuvent provenir d'autres individus de la mésofaune, insectes adultes et larves.

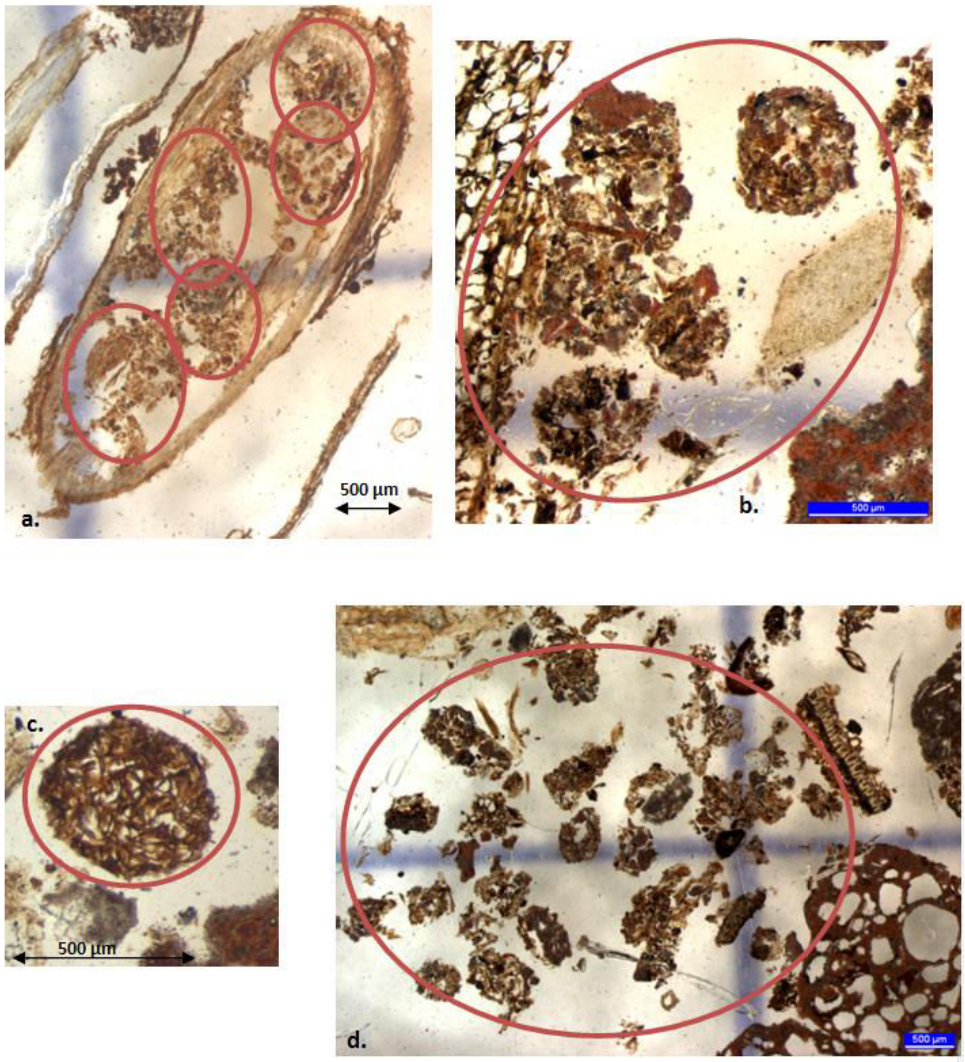


Figure 70 – Exemples de boulettes fécales de diamètre proche de 125 µm dans une racine morte de* S. spurium *(a) et de l'ordre de 500 µm dans les vides interparticulaires (b, c, d) (points 2 et 3)

2.2.4 Discussion : un rôle important de la flore et de la faune dans l'évolution du substrat

Lors des campagnes de mesures qui ont eu lieu sur ces toitures, plusieurs espèces animales faisant partie de la macrofaune[19] du sol ont pu être repérées, comme des araignées (*Argiope bruennichi*), des cloportes, des *Opilions Phalangium sp.* et des chilopodes (Schwager & Irles, 2013). L'étude des lames minces via l'observation des boulettes fécales indique la présence et l'activité de la **mésofaune[20]** sur les toitures.

La présence de cette faune dans le substrat est essentielle au bon fonctionnement de la structure. En effet, celle-ci prodigue aux sols de **multiples fonctions**, notamment en lien avec le cycle de l'eau (Pey, 2010). En outre, certaines des espèces présentes favorisent la **formation d'agrégats** (Gobat et al., 2010).

L'observation des lames minces de substrat a permis de mettre en avant **le rôle prépondérant de la végétation dans l'évolution de ce matériau**. Celle-ci fournit d'une part les éléments nécessaires au bon développement de la faune. D'autre part, les **racines** semblent avoir un impact différent selon leurs diamètres au niveau de l'écoulement des eaux de pluie et du lessivage des fines particules. Les racines les plus **jeunes**, via la sécrétion d'exsudats, favorisent la formation d'agrégats organo-minéraux (Godron, 2012) et donc la **rétention des particules fines**. Celles de plus gros diamètres sont plus **âgées**, recouvertes d'une écorce imperméable et ne produisent plus d'exsudats (Davet, 1996). Elles induisent la formation de vides interparticulaires de grandes dimensions, favorisant un **écoulement préférentiel des eaux** favorable à un lessivage des particules fines.

[19] Animaux d'une longueur de 4 à 80 mm environ (Gobat et al., 2010).

[20] Animaux d'une longueur de 0,2 à 4 mm environ (Gobat et al., 2010).

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Les mécanismes pédogénétiques induisant la formation d'agrégats permettent une amélioration de la qualité des eaux en sortie de substrat. Ils limitent le lessivage des particules fines et notamment de la matière organique, permettant ainsi la conservation de particules aux capacités de rétentions des métaux élevées. Une étude complémentaire sur ces agrégats serait nécessaire pour confirmer qu'ils présentent des teneurs en ETM particulièrement importantes comme cela peut être observé dans les sédiments d'ouvrages d'infiltrations (El-Mufleh *et al.*, 2014).

Des pourcentages de vide inter-particulaire moins importants ont pu être observés dans les premiers cm de substrat de certaines lames en lien avec une accumulation de matière. Si ce phénomène se poursuit, il pourrait engendrer un colmatage partiel en surface du substrat. Cela peut engendrer une évacuation des eaux par ruissellement sur le substrat sans écoulement à travers l'ensemble des couches. Ceci peut avoir un impact néfaste sur le fonctionnement hydraulique du substrat en empêchant une bonne évacuation des eaux. La rétention des polluants par la structure serait également limitée puisque les eaux n'entreraient plus en contact avec les matériaux devant intervenir dans cette rétention. Par ailleurs, le colmatage progressif des porosités des particules minérales peut engendrer une perte de capacité de rétention d'eau, or celle-ci est essentielle au bon développement de la végétation.

L'idéal serait donc d'introduire des végétaux aux racines traçantes, permettant de limiter le colmatage en surface grâce à l'intervention de racines principales de plus grand diamètre. Les espèces présentant une bonne répartition des racines secondaires sur l'ensemble du profil de substrat seront à favoriser afin de permettre une formation homogène des agrégats. Il est également possible d'introduire des communautés animales spécifiques selon les fonctions attendues des systèmes (Pey, 2010).

2.3 Observation de coupes de végétaux

Les observations ont porté sur le *S. spurium* qui présentait des teneurs en ETM dans le substrat extensif parmi les plus élevées par rapport aux autres espèces analysées (Chapitre 1 de la Partie IV).

2.3.1 Morphologie de S. spurium

Caractéristiques générales

La structure primaire de la racine de *S. spurium* est bien visible sur la coupe observée à la loupe binoculaire (Figure 71). Le rhizoderme présente de grandes cellules circonvoluées (40 à 100 µm) aux parois fines (Figure 72), qui favorisent l'absorption de l'eau et des minéraux présents dans le substrat.

Les cellules de l'écorce sont plus petites (10 à 40 µm environ). Plusieurs présentent un contraste important à l'observation au MET. Les cellules les plus contrastées présentent également des stries (Figure 72) qui proviennent de la méthode de coupe de la lame. Ces dernières indiquent une différence de densité importante par rapport aux autres cellules. Ce fort contraste ainsi que la différence de densité sont le signe de la présence de substances polyphénoliques dans ces cellules. Lors de la senescence[21] des cellules, celles-ci peuvent s'associer avec les protéines pour former des complexes polyphénols-protéines appelés le plus souvent tannins (Schmidt, 2013).

Les cellules de la stèle sont encore plus petites (<10 µm) et rarement colorées (Figure 71). Elles contiennent en effet essentiellement de l'eau puisqu'elles constituent les tissus conducteurs permettant de transférer aux feuilles l'eau et les nutriments qui ont traversé l'écorce et l'endoderme. Dans les cellules aux contenus contrastés, différentes intensités de contraste sont présentent et montrent l'évolution de la condensation de complexe polyphénol-protéines en proportions variables (Figure 73). Les parois de ces membranes, essentiellement constituées de lignine et par nature souvent imperméables (Nabors, 2008), sont plus épaisses.

[21] Terme généralement utilisé en botanique pour définir la période de vie de la plante qui suit son arrivée à maturité (Thomas, 2012).

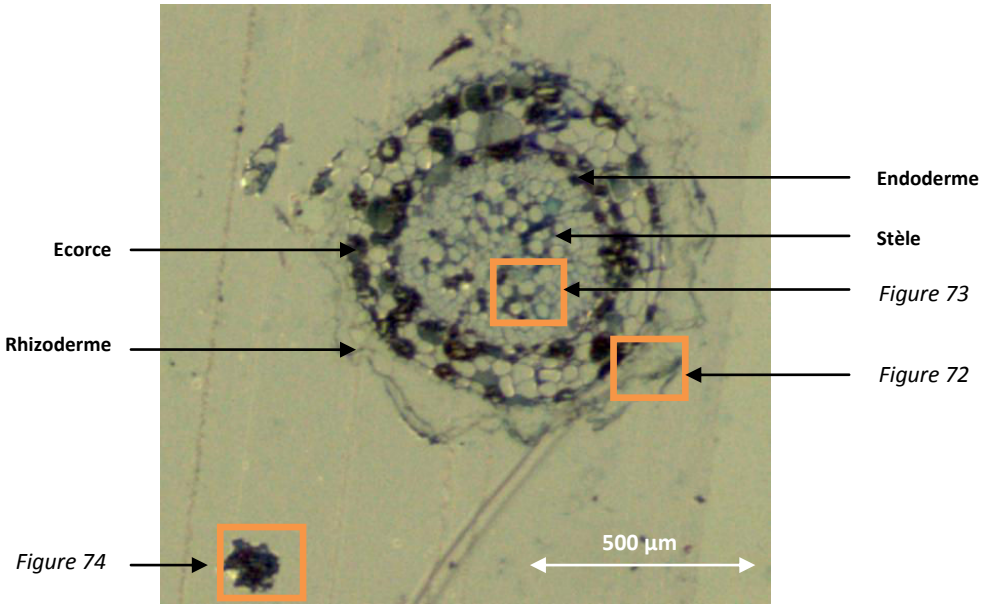


Figure 71 – Structure primaire d'une racine de S. spurium observée à la loupe binoculaire

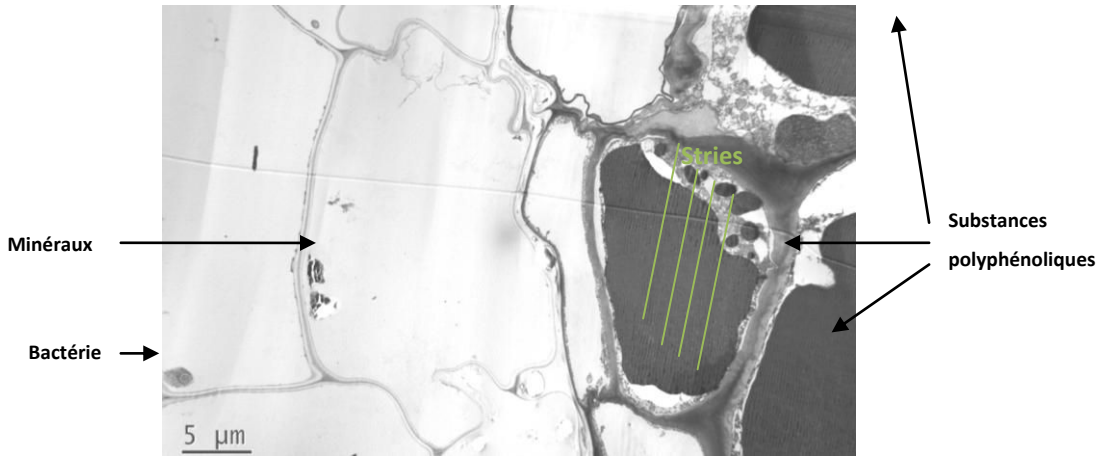


Figure 72 - Cellule périphérique et écorce de S. spurium observées au MET

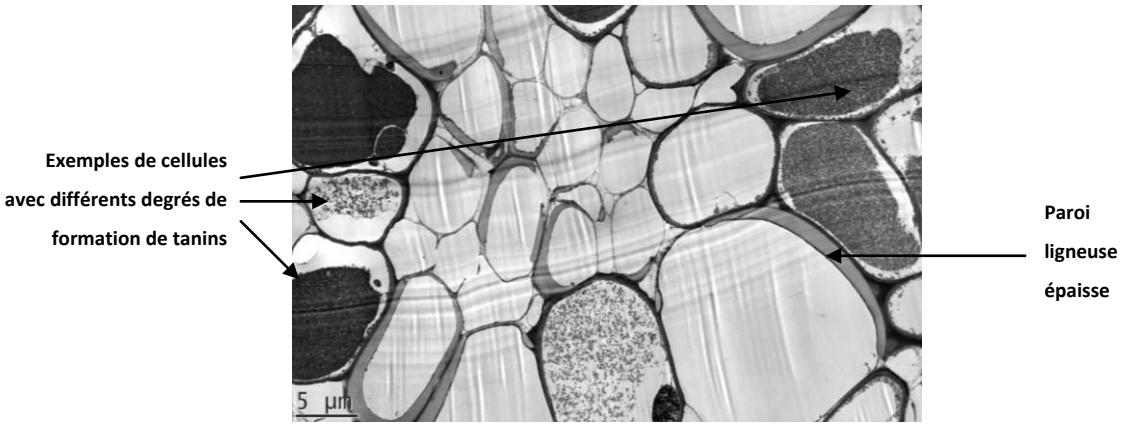


Figure 73 - Cellules du stèle. Observation au MET d'une coupe transversale de S. spurium

La petite racine en bas à gauche de la Figure 71 présente des contenus cellulaires très contrastés, certains sont également fortement dégradés (Figure 74). Elle est donc probablement peu fonctionnelle pour la plante dans la zone où la coupe a été réalisée.

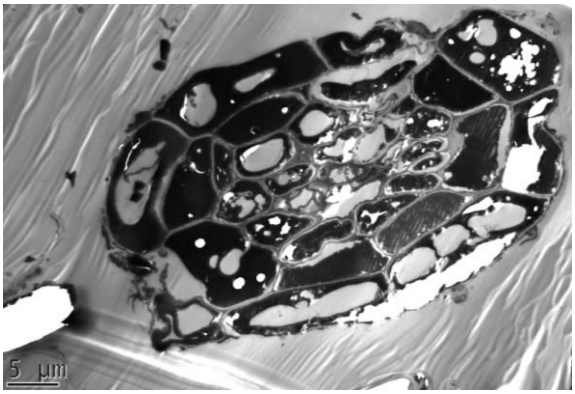


Figure 74 - Petite racine de la coupe tranversale de* S. spurium *observée au MET

Répartition des ETM

Des teneurs significativement plus importantes en As ont été relevées dans les substances polyphénoliques remplissant les cellules, comparativement aux membranes cellulaires (Figure 75, Figure 76, Figure 77). La même tendance est visible pour Cr, Zn, Ni et Cu avec des différences cependant non significatives au regard du nombre de coups évalué pour la résine (témoin) notamment. L'analyse élémentaire par EDX n'a pas permis d'identifier la présence de Cd, Pb et B dans ces tissus, ETM pourtant observés dans le cadre de l'analyse de ce sedum par minéralisation de la matière puis passage à l'ICP MS (Chapitre 1 de la Partie IV). Cela provient probablement des teneurs trop faibles par rapport aux limites de détection de ce type d'analyse.

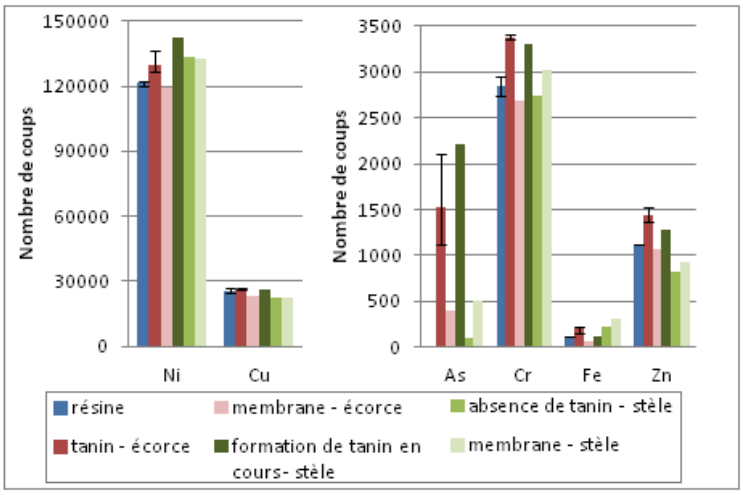


***Figure 75 – Evaluation de la quantité d'ETM présents par sonde EDX dans les différents tissus racinaires de* S. spurium**

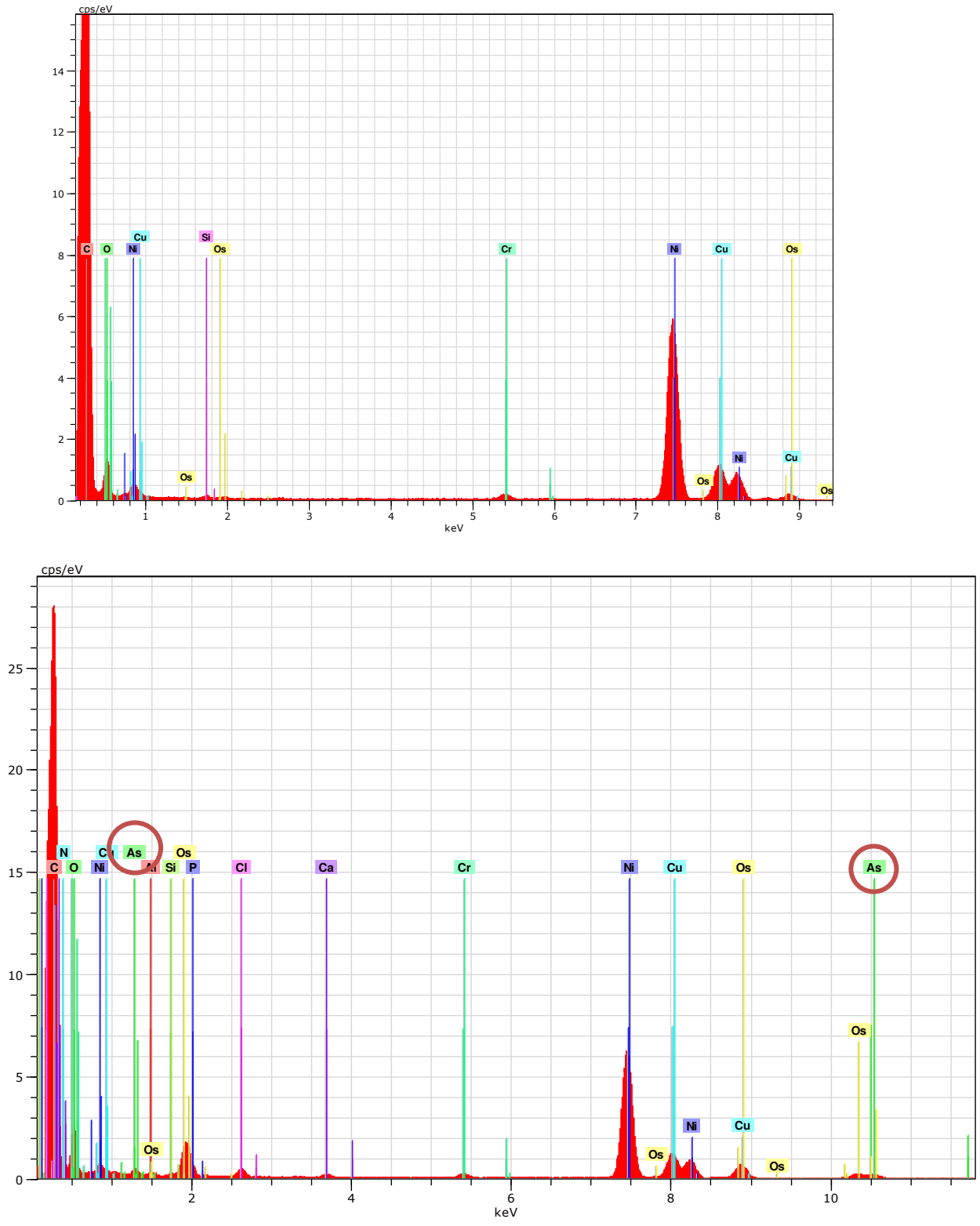


Figure 76 - Spectres obtenus par analyse élémentaire par EDX dans différentes zones de la lame de S. spurium (résine témoin en haut, cellule contenant un complexe polyphénol-protéines en bas)

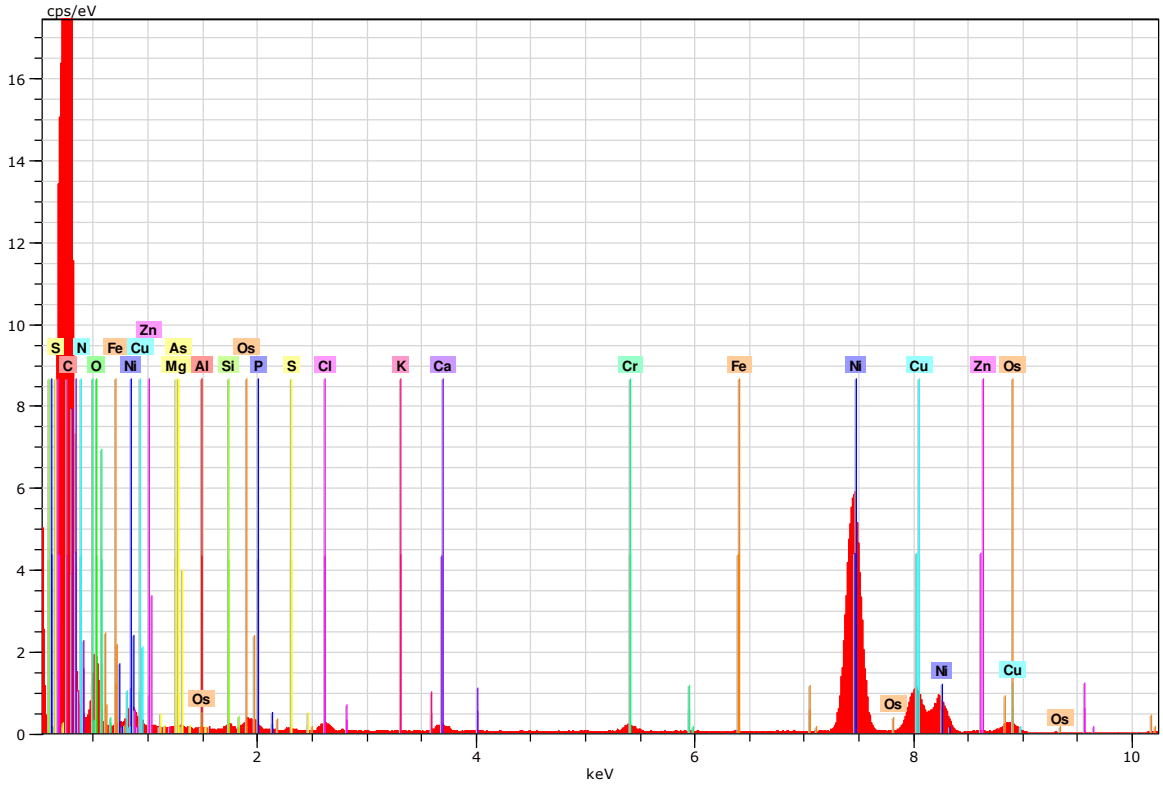


Figure 77 - Spectres obtenus par analyse élémentaire par EDX dans différentes zones de la lame de* S. spurium *(paroi cellulaire)

2.3.2 Interaction avec le substrat

L'observation au MET montre les associations entre les racines de *S. spurium* et le substrat à l'échelle de la cellule. Plusieurs zones présentant une accumulation de matières minérales et organiques sont en effet visibles en surface voire à l'intérieur des cellules externes (Figure 72 et Figure 78).

Des analyses à la sonde EDX ont été effectuées sur différents types de particules organiques et minérales présentent dans les cellules externes de *S. spurium* et sur la lame de substrat (Figure 79). La présence des éléments suivants a été repérée pour certaines de ces particules : C, Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Os et O. La constitution est globalement la même pour ces particules avec une variation des proportions de certains éléments comme Ca et K.

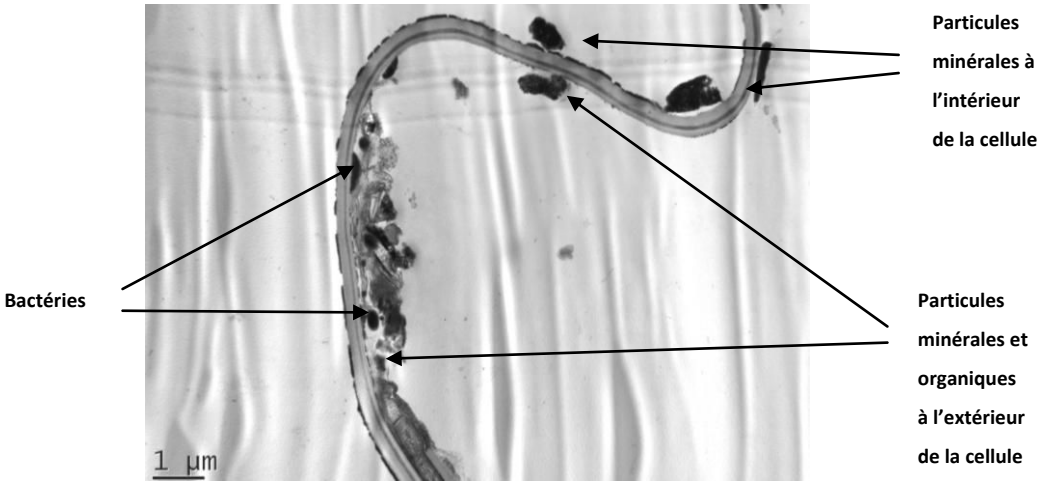


***Figure 78- Adhésion de minéraux, de bactéries et de résidus organiques en surface et à l'intérieur des cellules externes de la racine de* S. spurium**

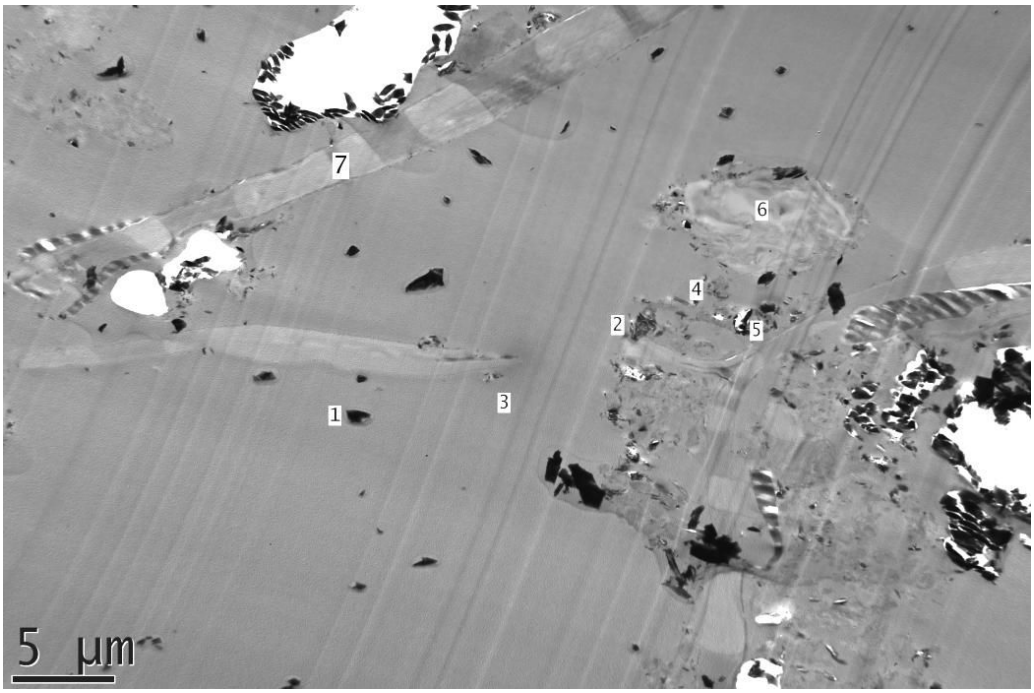


Figure 79- Observation au MET d'une lame de substrat extensif et emplacement des mesures à la sonde EDX

Le coefficient de Pearson entre le nombre de coups pour les particules présentes sur la coupe de *S. spurium* et ceux des particules du substrat extensif initial a été calculé (Tableau 34). Des corrélations significatives sont visibles pour les particules 2 à 4 associées à *S. spurium* et les matières minérales et organiques (1 et 2) du substrat extensif. La particule 1 présente une corrélation importante avec la particule minérale 3 qui s'avère être un quartz au vu des teneurs élevées en Si.

Les particules associées au *S. spurium* sont donc des particules du substrat dans lequel cette plante s'est développée.

Tableau 34 - Corrélation entre les résultats obtenus à la sonde EDX pour les particules minérales et organiques sur la coupe de S. spurium et sur la lame de substrat extensif

Emplacement de la mesure sur la lame de substrat	Nature de la particule de substrat	Particule 1	Particule 2	Particule 3	Particule 4
1	*particule minérale 1*	0,55	0,93	0,99	0,96
2	*particule minérale 2*	0,77	0,78	0,93	0,82
4	*particule minérale + matière organique*	0,30	0,99	0,94	0,98
5	*particule minérale 3*	0,89	0,26	0,58	0,36
6	*matière organique 1*	0,34	0,98	0,94	0,96
7	*matière organique 2*	0,34	0,97	0,93	0,96

Présence de micro-organismes

Dans la racine de plus grand diamètre de la Figure 71 des micro-organismes comme des champignons et des bactéries sont visibles en plusieurs points dans les cellules externes (Figure 80). Dans la racine plus petite et dégradée située en bas à gauche de la photo, différentes colonies bactériennes ont été repérées en surface ainsi que dans les cellules internes. Les bactéries situées le plus à gauche sur la Figure 81 semblent avoir un métabolisme leur permettant de dégrader les substances polyphénoliques et les complexes qu'elles forment avec les protéines de la cellule, comme le montrent les zones de lyse autour de ces trois bactéries.

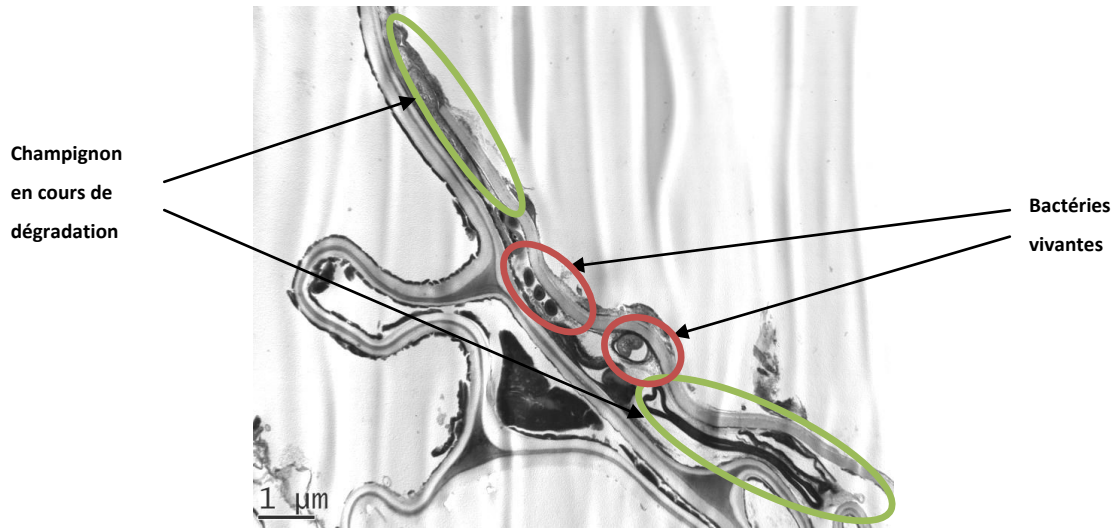


***Figure 80 - Micro-organismes présents dans les cellules externes de la racine de* S. spurium**

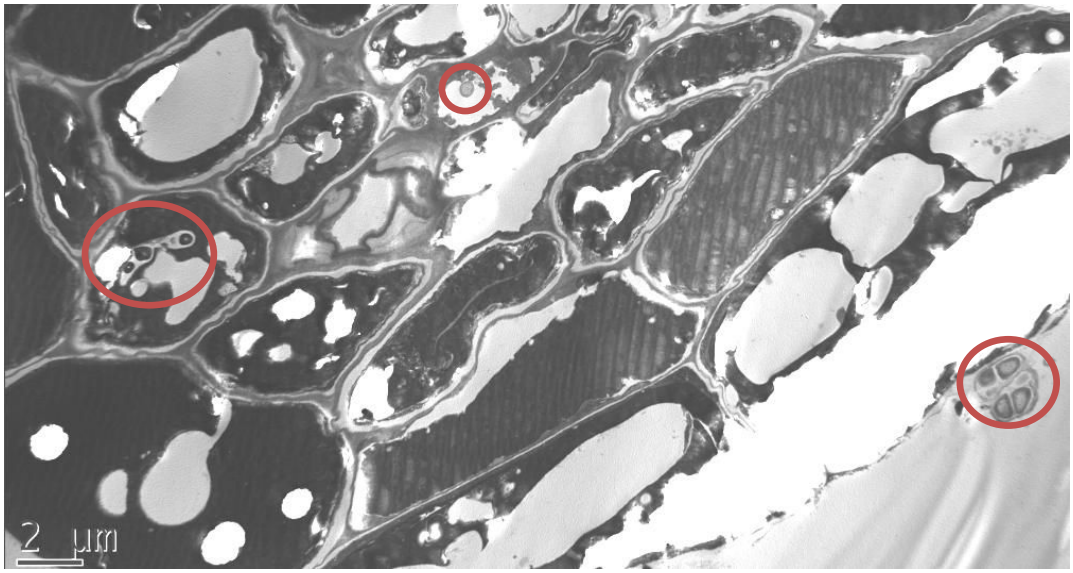


***Figure 81 - Bactéries présentes autour et dans la racine dégradée de* S. spurium**

2.3.3 Discussion : Une rétention temporaire des ETM dans les végétaux

Les hypothèses d'interactions entre les végétaux et le substrat établies à partir de l'observation des lames minces de substrat à la loupe binoculaire ont été confirmées par l'observation des coupes de végétaux au MET. Les **sedums** jouent un rôle dans l'**évolution de la matière minérale et organique du substrat**, via notamment la production d'exsudats ainsi qu'en servant de support de développement à la microfaune du sol. Ces végétaux et les micro-organismes qui y sont associés (bactéries, champignons…) favorisent l'agrégation des particules minérales aux interfaces cellulaires. Ils induisent également une agrégation puis une dégradation de la matière organique notamment, participant ainsi au recyclage des éléments. Cela pourrait **influencer à terme les fonctions** hydrauliques et de rétention des polluants associés à ce matériau ainsi que la mobilité des ETM initialement présents dans ces matériaux.

L'analyse à la sonde EDX a montré une **répartition hétérogène des ETM dans les tissus** de sedum avec une **concentration plus importante**, en particulier pour As, dans les cellules **présentant des quantités importantes de complexes polyphénol-protéines**, situées essentiellement dans l'écorce de la racine. Lorsque l'eau contenant ces éléments traverse les cellules de la racine jusqu'à la stèle, les ETM sont retenus par les cellules qui contiennent ces substances polyphénoliques, du fait de la forte affinité de ces substances pour ces ions (Schmidt *et al.*, 2013).

La **pérennité du stockage des ETM dans les végétaux** dépend donc de la vitesse à laquelle seront dégradées les substances polyphénoliques. Il est souvent considéré que ces métabolites complexes ne sont pas dégradés en priorité par les micro-organismes qui commencent généralement

par dégrader les molécules simples. Cependant, des **bactéries** permettant de métaboliser **ces complexes polyphénol-protéines** ont été observées, rendant ainsi possible une libération potentielle de ces éléments dans le milieu. Ces bactéries aux métabolismes spécifiques ont pu être apportées dans le milieu par l'écorce de pin compostée présente dans le substrat. Ce matériau contient en effet des quantités importantes de substances polyphénoliques. Or le compostage de ce déchet induit une dégradation de ces molécules grâce à l'action de certains micro-organismes spécifiques (Davis *et al.*, 1992).

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Actuellement, la majorité des toitures végétalisées extensives ne fait pas l'objet d'un entretien spécifique de la végétation si celles-ci ne présentent pas de danger pour l'étanchéité. Sauf si des enjeux esthétiques spécifiques y sont associés, dans quel cas un fauchage est parfois réalisé, les tiges et inflorescences qui meurent à la fin de l'été sont laissées sur la toiture et se dégradent, contribuant ainsi au fonctionnement de l'écosystème par un nouvel apport de matière organique.

Cependant, le stockage des ETM dans les végétaux s'avérant temporaire, il sera nécessaire d'adapter ces pratiques de maintenance si le compartiment végétal doit jouer un rôle important de rétention de ces éléments dans une perspective d'amélioration de la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisées. Il faudra en effet enlever les tissus végétaux morts. Cela pourra se faire par fauchage et ramassage des parties aériennes sèches en fin d'été voire par un remplacement cyclique des plants si la quantité d'ETM réintroduite dans le milieu par la dégradation des racines s'avère importante au bout de quelques années.

Conclusion

En passant de l'échelle de la parcelle à celle de la cellule, les observations réalisées ont mis en évidence une évolution importante au niveau de chacune des couches de la structure après un peu plus de deux ans de vie de la toiture. Des processus classiquement rencontrés dans la rhizosphère des sols comme l'agrégation, l'adhésion et la biodégradation de la matière ont notamment pu être observés, expliquant la forte diminution des teneurs en matière organique et de la part des particules les plus fines dans les substrats. Elles ont également permis de confirmer que la structure de toiture végétalisée constitue un habitat pour une biocénose variée allant du macro-invertébré au micro-organisme. Le tout constitue donc un écosystème présentant de multiples interactions au sein de celui-ci et avec son environnement, notamment avec l'eau de pluie qui y circule et les différents éléments qu'elle contient.

L'impact important du végétal sur la rétention des ETM par la structure a également pu être identifié. Le stockage préférentiel de ces éléments par les sedums dans les cellules contenant des substances polyphénoliques et la présence de bactéries aptes à dégrader ces substances indiquent que le stockage d'ETM dans les végétaux est temporaire. Ces plantes ont également un impact indirect dans la capacité globale de la structure à retenir les ETM. En effet, leur présence en surface permettrait de conserver une teneur en matière organique plus importante dans le substrat, or celle-ci présente les plus fortes capacités de rétention des ETM au sein de la structure. Par ailleurs, les jeunes racines des végétaux ont montré leur capacité à interagir avec la matière minérale ainsi qu'à former des agrégats tandis que les plus anciennes favorisent les écoulements et la formation de vides inter-particulaires. Ces évolutions des caractéristiques physiques de la structure peuvent influencer de différentes manières les propriétés hydrauliques du substrat, qui jouent un rôle important en termes de rétention des ETM en lien avec la capacité de rétention de la structure. En outre, la dégradation de la matière peut également contribuer à la libération d'ETM initialement peu disponibles.

Des études complémentaires seront donc nécessaires pour évaluer l'impact de l'évolution de cet écosystème sur ces capacités de rétention et d'émission d'ETM à l'échelle de la vie de la toiture. Mais les résultats obtenus jusqu'à présent vont d'ores et déjà permettre de mieux comprendre les mécanismes entrant en jeu sur une toiture neuve.

PARTIE V

MECANISMES INFLUENÇANT LA QUALITE DES EAUX EN SORTIE DE TOITURES VEGETALISEES

Il a été observé dans la Partie IV que les caractéristiques générales et les teneurs en ETM des différents matériaux constitutifs des structures ont évolué au cours du temps sous l'action de la faune, de la flore ou encore des apports d'eaux et d'éléments par l'atmosphère. En mettant en corrélation les données obtenues dans les trois Parties précédentes, il est possible d'identifier le rôle des différentes couches (végétaux, substrats, filtre, drainage) sur la rétention et l'émission d'ETM présents dans les apports atmosphériques. Enfin, des hypothèses peuvent être formulées quant à la durabilité de la capacité de rétention et à la diminution des rejets en comparant les évolutions observées sur deux ans et celles obtenues au laboratoire (Partie II).

Chapitre 1 : Rétention des ETM par les différents compartiments

Différents mécanismes peuvent en être à l'origine de la rétention mais également de l'émission des ETM dans un sol notamment en lien avec les caractéristiques physico-chimiques des substrats et drainages (Bradl, 2004). La végétation contrôle également ces deux phénomènes selon les éléments considérés. La présence de *S. hybridum* réduit les rejets de Pb en sortie de colonne tandis que ceux de Cd augmentent (Alsup *et al.*, 2010). Dans ce premier chapitre sont étudiés les mécanismes de rétention des ETM atmosphériques et anthropiques par les différents compartiments de la toiture végétalisée.

1.1 Végétaux

1.1.1 Evaluation du stock

Le stock d'ETM dans le végétal se répartit en deux compartiments, ceux adhérant à la surface des parties aériennes et ceux absorbés dans les parties aériennes et racinaires des végétaux. L'évaluation du stock se fait via le produit des teneurs par la masse des végétaux (***Figure*** 82). Les différents plants d'une même espèce sont très hétérogènes, avec des variations de masse de +/- 50%, indiquées par les barres d'erreur sur la figure ci-dessous. Malgré ces fortes incertitudes, il est possible de comparer entre elles les différentes structures et d'identifier des compartiments et espèces permettant le stockage le plus important.

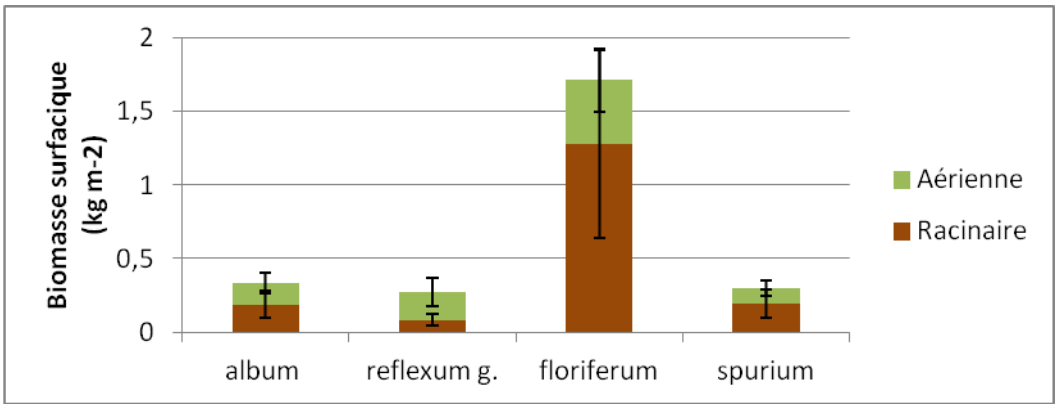


Figure 82 - Biomasse surfacique racinaire et aérienne en avril 2013 des quatre espèces de sedum les plus présentes sur les toitures expérimentales

La part des éléments présents en surface des végétaux est négligeable en comparaison de celle des parties aériennes et racinaires (Tableau 35). Elle est quasiment nulle sur les substrats extensif et fibre de coco. Les racines contiennent généralement la plus grande part d'ETM stockée par la plante. *S. reflexum g.* présente une biomasse aérienne plus importante que sa biomasse racinaire mais cette faible différence ne compense pas les écarts importants au niveau des teneurs. Seuls *S. album* pour As, Cr, Ni et Pb sur les substrats extensif et fibre de coco ainsi que *S. reflexum g.*pour B présentent des teneurs plus importantes dans les parties aériennes qui induisent un stock plus important dans ce compartiment.

Tableau 35 - Répartition des stocks d'ETM dans les différents compartiments des végétaux sur le substrat semi-intensif (% à +/- 10% près)

Espèce	Compartiment	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
S. album	*surface*	1	1	0	1	3	0	2	2
S. album	*aérien*	8	56	12	5	17	7	10	34
S. album	*racines*	91	43	88	94	80	93	88	64
S. germanium	*surface*	0	0	0	0	0	0	0	1
S. germanium	*aérien*	20	71	32	7	40	9	14	61
S. germanium	*racines*	80	29	68	93	60	91	86	39
S. floriferum	*surface*	0	0	0	0	1	0	0	1
S. floriferum	*aérien*	9	22	12	3	8	6	4	25
S. floriferum	*racines*	91	78	88	97	91	94	96	74
S. spurium	*surface*	1	0	0	0	1	0	1	3
S. spurium	*aérien*	12	29	16	5	5	6	7	63
S. spurium	*racines*	87	71	84	95	94	94	92	34

Le stock d'ETM dans le compartiment végétal de la structure dépend fortement de la nature des espèces présentes sur la toiture. En raison de la forte biomasse racinaire et aérienne produite par *S. floriferum,* cette espèce joue un rôle prépondérant dans le stock d'ETM dans le compartiment végétal (***Figure*** 83 pour l'exemple d'As). Les teneurs ne sont pourtant pas plus élevées que pour les autres espèces mais la biomasse est de l'ordre de 10 fois plus importante que pour les autres sedums (***Figure*** 82).

Enfin, les stocks d'ETM dans le compartiment végétal sont très variables selon les éléments (Figure 84). Pour l'ensemble des toitures, cela représente des stocks de plusieurs mg m^{-2} de Ni, Cu, B et Zn (par ordre croissant de quantité).

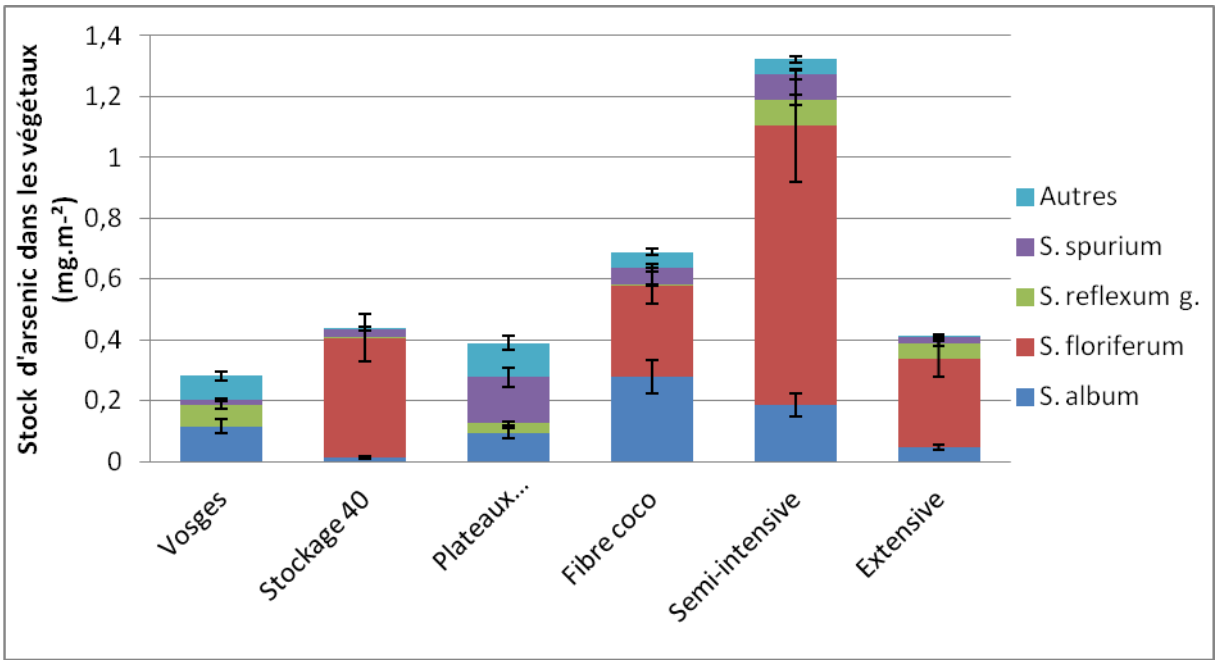


Figure 83 - Estimation du stock d'arsenic par parcelle végétalisée réparti entre les principales espèces présentes

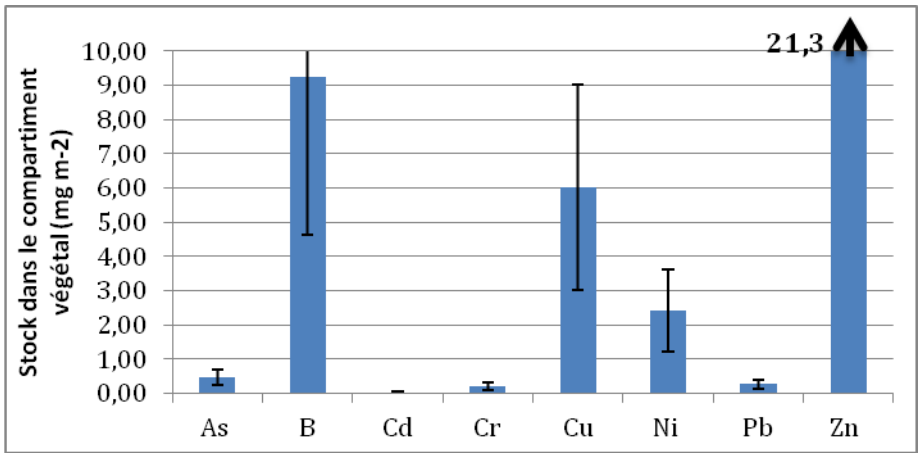


Figure 84 - Teneurs en ETM dans le compartiment végétal de la toiture extensive en avril 2013

1.1.2 Comparaison des stocks dans les végétaux aux flux en entrée et sortie de toiture

Les stocks d'ETM présents dans les végétaux sont comparés aux flux d'ETM atmosphériques totaux et en phases dissoute, aux apports anthropiques ainsi qu'à la différence entre ces flux et ceux en sortie des toitures végétalisées expérimentales. Lorsque cette différence est négative, cela indique une rétention par la structure et, lorsqu'elle est positive, une émission par la structure (Tableau 36).

Le stock de Cr dans les couches végétales des différentes toitures varie de 0,3 à 1 mg m^{-2} selon les structures. Il est donc proche de la quantité de Cr introduite par l'engrais (de l'ordre de 0,8 mg m^{-2}), seul apport anthropique qui s'est avéré significatif. Il est à noter qu'une forte incertitude porte sur l'estimation de ces deux quantités, en raison de l'apport initial manuel d'engrais probablement hétérogène sur l'ensemble des surfaces et de la mesure des quantités de biomasses moyennes des végétaux.

Les stocks de Cr et As présents dans les végétaux sont supérieurs aux apports atmosphériques en phase dissoute recueillis durant la période de suivi des toitures (soit environ 2 ans). Un mélange de végétaux permet de retenir une quantité de B et Ni supérieure aux dépôts atmosphériques en phase dissoute ou supérieure à 90% des apports pour Pb. Enfin, Cu, Zn et Cd sont, par ordre décroissant, les ETM présentant les plus petites parts stockées par rapport aux quantités apportées par l'atmosphère en phase dissoute. Le mélange de la toiture Semi-intensive est celui qui présente les proportions les plus importantes pour l'ensemble des ETM sauf Zn et Cr.

As est le seul ETM dont les quantités stockées dans les végétaux de certaines toitures (Fibre coco et Semi-intensive) sont supérieures aux apports atmosphériques totaux. Ni est ensuite l'ETM représentant la plus grande proportion (50% en moyenne) suivi de B (30% en moyenne). Les parts de Cr et Pb retenus dans les végétaux sont significativement moins importantes que celles relatives à la phase dissoute du fait de la présence majoritaire de ces éléments en phase particulaire. Ainsi, les parts relatives aux apports atmosphériques totaux augmentent selon le classement suivant tout en restant dans des gammes proches de quelques dizaines de % : Pb < Cd < Cr < Zn < Cu.

Enfin, les ratios quantités d'ETM retenues dans les végétaux / quantités retenues par la structure sont comparables à celles des apports atmosphériques globaux, pour Cu (jusqu'à 49% sur la toiture Semi-intensive) et Zn (76% sur la toiture Fibre de coco). En outre, certains stocks d'ETM sont similaires voire supérieures aux quantités émises par les structures, comme pour Ni sur les toitures Fibre coco et Semi-intensive. S'ils n'avaient pas été stockés par les végétaux, ces ETM auraient probablement été rejetés par la structure. Les flux d'ETM en sortie de toitures auraient donc augmenté, induisant une émission encore plus importante par ces structures.

Tableau 36- Rapport entre quantités d'ETM stockées dans les plantes et différences de flux entrée/sortie sur les toitures expérimentales, quantités d'ETM totales et en phase dissoute apportées par l'atmosphère (% à +/- 10% près)

Stock dans les plantes par rapport (%)	Toitures	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Apports atmosphériques phase dissoute	*Vosges*	117	75	5	221	20	49	38	14
	Stockage 40	184	97	15	149	41	122	31	26
	Plateaux calcaires	163	61	6	168	25	43	31	9
	Fibre coco	287	79	13	546	39	92	45	32
	Semi-intensif	552	114	20	460	66	109	93	20
	Extensif	173	79	14	111	33	95	37	22
Apports atmosphériques totaux	*Vosges*	55	26	3	9	11	28	5	9
	Stockage 40	86	34	9	6	23	70	4	18
	Plateaux calcaires	76	21	3	7	14	25	4	6
	Fibre coco	134	27	8	22	21	53	6	22
	Semi-intensif	258	40	12	19	36	62	13	14
	Extensif	81	27	8	4	18	55	5	15
Différence entre flux d'ETM en entrée et sortie de toiture	*Vosges*	-1	-41	3	9	13	124	5	29
	Stockage 40	-138	41	10	6	27	-44	4	13
	Plateaux calcaires	-1	-12	4	7	17	728	5	34
	Fibre coco	-7	41	9	24	26	-115	6	76
	Semi-intensif	-4	-20	13	27	49	-149	14	46
	Extensif	-2	54	10	5	25	-20	5	18

1.2 Evolution dans les substrats et drainages

1.2.1 Cas de Cd, Cr et B

Ces trois ETM sont apportés essentiellement sous forme particulaires (Partie III paragraphe 1.1.2). Les flux en sortie diminuent significativement par rapport à l'entrée pour l'ensemble des toitures végétalisées. La nature du drainage influence donc peu les flux. Ainsi, les substrats jouent un rôle essentiel dans la rétention de ces ETM, sauf le substrat semi-intensif pour B dont les flux augmentent. Le pH élevé et les caractéristiques du sol (matière organique, oxydes de fer et d'aluminium) sont favorables à la rétention de ces polluants (Sartaj *et al.*, 2003 ; Bradl, 2004 ; Marseille & Denot, 2007). Des coefficients de Pearson supérieurs à 0,7 ont d'ailleurs été identifiés entre l'évolution des teneurs en matière organique et en Cd et B dans les toitures munies du substrat Extensif notamment (Tableau 37).

Tableau 37 - Coefficient de Pearson entre l'évolution au cours du temps des teneurs en matière organique et en ETM sur les profils des substrats des différentes parcelles végétalisées

Parcelle végétalisée	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Vosges	0,90	0,88	0,70	0,99	0,94	-0,87	0,70	0,75
Stockage 40	0,52	0,68	0,89	0,86	0,80	0,45	sans objet	0,86
Plateaux calcaires	0,77	1,00	0,31	0,98	-0,47	0,62	0,67	0,80
Fibre coco	-0,63	0,56	0,48	0,89	0,85	0,89	sans objet	0,85
Semi-intensive	0,67	0,68	-0,52	-0,46	-0,83	-0,47	0,39	0,49
Extensive	-0,68	1,00	0,95	-0,66	-0,43	1,00	sans objet	0,39

Probablement en raison des faibles quantités de métaux mobiles apportées, notamment pour Cd, ou Cr, il n'est pas possible d'observer une augmentation significative de la disponibilité de ces ions dans les substrats à l'extraction au NH_4NO_3, DTPA ou selon la norme NF 12457-3. Seules de légères augmentations de la part disponible au niveau de la rhizosphère pour Cr (de l'ordre de 0,02 à 0,08 mg m^{-2}) sont visibles avec la norme NF 12457-3. Ces quantités sont donc significativement plus faibles que les apports d'engrais évoqués dans le paragraphe précédent mais pourraient représenter un reliquat de cet apport anthropique qui n'aurait pas été assimilé par les végétaux.

1.2.2 Cas de Cu, Pb et Ni

Comme pour Cd, B et Cr, les flux de Cu, Pb et Ni ne semblent pas significativement influencés par la présence d'argile expansée ou de structure synthétique au niveau de la couche de drainage. La rétention doit donc avoir essentiellement lieu dans les substrats. Ceci est cohérent avec la forte affinité de ces ETM pour la matière organique notamment, bien présente dans ces matériaux, confirmées par les coefficients de Pearson significatifs entre les teneurs en ETM et en matière organique notamment sur la toiture des Vosges pour Cu et Pb ou encore la toiture Fibre coco pour Cu et Ni (Tableau 37). Les conditions de pH dans l'ensemble des structures sont également optimales pour la rétention de ces espèces et notamment pour Ni qui n'est plus soluble au dessus d'un pH > 6-7 (Marseille & Denot, 2007). De faibles capacités épuratoires globales de Ni ont pourtant été identifiées en sortie des toitures avec substrats semi-intensifs, sans pour autant que les flux sortants soient supérieurs aux flux entrants, ce qui serait la preuve qu'un matériau de la structure a émis cet ETM. Pourtant les caractéristiques physico-chimiques de ce substrat laissent supposer que Ni apportés sur ces parcelles devraient être retenu de la même façon que sur les autres structures végétalisées. Une émission par le substrat inférieur au flux retenu devait donc être présente dès les premières années de vie de la toiture.

Pb et Cu présentent les mêmes tendances d'augmentation des quantités extractibles avec l'essai NF 12457-3 et de diminution de celles issues de l'extraction au NH_4NO_3 et DTPA. Un coefficient de Pearson de l'ordre de 0,75 est obtenu entre les teneurs en matière organique sur les différents profils de substrats et les quantités de Pb extractibles à partir de cet essai. En outre pour Cu, l'augmentation de la phase extractible en avril 2013 par rapport aux prélèvements initiaux représente de l'ordre de 7,5 à 10 mg m^{-2} selon les structures considérées, ce qui est proche des quantités de Cu atmosphérique apporté en phase dissoute et retenu par les différentes structures végétalisées (de l'ordre de 9,5 à 15 mg m^{-2}).

1.2.3 Cas de Zn

Zn est le seul ETM dont les flux sortants sont contrôlés par la nature de la couche de drainage. Les flux en sortie de structure avec l'argile expansée sont en effet inférieurs à ceux observés pour la toiture disposant de la structure synthétique stockante. Une augmentation des teneurs totales et des quantités lixiviables et extractibles au NH_4NO_3 et DTPA est visible dans l'argile expansée de l'ensemble des toitures végétalisées. Les quantités relatives à l'augmentation de la disponibilité au NH_4NO_3 et avec la norme NF 12457-3 sont très inférieures aux diminutions de flux observées entre l'entrée et la sortie de ces toitures, même en considérant uniquement les apports en phase dissoute (de l'ordre de 0,1 mg m^{-2} et 0,01 mg m^{-2} contre une rétention moyenne sur la phase dissoute de 24 mg m^{-2}). Les quantités représentées par l'augmentation de la part extractible au DTPA sont de l'ordre de 18 mg m^{-2} en moyenne, soit beaucoup plus proches des différences de flux observées. Ces ions extraits au DTPA pourraient donc être en grande partie ceux apportés par les dépôts atmosphériques qui sont finalement retenus par l'argile expansée.

1.3 Rôle du filtre

Les quantités d'ETM retenues par le filtre géosynthétique situé entre le substrat et le drainage ont été comparées aux différences de flux entre l'entrée et la sortie des différentes parcelles végétalisées (Tableau 38).

Deux principales tendances se dégagent pour les ETM émis par les matériaux des structures végétalisées (flux négatif). Pour As et B, les quantités retenues sur le filtre sont faibles (de l'ordre de quelques %). Pour Ni, les quantités stockées sont plus importantes que celles émises par la structure pour la toiture Semi-intensive et de l'ordre de 25% pour les toitures Stockage 40, Extensive et Fibre coco. La rétention de particules de substrats par le filtre géosynthétique aurait donc permis de limiter de façon sensible les émissions de Ni sur ces quatre toitures.

Tableau 38 - Quantité d'ETM retenue sur les filtres géosynthétiques rapportées à la différence flux entrant - sortant des parcelles expérimentales (% à +/- 10% près)

Toiture	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Vosges	-3	-2	55	121	7	567	13	6
Structure stockantes	-13	1	22	15	4	-14	0	0
Plateaux calcaires	-3	-1	66	143	8	4150	19	16
Fibre coco	-1	1	17	12	5	-47	0	2
Semi-intensive	-1	0	17	55	3	-109	5	1
Extensive	-1	1	5	6	4	-9	0	0

1.4 Discussion

Principaux mécanismes entrant en jeu dans les compartiments non végétaux

Outre la filtration des métaux apportés via la phase particulaire des dépôts atmosphériques, différentes réactions physico-chimiques contribuent à la rétention des métaux en phase dissoute.

La lixiviation faible de **Cd, Cr et B** à partir des trois **substrats** indique que les **liaisons** formées entre les ETM et ces substrats sont **stables** par rapport à ces tests d'extractions sélectives. Il pourrait s'agir par exemple de liaisons formées avec les **oxy-hydroxydes** présents essentiellement dans la phase minérale de ces différents matériaux, favorisées par un pH élevé qui permet une augmentation des sites chargés négativement sur ces surfaces (Cornu & Clozel, 2000 ; Bradl, 2004).

A l'inverse, l'augmentation de la part extractible selon la norme NF12457-3 et la corrélation avec les teneurs en matière organique dans le **substrat** pour **Cu et Pb** indique la formation de **liaisons avec la matière organique** pour ces éléments dans ces matériaux, en cohérence avec les résultats obtenus en batch pour Cu (Partie II paragraphe 2.1).

Ces deux phénomènes se combinent sur l'argile expansée pour Zn puisqu'une augmentation des quantités d'ions extractibles au DTPA et au NH_4NO_3 est visible sur tous les prélèvements réalisés. Les quantités de Zn extraites au DTPA supérieures à celles extraites au NH_4NO_3 peuvent indiquer une part prépondérante de liaisons stables par rapport aux liaisons plus facilement réversibles comme celles issues des réactions d'échange d'ions. Les essais réalisés en batch et en colonne ont montré que ces deux types de liaison peuvent se former entre Zn et l'argile expansée, selon les conditions expérimentales et notamment le temps de contact entre le matériau et les ions (Partie II). Nécessitant pourtant un temps plus long pour se former que les liaisons issues d'un échange d'ions, des liaisons stables ont toutefois pu se former sur les toitures expérimentales réelles alors qu'elles étaient quasiment inexistantes dans le cadre des essais en colonne. Les conditions hydrodynamiques sur les parcelles expérimentales y sont donc probablement plus favorables que dans le cadre des

essais contraints en colonne. En outre, l'alternance de cycle sec/humide a pu favoriser la stabilisation des ions sorbés à la surface des sols (Han *et al.*, 2001). Une forte précipitation de Zn, notamment avec des carbonates, pourrait également avoir lieu du fait des pH élevés rencontrés (Hlackova, 2005).

Enfin, les teneurs en ETM dans les **filtres** étant fortement liées à celles des substrats, une rétention des particules atmosphériques par ce géosynthétique ne peut donc être établie. Ce matériau contribue toutefois à une amélioration de la qualité de l'eau en **limitant les rejets d'ETM par les substrats sous forme particulaire** comme pour Ni issu des substrats fibre de coco et extensif. L'autre matériau synthétique utilisé dans la structure de toiture végétalisée Stockage 40, la structure synthétique stockante, n'a pas montré de capacité de rétention des ETM spécifiques, en cohérence avec ce qui a pu être observé dans le cadre des essais en batch (Partie II paragraphe 2.1.1).

Estimation de l'évolution à long terme

La variation de disponibilité de Cu dans les substrats représente une sorption de l'ordre de 0,1 à 0,2 mg kg^{-1} selon l'essai NF 12457-3 : 2002. Pour Zn, l'augmentation sur l'argile expansée relative à ce même essai est de l'ordre de 0,005 mg kg^{-1} et celle au DTPA de 1,5 mg kg^{-1}. Le système montre donc une **durée de vie importante avant saturation** si l'on **compare ces quantités aux capacités de sorption évaluées en batch** voire en colonne (de 7,7 à 11 mg kg^{-1} pour Cu sur les substrats et 30 mg kg^{-1} pour Zn sur l'argile expansée en batch, 1,6 mg kg^{-1} de Zn sur l'association substrat / argile expansée en colonne). Cependant, Cu et Zn ne sont pas les seuls ETM présents dans les dépôts atmosphériques. Ainsi les **capacités de sorption individuelle de ces éléments seront inférieures dans un contexte de compétition entre ions** par rapport aux essais en laboratoire réalisé sur des solutions mono-élémentaires (Mesquita & Vieira e Silva , 2002). Les matériaux arriveront donc à saturation plus rapidement. En outre, l'affinité d'un matériau pour des ETM issus d'une solution multi-élémentaire peut être différente par rapport à celle pour ces ETM considérés individuellement (Xue *et al.*, 2009). Lorsque les capacités de sorption du **substrat** pour Cu, Cd, Pb ou B seront **saturées**, les flux non retenus dans cette première couche **pourraient être retenu par l'argile expansée** présente en couche de drainage, grâce à la structure multi-couches des toitures végétalisées. Les essais en batch ont d'ailleurs montré les capacités de rétention importantes de Cu par ce matériau (Partie II). Cependant, les essais en colonne ont mis en évidence que les changements induits sur l'eau par son **passage à travers le substrat** peuvent **diminuer les capacités de sorption de l'argile expansée** (Partie II). En outre, ce matériau peut avoir une affinité moindre pour d'autres ETM. Il ne semble pas avoir eu d'impact significatif sur la rétention de B et Ni émis par certains substrats par exemple (Partie IV).

Enfin, les essais en batch et le test de lixiviation NF 12457-3 indiquent une **remobilisation** importante du Cu initialement sorbé sur les substrats, en lien avec la **dissolution de la matière organique** à laquelle il est associé. Ce phénomène, identifié par Czemiel Berndtsson *et al.* (2005) pour Pb sur une toiture âgée de 7 ans, pourrait concerner à terme l'ensemble des **ETM retenus sur la matière organique** (Bradl, 2004).

Des végétaux qui permettent de limiter les rejets de polluants par les substrats

Les teneurs en ETM étant comparables dans les différentes espèces de sedums, la quantité d'éléments **stockée** par les **végétaux** dépend essentiellement de la **quantité de biomasse** produite.

La forte corrélation entre quantités de Cr apportées par l'engrais et stock dans les végétaux semble indiquer que les plantes ont **retenu en grande partie ces apports anthropiques**, évitant ainsi un rejet potentiel dans les eaux. En termes d'émissions d'ETM par les matériaux, les quantités de B et Ni stockés dans les végétaux présents sur les toitures Vosges, Plateaux calcaires et Semi-intensive pour le premier et Fibre de coco, Extensive et Stockage 40 pour le second, représentent une quantité non négligeable en comparaison de ce qui a déjà été émis par ces structures. En l'absence de végétaux, des flux de B et Ni significativement plus importants auraient probablement eu lieu en sortie de ces structures. Par contre, la forte corrélation observée entre les teneurs dans les végétaux et les teneurs dans les substrats semble indiquer que les métaux retenus sont principalement ceux disponibles dans les substrats et non pas ceux apportés par l'atmosphère. Ainsi, les **végétaux contribuent à l'amélioration de la qualité de l'eau** en sortie de toitures végétalisées **en retenant une partie des ETM mobiles initialement présents dans le substrat**, évitant ainsi leur lixiviation par les eaux de pluie.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Les ETM atmosphériques apportés en phase dissoute sont disponibles pour les végétaux. Il est donc pertinent d'évaluer dans quelle mesure ce compartiment pourrait permettre d'en améliorer le stockage. Une étude à plus long terme est nécessaire pour suivre l'évolution de ces teneurs mais il ne serait donc pas forcément nécessaire de recourir à des espèces présentant des capacités d'hyperaccumulation. En effet, les quantités stockées dans les végétaux sont significatives et plusieurs représentent des stocks plus importants que les flux atmosphériques en phase dissoute correspondant. En outre, il serait possible d'augmenter encore cette capacité de rétention en utilisant des espèces végétales présentant une forte production de biomasse, en particulier au niveau des racines où les teneurs en ETM sont les plus importantes, comme *S. floriferum.* Il faudrait également favoriser la rétention des éléments apportés par l'atmosphère et non pas celle des ETM présents dans le substrat. Réduire ses teneurs initiales en ETM pourrait peut-être amener les végétaux à puiser dans les apports atmosphériques les éléments nécessaires à leur développement comme Cu, B, Ni et Zn (Chassin *et al.*, 1996).

L'utilisation de solutions multi-élémentaires avec des teneurs en ETM proches de celles trouvées dans les eaux de pluie pourrait être préconisée pour la réalisation des essais de sorption. Les résultats de ces essais ne permettraient probablement pas une compréhension fine des mécanismes mis en œuvre du fait de la complexité des interactions présentes. Cependant l'évaluation des capacités de sorption sur les différents ETM serait probablement plus proche que celles obtenues dans le cadre d'essais sur des solutions mono-élémentaires.

La durabilité des capacités de rétentions des ETM par les substrats et drainages est conditionnée à la conservation des caractéristiques physico-chimiques des matériaux, et notamment d'un pH, d'une CEC et de teneurs en $CaCO_3$ et en matière organique élevés comme évoqué précédemment. Malgré une diminution importante de la teneur en matière organique observée pendant la période de suivi de la qualité des eaux (Partie IV paragraphe 1.2.1), la capacité de rétention des ETM plus particulièrement retenus par la matière organique comme Cu et Pb n'a pas diminué. La matière organique restante n'est donc pas encore saturée et permet toujours une rétention des ETM apportés par l'atmosphère. Cependant si cette diminution se poursuit, le système pourrait arriver à saturation prématurément. Il est donc nécessaire de concevoir des substrats qui conserveront au cours du temps les caractéristiques physico-chimiques initiales favorables à la rétention des ETM que sont notamment la présence de matière organique et d'hydroxydes de fer et d'aluminium associées à un pH élevé.

Chapitre 2 : Estimation du potentiel d'émission des matériaux

Pour améliorer la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisées, il est nécessaire de s'attacher à diminuer les émissions d'ETM par les matériaux constitutifs de ces structures. La teneur totale en ETM n'étant pas suffisante pour savoir si un matériau peut induire ou non des rejets dans les eaux pluviales, les différents essais de disponibilité réalisés précédemment (Partie II) ont été analysés au regard de ce qui a été effectivement retrouvé dans les eaux en sortie de toitures. Selon la nature des liaisons qu'ils mettent en évidence, ces tests fournissent des informations sur les mécanismes induisant une émission d'éléments. En outre, ils peuvent permettre d'obtenir une vision de l'évolution des quantités d'élément rejetés de court à moyen terme.

2.1 Corrélation entre les flux émis par les structures et la disponibilité initiale des ETM

La différence entre flux sortant et flux entrant a été comparée aux quantités surfaciques d'ETM totale ou extractibles au DTPA, NH_4NO_3 et selon la norme 12457-3, sur chaque structure dans son ensemble (substrat et drainage cumulé) (Figure 85). Des coefficients de Pearson proches voire supérieurs à 0,75, indiquant une corrélation significative entre l'augmentation de la part extractible et l'augmentation du flux sortant par rapport au flux entrant, ont été relevés pour :

- l'essai relatif à la norme NF 12457-3 avec As et B
- l'extraction au NH_4NO_3 avec Cu et Ni.

En termes d'ordre de grandeur, les quantités émises sont généralement dans les mêmes gammes que les quantités extractibles selon la norme NF 12457-3 mis à part dans les cas suivants :

- quantité émise > stock selon test NF 12457-3 : As pour les toitures avec argile expansée ;
- stock selon test NF 12457-3 > quantité émise > 0 : B pour les toitures avec substrat semi-intensif, Ni pour la toiture avec substrat fibre de coco.

Enfin, la comparaison des quantités extractibles lors des deux étapes différentes du test NF 12457-3 montre que les quantités de Ni émises par les substrats extensif et fibre de coco sont supérieures lors de la 1ère étape, celle de B légèrement supérieure pour la 2nde dans le substrat semi-intensif et enfin plus de 4 fois plus importante lors de la 2nde étape pour As dans l'argile expansée (Tableau 39).

Tableau 39 - Evolution des quantités extraites lors des deux étapes du test de lixiviation NF 12452 – 3 sur les matériaux et ETM montrant des émissions potentielles sur les toitures expérimentales

Matériaux prélevés	Matériau	ETM	Quantité extractible (mg kg^{-1}) lors des deux étapes	
			1ère étape	2nde étape
Avant travaux	*Argile expansée*	*As*	0,07	0,31
	Extensif	*Ni*	0,09	0,06
	Fibre de coco	*Ni*	0,83	0,00
	Semi-intensif	*As*	0,04	0,13
		B	0,86	1,04
		Ni	0,02	0,04
		Zn	0,00	0,04
Avril 2013	*Semi-intensif*	*As*	0,06	0,13
		Ni	0,02	0,03
		Zn	0,01	0,02

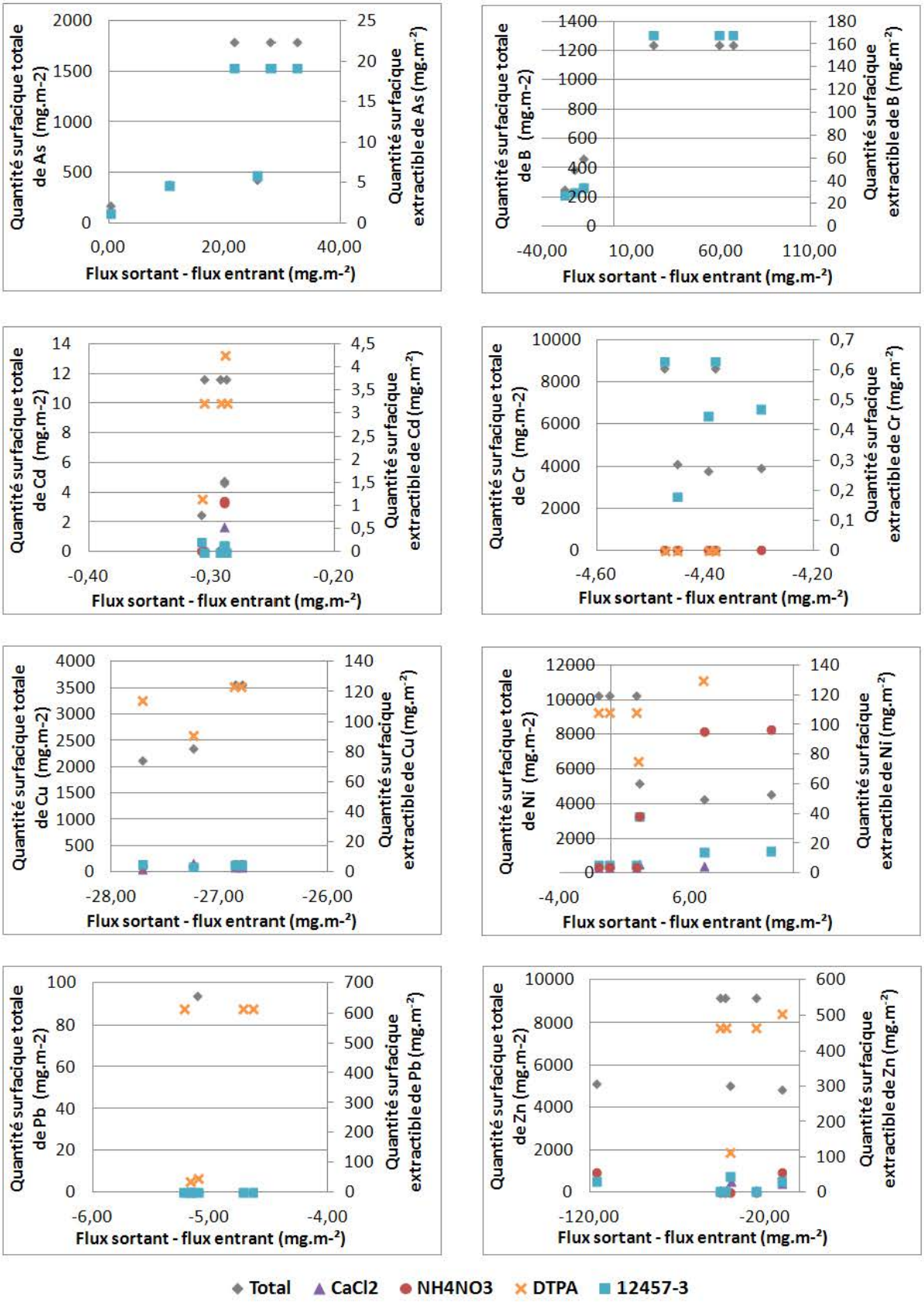


Figure 85 - Corrélations entre les différences de flux sortie-entrée et les quantités d'ETM totales et extractibles dans les différentes structures végétalisées

2.2 Evolution de la disponibilité des ETM

2.2.1 Diminution au cours du temps de la part extractible des ETM des structures

L'évolution des quantités extractibles a été observée pour les différents éléments émis par les structures à partir des tests d'extractions jugés pertinents pour une évaluation des émissions selon les ETM considérés, soit la norme NF 12457-3 pour As et B, NH_4NO_3 pour Ni (paragraphe précédent).

La diminution de la part extractible d'As dans l'argile expansée selon la norme NF 12457-3 est limitée (de l'ordre de 20 %), les quantités disponibles dans ce matériau sont donc encore élevées.

Une diminution moyenne de l'ordre de 80 % du B extractible à partir de cette même norme a été observée sur le substrat semi-intensif pour les trois toitures concernées (Vosges, Plateaux calcaires et Semi-intensive). Malgré cette diminution significative, les quantités extractibles restent non négligeables et supérieures à ce qui a pu être observé à l'état initial dans les deux autres substrats.

La part de Ni extractible au NH_4NO_3 a très fortement diminuée pour les substrats extensif et fibre de coco, passant sous les limites de quantification de la méthode analytique utilisée. Les quantités extractibles sont donc inférieures à 2 % de la part totale pour le 1^{er} et à 5 % pour le 2^{nd} substrat.

2.2.2 Augmentation des émissions au cours du temps : deux principaux mécanismes impliqués

Une émission progressive potentielle de Ni, As et Zn par les toitures Vosges, Plateaux calcaires lorrains et semi-intensive a été identifiée dans la Partie III. Inexistant sur les autres toitures disposant du même drainage, ce phénomène doit donc provenir du substrat semi-intensif.

Ni montre une diminution globale de la part disponible par extraction avec NH_4NO_3 (supérieure à 40 %, la quantité extractible passant en avril 2013 en dessous de la limite de quantification) et via le test de la norme NF 12457-3 (environ 25 %). La comparaison de l'évolution des quantités extractibles lors des deux phases de lixiviation de la NF 12457-3 montre que la diminution des quantités extractibles est surtout visible lors de la seconde étape (Tableau 39). Cette quantité reste cependant supérieure à celle extraite lors de la première étape comme sur les prélèvements initiaux.

Zn est très faiblement extractible au NH_4NO_3 et selon le test de la norme NF 12457-3 dans le substrat semi-intensif par rapport aux deux autres. Une augmentation importante des quantités extractibles au NH_4NO_3 est visible en avril 2013 par rapport aux prélèvements initiaux, en particulier dans la rhizosphère avec une quantité extractible qui passe de 0,1 à environ 60 µg kg^{-1} en moyenne

sur les trois toitures concernées. Une augmentation est également visible dans la première phase de lixiviation de la norme NF 12457-3. Ce phénomène n'est pas présent sur les autres structures végétalisées indiquant que le Zn disponible n'est pas celui qui aurait pu être apporté par les dépôts atmosphériques sous forme particulaire et retenu en surface par exemple.

Enfin As dans ce substrat combine les deux tendances. Il présente d'une part une quantité extractible à la seconde étape de lixiviation de l'essai NF 12457-3 : 2002 près de 3 fois supérieure à celle de la première étape sur les matériaux prélevés initialement. D'autre part, une légère augmentation des quantités extractibles est visible sur les prélèvements d'avril 2013 par rapport aux prélèvements initiaux alors que la teneur totale n'a pas augmenté, notamment lors de la première étape pour ce même essai. As est donc plus disponible dans ce substrat qu'initialement.

2.2.3 Origine de l'arsenic émis par l'argile expansée

L'ensemble des toitures, même la toiture témoin en gravier, présente des flux d'As en sortie supérieurs au flux entrant. Le principal matériau émettant cet élément est l'argile expansée qui induit notamment des concentrations élevées en As, supérieures aux seuils fixés par la DCE pour les eaux de surface et souterraines (Partie I). Ce matériau démontrant par ailleurs des caractéristiques globales (faible masse volumique et forte capacité de rétention d'eau notamment) et des capacités de rétention d'ETM favorables pour un usage en toiture végétalisée, des investigations complémentaires ont été menées afin de vérifier que toutes les argiles expansées ne contenaient pas des quantités d'As totales et disponibles similaires au matériau utilisé sur ces parcelles expérimentales. Deux autres argiles expansées produites par la même entreprise ont donc été testées. La première provient du même site de production au Portugal mais a été fabriquée en 2012 et non en 2010, la seconde est produite au Danemark.

L'argile expansée produite au Danemark présente des teneurs totales en As significativement plus faibles que celles produites au Portugal et utilisée sur les toitures expérimentales (Tableau 40). Ces dernières montrent des différences significatives de quantité de Pb, Cr et Ni extractibles selon les années de production cependant celles d'As sont comparables. La quantité d'As extractible dans l'argile expansée danoise est par contre 4 fois inférieure à celle des argiles expansées portugaises. Le procédé de production de l'argile expansée n'est donc probablement pas responsable de ces fortes teneurs en As.

L'argile extraite du site portugais doit par contre être particulièrement riche en As. Les teneurs présentent dans le sol d'où elle est extraite sont peut-être naturellement élevées, certaines régions portugaises présentant un enrichissement naturel fort pour cet élément (Marquez-Garcia *et al.*,

2012). Une autre hypothèse est qu'elle ait été enrichie par des eaux ou des dépôts atmosphériques par des sources anthropiques. La carrière située près d'Avelar (district de Leiria) est proche d'un point identifié comme présentant des fortes teneurs en As dans les eaux de surface et les mousses (Figueira *et al.*, 2007). Or les argiles ont généralement de fortes capacités de sorption d'As grâce à leurs teneurs importantes en Al_2O_3 et FeO_3 (Haque *et al.*, 2008).

Tableau 40 - Teneurs totales et lixiviables d'ETM dans les argiles expansées présentes sur les toitures végétalisées expériementales, fabriquées en 2012 au Portugal et issues d'un site de production danois

Teneur selon les différents tests (mg kg^{-1})	Argile expansée	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Totale	*TV expérimentale*	20	17	<0,015	11	23	24	<4,01	19
	Portugal 2012	17	15	<0,015	17	22	17	<4,01	26
	Danemark	14	17	0,086	54	53	90	<4,01	68
Extractible à la première lixiviation	*TV expérimentale*	0,070	0,295	0,000	0,001	0,022	0,014	0,001	0,006
	Portugal 2012	0,035	0,384	0,000	0,006	0,016	0,002	0,007	0,007
	Danemark	0,014	0,412	0,000	0,002	0,024	0,034	0,005	0,009
Extractible à la seconde lixiviation	*TV expérimentale*	0,310	0,263	0,000	0,001	0,012	0,023	0,003	0,000
	Portugal 2012	0,411	0,723	0,000	0,010	0,162	0,000	0,028	0,004
	Danemark	0,092	0,443	0,000	0,003	0,158	0,018	0,009	0,003

Un autre matériau a montré précédemment des quantités d'As extractible non négligeable : la couche d'étanchéité bitumineuse (Partie II). Présent sur l'ensemble des parcelles expérimentales, des émissions d'As par ce matériau pourrait expliquer les flux sortant légèrement supérieurs au flux entrant pour la toiture témoin et la toiture Stockage 40, malgré l'absence d'argile expansée. Pour des raisons de préservation de l'étanchéité des bâtiments, des prélèvements sur ce matériau n'ont pas pu être réalisés. Il pourrait cependant être intéressant à l'avenir de mener des essais de vieillissement sur l'étanchéité bitumineuse afin d'évaluer l'évolution des émissions potentielles d'ETM au cours du temps.

2.3 Discussion : des mécanismes d'émissions complexes et évolutifs

Rejets initiaux

La corrélation entre les quantités de **Ni et B** extractibles au NH_4NO_3 et selon la norme 12457-3 respectivement dans les **substrats extensif et fibre de coco** pour le premier élément et **semi-intensif** pour le second, montre que le principal mécanisme induisant ces rejets est la **lixiviation d'ETM présentant des liaisons non spécifiques de types électrostatiques** avec les matériaux (Cornu et

Clozel, 2000). Les diminutions au cours du temps de la part extractible sont en corrélation avec les diminutions progressives de concentrations dans les eaux en sortie entre 2011 et 2013 observées précédemment (Partie III). La forte diminution des quantités extractibles de Ni et l'adéquation entre les quantités extractibles estimées et les flux émis laissent supposer que les rejets de Ni par les substrats extensif et fibre de coco sont très nettement diminués pour les éléments liés électrostatiquement. L'analyse des prélèvements réalisés en avril 2013 ainsi que le fait que la quantité de B émise soit inférieure à la part extractible initiale indiquent que les rejets de B sur les toitures munies du substrat semi-intensif se poursuivront encore pendant quelques mois même si les concentrations et flux induits seront moindres. Ceci confirmerait que le test de la norme **NF 12457-3** permet d'avoir une information sur les éléments qui vont être **émis à moyen terme**, en cohérence avec l'objectif du protocole rédigé pour caractériser au cours du temps la qualité des eaux en CSDU, tandis que les extractions au **NH_4NO_3** indiquent la présence d'**ions rapidement lixiviables** par les eaux pluviales.

Les quantités d'As émises sont supérieures aux quantités disponibles selon le test de la norme 12457-3. En outre, les échantillons prélevés en 2013 ont montré qu'une petite partie seulement de ces éléments extractibles a été lixiviée. D'autres mécanismes que la lixiviation d'As lié électrostatiquement à l'argile expansée doivent donc se produire. La teneur totale en As de l'argile expansée n'a pas non plus évolué mais la part de particules fines a fortement diminué (partie IV). L'augmentation des flux d'As sur les toitures végétalisées disposant d'un drainage en argile expansée provient donc probablement d'un **lessivage de particules fines chargées en As**. Ceci serait d'ailleurs en adéquation avec les capacités épuratoires sur la phase dissoute pour l'arsenic plus faibles que pour les autres ions, voire négatives sur certaines structures (Partie III).

Différents mécanismes à l'origine de nouveaux rejets

Deux phénomènes semblent initier des rejets d'ETM issus du substrat semi-intensif près de deux ans après la mise en œuvre des matériaux. Le premier est comparable à celui induisant une émission de B par ce même substrat notamment avec une quantité significative de Ni et As disponibles à la lixiviation (NF 12457-3) mais seulement lors de la seconde étape, soit à plus long terme que ceux extraits par la première étape de ce protocole ou encore au NH_4NO_3. Ces éléments étaient cependant initialement moins disponibles que B dans ce même substrat ce qui explique cette émission décalée dans le temps. Ceci est peut-être dû en partie à la **décomposition progressive de la matière organique** présente dans ce substrat. Etant données les quantités extractibles évaluées sur les prélèvements d'avril 2013, ces émissions vont probablement se poursuivre dans le temps.

L'As présente également une autre tendance similaire à celle observée pour Zn. La **mobilité des ions augmente** en particulier dans la rhizosphère. Celle-ci pourrait être liée à l'émission d'**exsudats** par les végétaux présents sur la toiture. Ils jouent en effet un rôle important dans la mobilisation du Zn initialement non disponible pour le *S. alfredii*, espèce connue pour ses capacités d'hyperaccumulation de Zn (Li *et al.*, 2011). Ceci pourrait d'ailleurs expliquer que les teneurs en Zn dans ces végétaux sur cette parcelle sont globalement similaires à celles des sedums se développant sur les substrats extensif et fibre de coco malgré une très faible disponibilité initiale de cet ETM dans le substrat semi-intensif par rapport aux deux autres (Partie II et Partie IV). As étant initialement plus disponible sur ce substrat, l'augmentation de la mobilité induit des teneurs globalement plus importantes dans les végétaux de ces toitures par rapport aux autres. Ainsi, la présence des végétaux peut avoir tendance à augmenter la mobilité de certains ETM et induire une émission de ces éléments dans les eaux issues de la structure, s'ils ne sont pas retenus par les végétaux. L'**activité de la faune** du sol ainsi que la libération d'ETM retenus par les végétaux dans le cadre de la **décomposition des racines ou des débris de parties aériennes** peuvent également contribuer à la **modification de la disponibilité des ETM** présents dans le substrat (Glasauer *et al.*, 2013). Un suivi sur le long terme de ces structures est donc nécessaire car ces phénomènes induisent des évolutions tout au long de la vie de la toiture.

Pistes pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées

Pour aider à la sélection de matériaux peu polluants en vue de la construction de toitures végétalisées permettant l'obtention d'une eau de bonne qualité en sortie, il est important de disposer de méthodes d'essais permettant de déterminer rapidement et facilement le potentiel d'émissions des matériaux sans avoir recours systématiquement à des expérimentations *in situ*. Elles restent complémentaires mais également plus longues et plus coûteuses à mettre en œuvre.

Les résultats précédents ont montré qu'il n'y avait pas de corrélations systématiques entre fortes teneurs totales en ETM et émissions significatives par les matériaux. Celles-ci doivent être évaluées grâce à l'estimation de la part disponible pour une lixiviation par les eaux pluviales. Selon les éléments considérés, les essais d'extraction au NH_4NO_3 et selon le test de la norme NF 12457-3 se sont avérés les plus pertinents afin de classer les potentiels d'émissions des différents matériaux, voire d'estimer les ordres de grandeur des flux induits. Ces essais sont complémentaires et semblent fournir des informations qualitatives sur la temporalité des rejets : court terme pour le premier, moyen voire long terme pour le second, une poursuite du suivi de ces toitures étant nécessaire pour évaluer plus précisément cette durée. L'essai de lixiviation NF 12457-3 semble également fournir des informations de ce type. Lorsque la quantité d'ETM extraite lors de la seconde étape de lixiviation est plus importante que pour la première, les rejets s'étaleraient sur une durée plus longue que dans le cas inverse.

L'analyse des teneurs totales et extractibles de différentes argiles expansées fournies par le même producteur montre la variabilité des caractéristiques d'un même produit selon les sites et les années de production notamment. Une fois de plus, ces résultats soulignent l'importance d'une caractérisation systématique des matériaux même s'ils sont fournis par la même entreprise et portent la même dénomination.

Enfin un matériau synthétique, la membrane d'étanchéité, a été identifié comme une source potentielle d'As. La réalisation d'une caractérisation des émissions d'ETM par ce matériau au cours du temps serait pertinente, d'autant plus qu'il est utilisé sur la majorité des toits terrasses, pas uniquement végétalisées, soit une surface globale de l'ordre de 20 fois supérieure à celle de ces dernières. En outre, si le bilan en termes d'ETM reste neutre pour les autres matériaux synthétiques (structure stockante et filtre), ces matériaux ont été identifiés comme des sources de polluants organiques, notamment de bisphénol A, mecoprop et nonylphénols (Lamprea *et al.*, 2013).

Conclusion

Dans les substrats et le drainage minéral (argile expansée), les conditions initiales de pH, de teneurs en matières organiques et la présence d'oxyhydroxydes de fer notamment sont des conditions favorables à la rétention des ETM apportés sous forme libre par les dépôts atmosphériques. Différents mécanismes de rétention peuvent avoir lieu comme la formation de liaison d'échanges d'ions, de liaisons spécifiques ou encore des phénomènes de précipitation. Les végétaux et le filtre géosynthétique jouent un rôle d'amélioration de la qualité des eaux en retenant des ETM émis par les substrats qui auraient sinon été emportés dans les eaux. Les végétaux présentent pourtant des capacités de rétentions qui pourraient permettre de stocker une part non négligeable des éléments atmosphériques en phase dissoute, s'ils ne retenaient pas prioritairement les ETM disponibles dans les substrats. .

Concernant les émissions d'ETM par ces matériaux, deux principaux mécanismes ont pu être identifiés : le lessivage de particules fines et la lixiviation d'ions disponibles. Ces processus peuvent avoir lieu dès la mise en place des matériaux ou démarrer tout au long de la vie de la toiture, sous l'action des végétaux, de la faune ou encore en lien avec la décomposition de la matière organique. La mobilisation d'ETM atmosphériques initialement retenue peut également induire de nouveaux rejets après quelques années.

L'évaluation en laboratoire des capacités de rétentions des ETM par les différents matériaux via des essais en batch et en colonne a permis d'obtenir une fourchette dans laquelle peuvent se situer les capacités de rétentions réelles. Elles n'ont cependant pas pu être évaluées précisément en condition réelle, le système n'étant pas encore arrivé à saturation. Un suivi à plus long terme des structures apparaît donc nécessaire pour définir précisément les capacités et mécanismes induisant la rétention et l'émission d'ETM par une toiture végétalisée, tout au long de la vie de la structure.

DISCUSSION GENERALE

LES TOITURES VEGETALISEES SONT-ELLES UN PUITS OU UNE SOURCE D'ELEMENTS TRACES METALLIQUES ?

La fonction de filtre du système-sol plante permet l'épuration des effluents liquides tels que les eaux usées. Dans le cas des toitures végétalisées, la fonction de filtre pourrait assurer la rétention des polluants issus de l'atmosphère. Cette fonction serait particulièrement utile dans un contexte de gestion à la source des eaux pluviales, qui nécessite une eau en sortie de toiture de bonne qualité. Cependant les capacités épuratoires des toitures végétalisées construites à ce jour sont mitigées car les structures ne sont pas construites dans une perspective de rétention des polluants. Afin d'établir des préconisations pour la construction de structures végétalisées répondant à ces fonctions, une meilleure compréhension des mécanismes induisant rétention et rejet de polluants par les différents matériaux de la structure est nécessaire en vue de favoriser les premiers et limiter les seconds. L'observation de l'évolution de ces mécanismes au cours du temps permet par ailleurs d'obtenir des informations sur l'évolution possible des fonctions de la toiture végétalisée et de vérifier si les capacités de rétention initiales sont en adéquation avec les apports auxquels elle sera soumise tout au long de sa vie. En outre, l'identification d'essais de caractérisation de l'impact des matériaux sur la qualité des eaux permettrait d'éviter de recourir systématiquement à une expérimentation in situ à long terme avant de sélectionner un matériau. De l'échelle de la parcelle à celle de la cellule, le suivi de toitures végétalisées expérimentales complété par des essais menés en laboratoire a permis de répondre à ces objectifs scientifiques et techniques. Cette synthèse propose dans un premier temps une comparaison des caractéristiques des eaux issues des différentes toitures suivies par rapport à la réglementation du domaine de l'eau et aux apports atmosphériques, permettant notamment d'identifier l'impact spécifique de certains matériaux. Dans un second temps, les différents mécanismes pouvant induire une émission puis une rétention d'ETM par les différentes couches de la structure sont discutés, tout comme certains tests pouvant permettre d'évaluer le potentiel d'émission et rétention de chaque matériau. Enfin, la dernière partie identifie des problématiques complémentaires à considérer dans une perspective d'utilisation des toitures végétalisées pour la gestion qualitative des eaux pluviales.

1. Variabilité des flux et concentrations en sortie selon les éléments et les structures

Nos résultats en sortie de toitures végétalisées sont variables selon les éléments considérés et les structures. Comparées aux eaux en entrées, les concentrations en Cd, Cr, Cu et Pb sont majoritairement inférieures en sortie des toitures expérimentales tandis que celles en As, B, Ni et Zn sont généralement supérieures. Par rapport aux réglementations dans le domaine de l'eau et notamment à la *Directive Cadre sur l'Eau*, ces concentrations en sortie dépassent fréquemment les seuils pour As, Ni, Cu, Zn avec la majorité des structures et pour Cr et B pour certaines parcelles. Enfin, les concentrations en ETM issues des toitures végétalisées sont généralement dans les mêmes gammes voire inférieures à celles de toitures classiques, mis à part pour Ni et As qui sont significativement supérieures.

Certains matériaux induisent des augmentations significatives des flux en sortie par rapport à l'entrée. Ainsi deux substrats ont été identifiés comme source de Ni, le troisième de B et le drainage d'As. Pour tous les autres éléments et As, Ni et B dans les structures ne contenant pas ces matériaux, les flux sont inférieurs en sortie par rapport à l'entrée, signe d'une rétention des ETM par les structures. Malgré des concentrations plus élevées en sortie qu'en entrée pour certains de ces éléments, les fortes capacités de rétentions d'eau des structures permettent en effet d'obtenir une diminution des flux.

2. Rétention d'ETM au sein des structures

2.1 Mécanismes

Tout au long de la traversée de la structure végétalisée, plusieurs facteurs peuvent favoriser la rétention des ETM apportés par l'atmosphère. L'ensemble de la structure joue tout d'abord un rôle de **filtre mécanique** sur l'ensemble des ETM apportés sous forme particulaire. En surface, les végétaux retiennent peu d'éléments sur leurs parties aériennes. Il est à noter que les différents mélanges de végétaux présentent des stocks en ETM comparables ce qui incite donc à l'introduction d'espèces végétales locales. Celle-ci permettra en effet de favoriser le développement de la biodiversité en toiture sans dégrader les capacités de rétention globales de la structure. La flore a un rôle indirect sur l'amélioration de la qualité des eaux grâce aux jeunes racines qui, tout comme la

faune du sol, favorisent la formation d'agrégats organo-minéraux dans le substrat permettant de retenir les particules fines. Les différentes phases granulométriques présentes dans le substrat doivent également favoriser la rétention mécanique des particules atmosphériques. Le géosynthétique placé entre le substrat et le drainage a pour fonction d'empêcher le colmatage du drainage par la migration des particules du substrat. Celui-ci permet donc de retenir les ETM présents dans les particules qu'il intercepte et contribue ainsi à limiter les quantités d'ETM en sortie de toitures.

La présence de matière organique et d'oxyhydroxydes de fer ou d'aluminium notamment favorise la **formation de liaisons entre les ETM apportés en phase dissoute et les matériaux minéraux et organiques** (substrats et drainage en argile expansée). Le pH neutre à basique de ces différents matériaux favorise aussi la rétention des ETM en augmentant le nombre de sites d'échanges disponibles et en favorisant la précipitation de ces éléments, limitant ainsi leur mobilité au sein de la structure. La végétation permet également la rétention d'ETM disponibles présents dans le substrat. Des analyses complémentaires comme un traçage isotopique seraient nécessaires pour pouvoir l'affirmer mais il semble que les éléments retenus soient essentiellement ceux présents dans les substrats. Les quantités d'ETM présentes dans ces matériaux sont en effet significativement plus importantes que celles apportées par l'atmosphère et peut-être plus disponibles pour la plante. Cependant, les stocks présents dans la biomasse montrent que les espèces présentes auraient la capacité de retenir les flux annuels de la majorité des ETM atmosphériques, si ceux-ci étaient prioritairement assimilés par les végétaux. Les matériaux synthétiques (filtre et structure stockante en drainage) ont quant à eux des capacités de sorption très limitées.

2.2 Caractérisation des potentiels de rétention des matériaux

Parmi les paramètres qui font l'objet d'une caractérisation dans le cadre des Règles Professionnelles françaises, la comparaison des **teneurs en matière organique et du pH** de différents matériaux peut donner des indications sur le potentiel de rétention de chacun : celui ayant la plus forte teneur en matière organique et le pH le plus élevé devrait être le plus performant. En outre, plus la capacité d'échange cationique sera élevée, plus le matériau permettra de retenir les ETM également. Mais ce paramètre reste rarement étudié sur les matériaux de toitures végétalisées jusqu'à maintenant.

Pour permettre une quantification plus précise des capacités de sorption vis-à-vis de certains ETM, des essais complémentaires en laboratoire sont nécessaires. Représentant respectivement des conditions de sorption particulièrement favorables et défavorables par rapport aux conditions réelles, les **essais en batch et en colonne** permettent d'identifier une **gamme de capacités de**

sorption dans laquelle doit se trouver la capacité de sorption réelle du matériau pour un élément spécifique. Il est cependant à noter que ces essais ont été réalisés dans des solutions mono-élémentaires ne tenant pas compte de la compétition entre les différents cations présente en conditions réelles des toitures végétalisées. Malgré une teneur en matière organique et une CEC inférieures à celles des substrats, l'argile expansée montre cependant les plus fortes capacités de sorption pour Cu et Zn. Les valeurs sont d'ailleurs comparables à celles d'autres biosorbants utilisés dans des filières de traitement des eaux. Les essais de désorption ont montré que différents types de liaisons peuvent se créer selon le temps de contact entre la solution et le matériau. Pour l'argile expansée par exemple, l'agitation et le temps de contact de l'ordre d'une semaine entre le matériau et une solution de Zn^{2+} permet une formation prédominante de liaisons spécifiques peu réversibles. Tandis que les essais dynamiques en colonne induisent la formation de liaisons d'échanges d'ions fortement réversibles. La mise en relation du temps de contact dans la toiture et du temps d'équilibre obtenu via des cinétiques de sorption peut permettre d'établir des hypothèses sur la nature des liaisons prépondérantes entre le matériau et les ETM sous forme ionique.

L'hétérogénéité des substrats, composés de différents matériaux organiques et minéraux, **implique une forte complexité des mécanismes de rétention** au sein de ces matériaux par rapport au drainage en argile expansée. Etudier séparément les trois composants principaux du substrat extensif (pouzzolane, écorce de pin et tourbe blonde) a cependant permis d'établir que l'isotherme de sorption en batch d'un mélange de matériaux peut être estimée à partir des isothermes de chaque matériau considéré individuellement pondérées par la masse qu'ils représentent respectivement dans le mélange. L'écorce de pin et la tourbe blonde ont également montré des capacités de sorption importantes dans le cadre de ces essais. La faible capacité de sorption de la pouzzolane, composant majoritaire du mélange, explique donc les résultats significativement inférieurs obtenus par le mélange.

2.3 Est-il envisageable de diminuer les concentrations en sortie de toitures végétalisées par rapport à celles observées sur ces parcelles expérimentales ?

Le **temps d'équilibre de sorption** entre les ions métalliques et les matériaux obtenu en batch est relativement **élevé** par rapport à d'autres biosorbants. En outre, la conductivité hydraulique des différents matériaux est élevée, induisant un temps de contact avec l'eau limité. Ces différences de temporalité ne sont donc pas favorables à une rétention optimale des ETM par les matériaux de la toiture. La présence d'un système permettant un stockage d'eau en toiture et donc un temps de contact prolongé entre le drainage et l'eau n'a cependant pas permis d'améliorer la qualité de ces

eaux. Selon le fonctionnement hydrodynamique de la structure en présence d'un système de stockage, deux pistes différentes pourraient expliquer ce phénomène. Si ce système induit un stockage prolongé des premières eaux arrivant dans la structure jusqu'à saturation et rejette ensuite directement les eaux consécutives aux pluies suivantes, le temps de contact est prolongé uniquement sur un petit volume des pluies entrantes. A l'inverse, si les eaux stockées sont automatiquement remplacées par celle de la pluie suivante, l'équilibre n'est peut-être pas atteint. Les pluies sont peut-être plus rapprochées que le temps d'équilibre, qui est probablement plus long en conditions réelles qu'en batch du fait de l'absence d'agitation et de la granulométrie plus élevée des particules d'argiles expansées. Utiliser des particules de granulométrie plus faible pourrait donc être une piste pour améliorer la sorption des ions libres et diminuer les concentrations en solution. Diminuer la conductivité hydraulique des matériaux, en jouant également sur la granulométrie ou encore sur la nature des matériaux utilisés, peut également être une solution.

Il est également possible de sélectionner des matériaux démontrant des capacités de sorption importantes pour un ETM spécifique considéré comme problématique dans l'environnement de la toiture à construire. Cependant, il a été observé sur quasiment l'ensemble de ces structures des concentrations moyennes en sortie inférieures à celles apportées par l'atmosphère pour Cd, Cr ou Pb. Les conditions physico-chimiques et hydrodynamiques sont donc particulièrement favorables à la rétention des métaux et semblent loin de la saturation au bout de deux ans en comparaison des capacités de sorptions évaluées en laboratoire. Les concentrations supérieures pour d'autres éléments comme Zn peuvent donc indiquer une émission limitée de cet ETM par les matériaux, malgré une diminution des flux entre l'entrée et la sortie grâce à une forte capacité de rétention des polluants apportés par l'atmosphère. Pour **diminuer significativement les concentrations** en sortie de toiture, il est donc nécessaire de travailler à la **réduction des émissions de polluants par les matériaux** en parallèle de l'amélioration de leurs capacités de rétention.

3. Emission d'ETM par les différents matériaux

3.1 Mécanismes

Les matériaux synthétiques présentent des **teneurs** très faibles en **ETM** tandis que celles des **trois substrats et du drainage en argile expansée ne sont pas négligeables**. Elles dépassent parfois les seuils fixés pour les supports de culture (NF U44-551) ou encore les anomalies naturelles rencontrées dans des sols agricoles. Ces valeurs ont été choisies pour comparaison en l'absence de critère défini spécifiquement pour la végétalisation de toitures. La culture de plantes potagères en

toiture se développant en zone urbaine, il pourrait cependant être pertinent d'introduire dans les Règles Professionnelles des seuils basés sur ceux de la norme NFU 44-551. Cependant la seule présence de ces ETM ne permet pas de savoir s'ils seront émis par les matériaux, et si c'est le cas, à quelle échelle de temps.

Tout comme pour la rétention des ETM, **des mécanismes physiques, chimiques et biologiques induisent des émissions d'ETM** par les différents matériaux constitutifs des structures végétalisées. Tout d'abord, un **lessivage des particules fines** des drainages minéraux peut induire des apports importants d'ETM. C'est notamment le cas de As issu essentiellement sous forme particulaire de l'argile expansée utilisée en drainage sur certaines de ces toitures végétalisées expérimentales. La présence du filtre géosynthétique entre le substrat et la couche de drainage limite ce type de mécanisme d'émission d'ETM issus du substrat.

Une **lixiviation d'éléments disponibles** dans les matériaux peut également se produire, comme pour Ni issu des substrats extensif et fibre de coco ou encore B pour le substrat semi-intensif. La disponibilité de ces ETM peut être immédiate lors de la mise en place du matériau sur la toiture. Les émissions diminuent ensuite progressivement jusqu'à s'annuler à « épuisement du stock ». En parallèle, en lien avec la dégradation de la matière organique, sous l'action des végétaux ou encore de la faune du sol, des ETM initialement non disponibles peuvent devenir mobiles au bout de quelques mois ou années de vie de la toiture. Ces phénomènes ont en effet déjà pu être observés durant les deux ans et demi de suivi réalisés et laissent présager une évolution tout au long de la vie de la structure végétalisées.

3.2 Caractérisation des potentiels d'émissions des matériaux

Les extractions sélectives ainsi qu'un test de lixiviation normalisé initialement destiné aux déchets ont permis de prévoir la disponibilité des ETM dans les matériaux une fois en place sur la toiture végétalisée. Selon les ETM et les matériaux considérés, des corrélations ont pu être établies entre les quantités rejetées et les quantités disponibles estimées par l'extraction au NH_4NO_3 et selon la norme 12457-3, indiquant que les éléments émis sont plus particulièrement ceux initialement liés au matériau par des liaisons d'échanges d'ions. Les émissions d'ETM corrélées au second test semblent indiquer des processus d'émissions qui peuvent débuter seulement quelques mois après la mise en place des matériaux sur la toiture et pas immédiatement comme ceux généralement corrélés au premier test.

4. Un bilan global de gestion des eaux pluviales qui doit dépasser l'analyse du comportement des matériaux de la structure végétalisée à court terme

4.1 Une forte hétérogénéité des caractéristiques des matériaux

Les préconisations présentes dans les Règles Professionnelles fournissent des gammes larges qui expliquent que deux substrats destinés à un même type de toiture végétalisée, extensive par exemple, mais issus de deux fabricants distincts puissent présenter des caractéristiques très différentes. Dans le cadre de ce projet, ce sont notamment les teneurs en matière organique utilisées qui se sont avérées très différentes entre les deux entreprises ayant fourni du substrat. En outre, une multiplicité de matériaux sont utilisés en végétalisation de toiture et présenteront des capacités différentes de rétention et émission comme cela a déjà pu être observé sur les matériaux étudiés dans le cadre de ce projet. Il n'est donc pas possible d'affirmer par exemple qu'un substrat destiné à une toiture semi-intensive sera plus performant en termes de rétention des ETM qu'un substrat pour toiture extensive, malgré une teneur en matière organique normalement moindre dans le second par rapport au premier en lien avec les besoins spécifiques des végétaux implantés sur ces deux types de structure.

Nous avons montré aussi qu'une **même « matière première » pouvait avoir des caractéristiques différentes selon son âge, son origine, son procédé de fabrication ou encore sa provenance**. Des différences ont pu être observées entre les capacités de sorption des écorces de pin et de la tourbe étudiée dans le cadre de ce projet par rapport à des résultats trouvés dans la littérature. Pour l'argile expansée, celle fournie par la même entreprise mais issue d'un autre site de production a montré des potentiels d'émissions d'As beaucoup moins importants. Enfin, les analyses d'un même substrat prélevé sur différentes parcelles ont montré que les teneurs en ETM pouvaient également varier entre différents lots d'un matériau fourni par un seul fabriquant à une période donnée. Des préconisations générales peuvent être faites par rapport aux matériaux comme favoriser des matières organiques dont les fortes capacités de rétentions des ETM sont reconnues, comme l'écorce de pin compostée, ou encore éviter les matériaux recyclés comme les scories qui présentent des teneurs en ETM importantes. Ce type de préconisations pourrait d'ailleurs être intégré aux règles professionnelles afin de sensibiliser les acteurs du domaine à l'usage de matériaux limitant la contamination des eaux pluviales. Cependant, si des résultats spécifiques sont attendus en termes de qualité des eaux en sortie de toiture végétalisée, les potentiels d'émission et rétention d'ETM par les

matières premières utilisées dans la composition des matériaux de la structure doivent être fréquemment évalués à partir des paramètres évoqués précédemment.

4.2 D'autres sources et polluants à considérer

Les modalités d'entretien des toitures végétalisées peuvent également avoir un impact sur la qualité des eaux en sortie et pas seulement en termes d'émissions de nutriments. En effet, contrairement à ce qui est généralement affirmé par les professionnels du domaine, **les engrais utilisés ne sont pas exempts d'ETM**. Celui utilisé dans le cadre de cette expérimentation présentait des teneurs en Cr qui aurait provoqué des flux non négligeables en comparaison des dépôts atmosphériques si les préconisations d'apports annuels d'engrais avaient été suivies. Par ailleurs, si les quantités d'ETM dans les végétaux augmentaient significativement à long terme ou grâce à de nouvelles pratiques, il serait peut-être nécessaire de faire évoluer les pratiques de fauchage voire envisager un renouvellement périodique des végétaux selon l'évolution des tissus contenant les quantités de métaux les plus importantes.

D'autres matériaux présents sur les toitures, **non spécifiques à leur végétalisation, peuvent également induire des émissions d'ETM** comme les multiples pièces métalliques présentes sur les murets ou au niveau des évacuations. La couche d'étanchéité a également été identifiée dans le cadre de ces travaux comme une source potentielle d'As. Quelles soient végétalisées ou non, les toitures peuvent être sources de différents polluants métalliques selon les matériaux de construction utilisés.

Enfin, si les matériaux synthétiques ont démontré un bilan relativement neutre en termes d'émission et rétention de métaux, il n'en est pas de même pour tous les polluants. Il a été démontré par ailleurs que l'étanchéité et la structure stockante utilisées dans le cadre de ce projet étaient responsables de l'émission de différents polluants organiques (Lamprea *et al.*, 2013). Or dans un contexte de gestion durable des eaux pluviales, une attention particulière doit également être portée à ces substances.

4.3 Une étude à long terme nécessaire

Ce travail a permis de suivre l'évolution des flux sortant des différentes parcelles expérimentales pendant deux ans et demi. C'est une **période limitée en comparaison de la durée de vie d'une toiture végétalisée** considérée comme supérieure à 25 ans. Mais des variations d'émissions d'ETM ont pu être observées sur cette courte période. L'étude des matériaux de la toiture a également permis de montrer une évolution significative de leurs caractéristiques physico-chimiques sous l'action des conditions du milieu (conditions climatiques, flore, faune). Une forte diminution des

teneurs en matière organique et des CEC des substrats, en particulier en l'absence de végétaux, a été enregistrée. Un colmatage progressif de certains pores inter- et intra-particulaires, parfois en surface, a également été noté. Il pourrait en résulter un changement du régime hydrodynamique et induire un ruissellement en surface qui limiterait la filtration et la rétention des eaux de pluie par la structure. Or ces deux mécanismes sont prépondérants dans la diminution des flux d'ETM en sortie par rapport à l'entrée.

Concernant les matériaux identifiés comme responsables d'une émission d'ETM, **les résultats des tests de lixiviation et extraction évoqués précédemment laissent supposer que ces rejets vont se poursuivre.** Par exemple, les quantités d'As extraites à partir de la norme 12457-3 sur l'argile expansée prélevée en avril 2013 sont non négligeables. Or la vitesse à laquelle ces ETM seront libérés influencera significativement la qualité de l'eau. En effet, plus elle sera rapide, plus les concentrations seront élevées. L'évolution de la disponibilité des ETM peut également se poursuivre au cours du temps. Il n'a pas été établi de corrélation entre les quantités d'éléments émis dans les eaux par les structures expérimentales et ceux disponibles via l'extraction au DTPA par exemple. Le type de liaisons caractérisées par cet essai est en effet moins réversible que celles rompues par une extraction au NH_4NO_3 notamment. Cependant l'évolution des conditions physico-chimiques pourrait rendre plus mobiles ces ETM après quelques années. Enfin la réalisation des essais de désorption de Cu et Zn sur les substrats a également montré la réversibilité des liaisons initialement établies. Pour Cu notamment, cela provenait d'une dissolution progressive de la matière organique. Des ETM apportés par l'atmosphère et initialement retenus par les matériaux de la structure végétalisée pourront donc être rejetés dans les eaux issues de la toiture quelques années plus tard.

Ces éléments incitent donc à la poursuite du suivi de ces structures afin de caractériser l'évolution de leurs fonctions de rétention et émission des ETM au cours du temps, à l'échelle de la vie de la toiture.

4.4 Perspectives pour la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires

Utiliser les toitures végétalisées en vue de dépolluer les eaux de pluie nécessite donc une conception spécifique avec une sélection de matériaux permettant d'optimiser cette fonction. En complément d'essais grandeur nature menés à long terme permettant de caractériser les capacités de rétention réelle d'une structure, la modélisation pourrait aider à tester en un temps limité l'impact de modalités variées en termes de nature de matériaux mais également d'épaisseurs de chaque couche sur un large panel de polluants à partir de caractérisation des matériaux en

laboratoire. Cela nécessiterait le développement d'un modèle qui prendrait en compte l'ensemble des mécanismes d'émission et de rétention d'ETM identifiés précédemment. Des essais de modélisation des flux de Cu et Zn en phase dissoute au sein de la structure extensive ont été réalisés grâce au logiciel HYDRUS-1D et son module physico-chimique afin de modéliser dans un premier temps les processus de sorptions des ETM apportés en phase dissoute par le substrat et le drainage (Annexe XI). Les résultats obtenus montrent la capacité du modèle à prendre en compte une évolution de la structure (variation de la hauteur de drainage) ou encore sa saturation progressive (évolution selon l'état initial du matériau). Des études complémentaires sont nécessaires pour affiner la modélisation du comportement hydrodynamique de la structure et obtenir des capacités de rétention plus proches de celles observées *in situ*. A terme, l'outil d'aide à la conception devra également prendre en compte l'impact des végétaux sur la rétention des ETM ainsi que les émissions de ces éléments par les matériaux eux-mêmes, afin d'être le plus représentatif possible des différents mécanismes influençant la qualité de l'eau en sortie des toitures végétalisées.

Conclusion

Les toitures végétalisées sont-elles un puits ou une source d'éléments traces métalliques ? Il n'est pas possible d'apporter une réponse catégorique à cette question. Tout d'abord, cela dépend du référentiel considéré, un puits ou une source par rapport à quoi : à l'eau de pluie qui entre dans la structure ou à l'eau issue des toitures « classiques » ? La réponse variera également selon les ETM considérés ou encore l'unité prise en compte, concentration ou flux. Comparées entre elles, différentes toitures végétalisées auront des impacts différents en lien avec les caractéristiques spécifiques des multiples matériaux qui les composent ou encore des pratiques d'entretien auxquelles elles sont soumises. Enfin, la présence de la faune et de la flore notamment en font des structures vivantes qui évoluent au cours du temps. Ces évolutions influencent également les mécanismes induisant les rejets et les émissions d'ETM par les différentes couches de la structure tout au long de sa vie.

Il ressort cependant que les conditions générales en toitures végétalisées (présence de matière organique et de certains minéraux, pH élevé, actions de la faune et de la flore) sont favorables à la rétention des ETM par la formation de liaisons plus ou moins réversibles. Des diminutions de concentration et de flux significatives ont ainsi pu être observées pour certains éléments. Les capacités épuratoires limitées en termes de flux cachent souvent une combinaison d'une rétention importante des polluants atmosphériques associée à une émission limitée par les différents

matériaux qui la constitue. Enfin, les matériaux peuvent également être responsables de l'émission de quantités d'ETM non négligeables via le lessivage de particules fines ou la lixiviation d'éléments disponibles, induisant une détérioration significative de la qualité de l'eau. L'ensemble de ces flux et mécanismes sont synthétisés dans la Figure 86, qui fait notamment apparaître un compartiment qui n'avait pas été identifié dans le schéma de synthèse de la problématique initiale (Figure 1 en Introduction) : la faune du sol.

Toutes les structures de toitures végétalisées ne peuvent répondre à toutes les fonctions potentielles qui leurs sont souvent associées (gestion quantitative des eaux, isolation thermique ou acoustique, biodiversité, esthétique…). C'est pourquoi il est essentiel que le maître d'ouvrage définisse précisément ce qu'il attend de sa future toiture végétalisée bien à l'amont de la construction de celle-ci, afin qu'une structure adaptée à ces attentes soit conçue. Deux cas se présentent alors :

- La fonction attendue par le maître d'ouvrage n'est pas en lien avec la qualité des eaux. Le contexte actuel de protection de la ressource en eau en lien notamment avec la Directive Cadre sur l'Eau et ses objectifs de résultats incite toutefois à limiter les sources de polluants lors du ruissellement des eaux pluviales sur les différentes surfaces urbaines. Ainsi, toutes les structures de végétalisation proposées et les pratiques d'entretien associées devraient démontrer qu'elles n'émettent pas de quantités de polluants significatives
- Le maître d'ouvrage recherche spécifiquement une fonction d'amélioration de la qualité de l'eau, par rapport à l'eau de pluie ou à une toiture classique par exemple dans un contexte de récupération/utilisation ou encore d'infiltration ou rejet direct dans une masse d'eau sensible. En plus du critère précédent, il faudra veiller à choisir des matériaux permettant une rétention optimale des polluants visés.

Pour répondre à ces objectifs, différentes préconisations techniques identifiées dans le cadre de ce travail sont donc recensées sur la Figure 87. Certaines visent à diminuer les émissions d'ETM par la structure ou à améliorer ses capacités de rétentions, d'autres permettent d'atteindre conjointement ces deux objectifs.

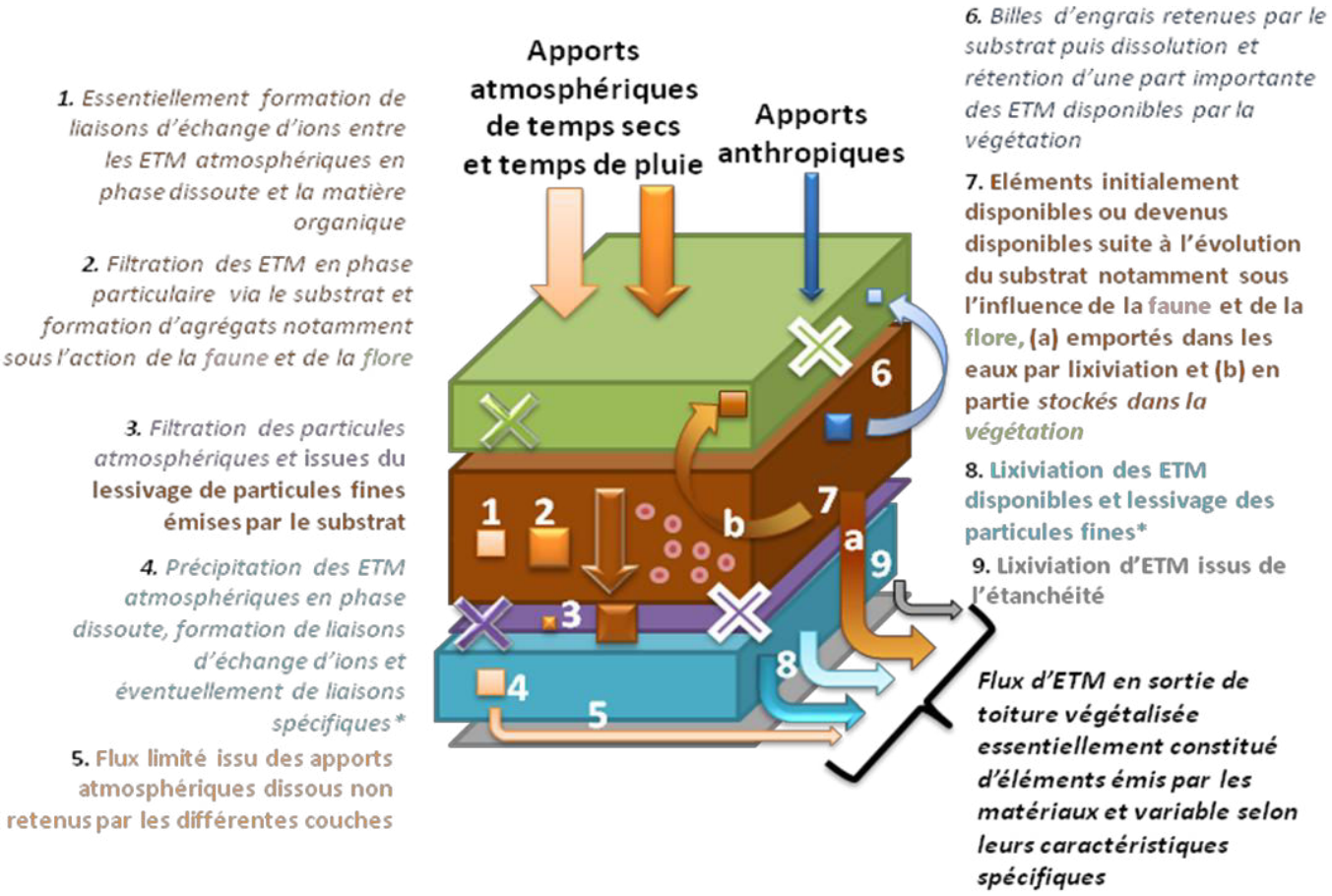


Figure 86 - Schéma récapitulatif des principaux mécanismes induisant une rétention et une émission d'ETM au sein d'une structure de toiture végétalisée

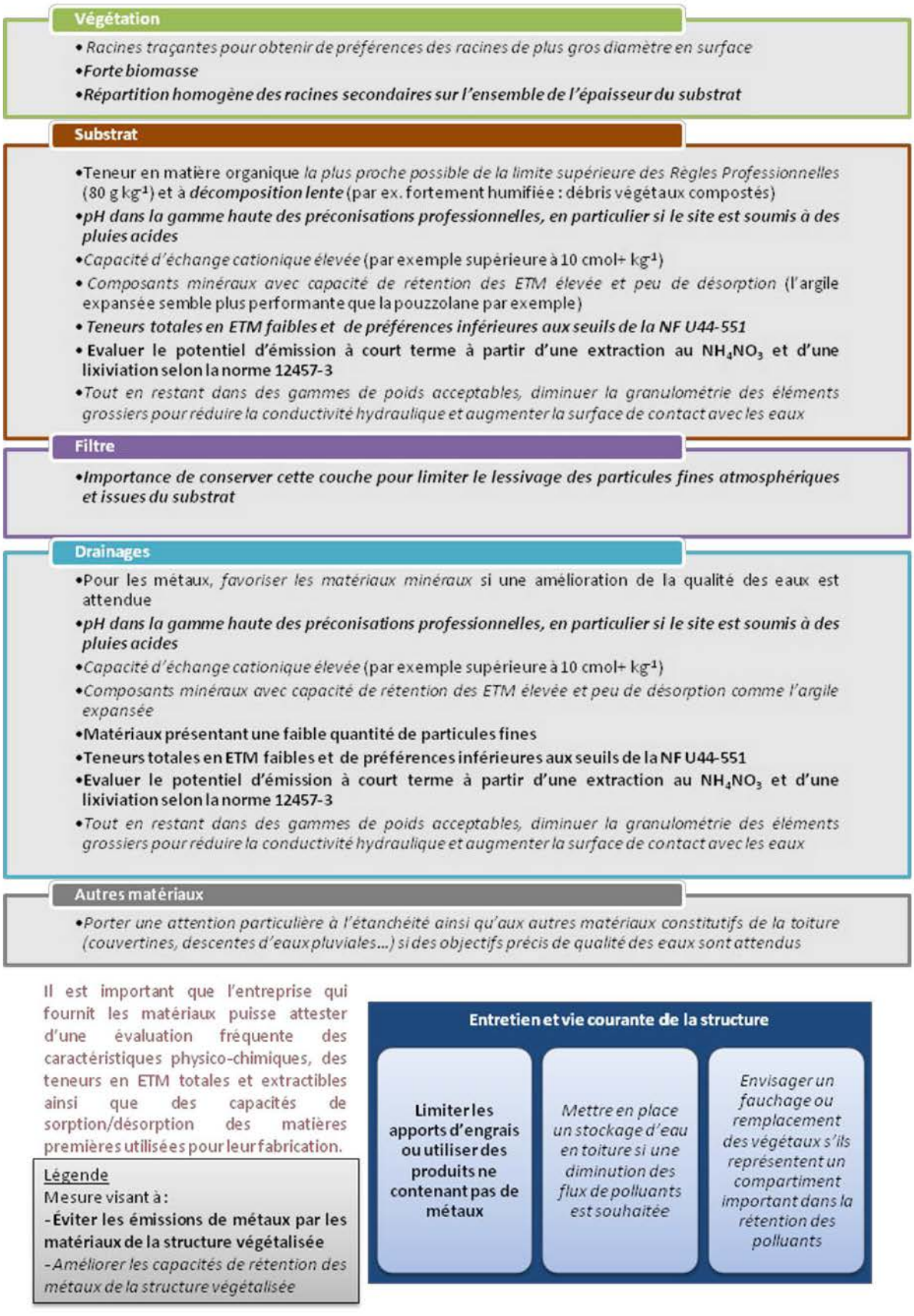


Figure 87- Synthèse des préconisations techniques pour une diminution des flux d'ETM en sortie de toiture végétalisée

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Documents scientifiques

ADIVET, FFB, CSFE, SNPP, UNEP (2007) Règles professionnelles pour la conception et la réalisation des terrasses et toitures végétalisées. Edition n°2, novembre 2007. 36p.

Alloway B.J. (1995) Heavy Metals in Soils.Chemical Principles of Environmental Pollution (with D.C. Ayres), Chapman and Hall. 2nd Ed, pp. 105-121.

Alsup S., Ebbs S., Retzlaff W. (2010) The exchangeability and leachability of metals from select green roof growth. Urban Ecosystems 13, 91-111.

Alvarez-Merino M., Lopez-Ramon V., Moreno-Castilla C. (2005) A study of the static and dynamic adsorption of Zn(II) ions on carbon materials from aqueous solutions. Journal of Colloid and Interface Science 288, pp. 335-341.

American Society of Civil Engineers (2005) The ASCE standardized reference evapotranspiration equation. Final report, January 2005, 70p.

Amin N.U., Hussain A., Alamzeb S., Begum S. (2013) Accumulation of heavy metals in edible parts of vegetables irrigated with waste water and their daily intake to adults and children, District Mardan, Pakistan. Food Chemistry 136(3-4), pp.1515-1523.

Ammann A.A., Hoehn E., Koch S. (2003) Groundwater pollution by roof runoff infiltration evidenced with multi-traver experiments. Water Research 37, pp. 1143-1153.

Apiratikul R., Pavasant P. (2008) Sorption of Cu^{2+}, Cd^{2+} and Pb^{2+} using modified zeolite from coal fly ash. Chemical Engineering Journal 144, pp. 245-258.

Aubry C. (2013) Roof top Gardening : innovative forms of green roofs? World Green Infrastructure Congress 2013, Nantes, 9-13 septembre 2013.

Azimi S., Ludwig A., Thévenot D., Colin J.L. (2003) Trace metal determination in total atmospheric deposition in rural and urban areas. The Science of the Total Environment 308, pp. 247-256.

Azimi S. (2004) Sources, flux et bilan des retombées atmosphériques de métaux en Ile-de-France. Thèse de doctorat, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Paris, 273 p. + Annexes.

Baize D., Jabiol B. (1995) Guide pour la description des sols. Collection techniques et pratiques, INRA, Paris, 375 p.

Baize D. (1997) Teneurs totales en éléments traces métalliques dans les sols (France). Références et stratégies d'interprétation. QUAE Éditions, Paris. 410 pages.

Baize D. (2000) Teneurs en métaux lourds dans les sols français. Résultats généraux du programme ASPITET. Courrier de l'environnement de l'INRA 22, pp.39-54.

Baker A., Mc Grath S., Reeves R., Smith J. (2000) Metal hyperaccumulator plants: a review of the ecology and physiology of a biological ressource for phytoremediation of metal-polluted soils " In Terry N. and Bañuelos G. (ed.) Phytoremediation of contaminated soil and water. Lewis Publishers, Boca Raton, FL, p. 85-107.

Bani A., Echevarria G., Sulce S., Morel J.L., Mullai A. (2007) In-situ phytoextraction of Ni by a native population of Alyssum murale on an ultramafic site (Albania). Plant & Soil 293, pp.79-89.

Barbaroux R., Plasari E., Mercier G., Simonnot M.O., Morel J.L., Blais J.F. (2012) A new process for nickel ammonium disulfate production from ash of the hyperaccumulating plant Alyssum murale. The Science of the Total Environment 423, pp.111–119.

Barraud S., Bacot L., Bedell J.P., Bertrand-Krajewski J.L., Cherqui F., Clozel B., Come J.M., De Becdelièvre 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).

Barraud S., Gautier A., Bardin J.P., Riou V. (1999) The impact of intentional stormwater infiltration on soil and groudwater. Water Science and Technology 39(2), pp. 185-192.

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.

Bengtsson L., Grahn L., Olsson J. (2005) Hydrological function of a thin extensivegreen roof in southern Sweden. Nordic Hydrology 36(3), pp.259-268.

Berghage R., Beattie D., Jarret A., O'Connor T. (2007) Greenroof runoff water quality. In : Greening Rooftops for Sustainable Communities. April 29-May 1 2007, Minneapolis, USA.

Bert V., Lacherez S., Caron L., Lors C., Desailly G., Laboudigue A., Damidot D., Gaucher R. (2009) Phytostabilisation d'un site pollué par les éléments traces: opération pilote et pérennité du traitement. Recueil des sessions posters, 2ème rencontres nationales de la recherche sur les sites et sols pollués, ADEME, 20 et 21 octobre 2009.

Berthier E., de Gouvello B., Archambault F., Gallis D. (2010) Bilan hydrique des toitures végétalisées: vers de meilleures compréhension et modélisation. NOVATECH 2010, Lyon, France, 27 juin - 1er juillet 2010, 10p.

Berthier E., Ramier D., Versini P.A., de Gouvello B., Pinta P., Safitri L. (2013) FAVEUR : un modèle fonctionnel d'évaluation des performances hydrologiques des toitures végétalisées. World Green Infrastructure Congress 2013, 9-13 septembre 2013, Nantes (France).

Bhatnagar A., Sillanpää M. (2010) Utilization Of Agro-Industrial And Municipal Waste Materials As Potential Adsorbents For Water Treatment—A Review. Chemical Engineering Journal 157, pp.277–296.

Bhattacharya A.K., Mandal S.N., Das S.K. (2006) Adsorption of Zn(II) from aqueous solution by using different adsorbents. Chemical Engineering 123, pp.43-51.

Bhattacharyya A.K., Gupta S.S. (2011) Removal of Cu (II) by natural and acid-activated clays: an insight of adsorption isotherm, kinetic and thermodynamics. Desalinisation 272, pp.66-75.

Bhatti H.N., Khalid R., Hanif M.A. (2009) Dynamic biosorption of Zn(II), Cu(II) using pretreated Rosa gruss an teplitz (red rose) distillation sludge. Chemical Engineering Journal 148, pp.434–443.

Bisson M., Hulot C., Lacroix G., Lefèvre J.P., Magaud H., Obserson-Geneste D., Morin A., Pepin G., Pichard A. (2003) Plomb et ses dérivés. INERIS – Riche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, 90p.

Bisson M., Diderich R., Houeix N., Hulot C., Lacroix G., Lefèvre J.P., Lévêque S., Magaud H., Morin A., Pepin G., Pichard A. (2005a) Cadmium et ses dérivés. INERIS – Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, 60p.

Bisson M., Diderich R., Houeix N., Hulot C., Lacroix G., Lefèvre J.P., Lévêque S., Magaud H., Pichard A., Morin A., Rose M., Pepin G. (2005b) Chrome et ses dérivés. INERIS – Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, 80p.

Bisson M., Bonnomet V., Migne-Fouillen V., Jolibois B., Gay G., Lefèvre J.P., Tack K. (2007) Antimoine et ses dérivés. INERIS – Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, 54p.

Blanchon D., Boissière A. (2013) Atlas mondial de l'eau. Défendre et partager notre bien commun. Nouvelle édition augmentée. Editions Autrement, Collection Atlas/Monde, 96p.

Bouzouidja R., Séré G., Claverie R., Lacroix D. (2013) HYDRUS-1D : un outil de simulation de la performance de la rétention de l'eau d'un toit végétalisé. Poster, *World Green Infrastructure Congress 2013*, 9-13 septembre 2013, Nantes (France).

Bradl H. (2004) Adsorption of heavy metal ions on soils and soils constituents. Journal of Colloid and Interface Science, Volume 277, Issue 1, pp.1-18.

Brady N.C., Weil T.T. (2008) The Nature and Properties of Soils. 14th ed. Pearson Prentice Hall. Upper Saddle River, 624p.

Brunet J., Damas O., Michel J.C. (2013) Recensement et caractérisation agronomique des substrats pour toitures végétalisées extensives. Fiche d'étude expérimentale. Plante&Cité, 45p.

Bullock P., Fedoroff N., Tongerus A., Stoops G. Tursina T. (1985) Handbook for soil thin section description. International Societty of Soil Science, Published by Waine Research, 150p.

Burnol A., Piantone P. (2006) Codes de géochimie et de transport: guide pour un bon usage appliqué aux déchets minéraux. Rapport final, BRGM/RP-55042-FR, BRGM, 36p.

Carillo L. (2009) Substrate quality assessment for extensive roof greening according to FLL guideline and quality assessment of resulting drainage water. Travail de fin d'étude pour l'obtention du diplôme d'ingénieur de l'Institut Supérieur des Sciences Agronomiques, Agroalimentaires, Horticoles et du Paysage, 92p.

Carter T. L., Rasmussen T. C.(2007) Hydrologic behavior of vegetated roofs. Journal of the American Water Resources Association 42, pp.1261 - 1274.

CGDD (2012) Mise en œuvre de la directive cadre sur l'eau : position de la France en Europe en 2009. Chiffres et statistiques, n°367.

Chang M., McBroom M., Beasley R.S. (2004) Roofing as a source of nonpoint water pollution. Journal of Environmental Management 73, pp. 307-315.

Chassin P., Baise D., Cambier Ph., Sterckeman T. (1996) Les éléments traces métalliques et la qualité des sols : Impact à moyen et à long terme. Forum « Le sol, un patrimoine menacé ? » Paris, 24 octobre 1996, pp. 297-306.

Chocat B., Battaglia P., Blanchard M., Bouillon H., Guézo B., Norotte O., Thomazeau R. (2003) La Ville et son assainissement. Certu, Ministère De L'equipement, Des Transports Et Du Logement, Du Tourisme Et De La Mer, Editions du Certu, 503p.

Chrastny V., Komarek M., Rochazka J., Pechar L., Vanek A., Penizek V., Farkas J. (2012) 50 years of different landscape management influencing retention of metals in soils. Journal of Geochemical Exploration 115, pp. 59-68

Citeau L. (2006) Transfert eaux-sols-plantes de micropolluants : état des connaissances et applications aux eaux de ruissellement urbaines – Rapport de synthèse. Réalisé par l'INRA de Versailles pour l'Agence de l'Eau Seine-Normandie. 49p. + Annexes.

Claverie R., Ramier D., Sabre M., Mucig C., Schwager J., de Gouvello B., Versini P.A. (2013) Le projet « TERRACES ». Poster, World Green Infrastructure Congress 2013, 9-13 septembre 2013, Nantes (France).

CNT (2007) Green infrastructure community profile. Washington, D.C. Center of Neighborhood Technology, 2p.

Conrad K., Bruun Hansen H.C. (2007) Sorption of zinc and lead on coir. Bioresource Technology 98, pp.89-97.

Cornu S., Clozel B. (2000) Extraction séquentielles et spéciation des éléments traces métalliques dans les sols naturels – Analyse critique. Etude et gestion des sols 7(3), pp. 179-189.

Czemiel Berndtsson J., Bengtsson L. (2005) The influence of extensive vegetated roofs on runoff water pollution loads. 10th International Conference on Urban Drainage, Copenhage, Danemark, 21-26 August 2005, 8p.

Czemiel Berndtsson J., Emilsson T., Bengtsson L. (2006) The influence of extensive vegetated roofs on runoff water quality. Science of the Total Environment, Volume 355 (1-3), pp. 48-63.

Czemiel Berndtsson J. (2008) Seasonal changes of runoff water quality from an extensive vegetated roof. 11th International Conference on Urban Drainage, Edinbourg, Ecosse, UK, 2008, 7p.

Czemiel Berndtsson J., Bengtsson L., Jinno K. (2009) Runoff water quality from intensive and extensive vegetated roofs. Ecological Engineering, Volume 35 (3), pp. 369-380.

Czemiel-Berndtsson J. (2010) Green roof performance towards management of runoff water quantity and quality: a review. Ecological Engineering 36, pp. 351-360.

Davet P. (1996) Vie microbienne du sol et production végétale. Comprendre – INRA éditions, 384p.

Davis C.L., Hinchs S.A., Donkin C.J., Germishuizen P.J. (1992) Changes in microbial population numbers during the composting of pine bark. Bioresource Technology 39, pp. 85-92.

DEB (2012) Bilan national de l'étiage 2011. DEB, Sous-direction de la protection et de la gestion des ressources en eau et minérales, Bureau des eaux souterraines et de la ressource en eau, 23p.

Dembele 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.

Dunnet N., Kingsbury N. (2008) Planting Green Roofs and Living Walls. Revised and updated edition, Timber Press, 327p.

El-Mufleh A., Béchet B., Ruban V., Legret M., Clozel B., Barraud S., Gonzalez-Merchan C., Bedell J-P., Delolme C. (2014) Physical and chemical characterizations of contaminated sediments from two urban stormwater infiltration basins – A synthesis of two decades of works and recommendations for sediment management in the framework of the French observatory for urban hydrology (SOERE URBIS). Environmental Science and Pollution Research 21(8), pp. 5329-5346.

Emilsson T., Czemiel Berndtsson J., Mattsson J., Rolf K. (2007) "Effect Of Using Conventional And Controlled Release Fertiliser On Nutrient Runoff From various vegetated roof systems." Ecological Engineering 29(3), pp. 260-271.

ENSP (2002) Pièce n° 2 : les risques non microbiologiques associés au compostage des déchets. Version du 19 août 2002. Etude FNADE – MEDD, 142p.

Eranthis (2011) Aménagement et eaux pluviales : Préconisations relatives aux toitures végétalisées – Guide. Communauté Urbaine du Grand Lyon, 24P.

Ernewein A. (2010), Analyse socio-économique des freins et leviers pour le Développement des toitures végétalisées en France. Rapport de stage de Master 1 Géographie professionnel, 124p.

Farreny R., Morales-Pinzon T., Guisasola A., Taya C., Rieradevall J., Gabarell X. (2011) Roof selection for rainwater harvesting: quantity and quality assessments in Spain. Water research 45, pp. 3245-3254.

de Felipe, I., Briz, T. (2013) Agriculture in the new framework of green cities. World Green Infrastructure Congress (2013), Nantes, 9-13 septembre 2013.

Figueira R., Sérgio C., Lopes J.L., Sousa A.J. (2007) Detection of exposition risk to arsenic in Portugal assessed by air deposition in biomonitors and water contamination. Int. J. Hyg. Environ. Health 210, pp.393–397.

Fischer P., Jauch M. (2001) Regelmässige Gaben sind nötig. Deutsche Gartbau 25, pp. 17-21.

Flament P. (1985). Les métaux traces associés aux aérosols atmosphériques : apports au milieu marin du littoral Nord-Pas de Calais. Thèse de doctorat, Université des Sciences et Techniques de Lille, 189 p.

FLL (2008), Guidelines for the Panning, Construction and Maintenance of Green Roofing. edition. FLL, 119p.

Folk L. (1951) A comparison for visual chart estimation. Journal of sedementary petrology 21, pp.32-33.

Fournel J., Forquet N., Molle P., Grasmick A. (2013) – Modeling constructed wetlands with variably saturated subsurface-flow for urban stormwater treatment. Ecological Engineering 55, pp. 1-8.

Freundlich, H.M.F. (1906) Über die Adsorption in Lösungen. Zeit. Für Phys. Chem. 57A, pp.385–470.

Gasperi J. Sebastian C., Ruban V., Delamain M, Percot S., Wiest L., Mirande C., Caupos E., Demare D., Diallo Kessoo M., Saad M., Schwartz JJ., Dubois P., Fratta C, Wolff H., Moilleron R., Chebbo G, Cren C, Millet M., Barraud S., Gromaire MC. (2014). Micropollutant contamination of urban stormwater: new insight (land use influence, partitioning, atmospheric contribution) based on an extended French data set. Env. Sc. Poll. Res. A paraître.

Gastaud P., Poulnois S. (2012) Analyse hydraulique des consequences de l'évènement pluviométrique des 21 et 22 mai 2012 (Grand Nancy et proches communes) – Rapport d'étude à destination de la DDT de Meurthe et Moselle. Novembre 2012, 23p.

Getter K., Rowe D. (2006) The role of extensive green roofs in sustainable development. HortScience 41 (5), pp. 1276-1285.

Gherbi N. (2008) Etude expérimentale et identification du processus de rétention des cations métalliques par des matériaux naturels. Thèse de doctorat, Université de Constantine (Algérie), 163p.

Ghorbel Ben Abid M. (2012) Contamination métallique issue des déchets de l'ancien site minier de Jebel Ressas : modélisation des mécanismes de transfert et conception de cartes d'aléa post-mine dans un contexte carbonaté et sous un climat semi-aride. Evaluation du risque pour la santé humaine. Thèse de doctorat, Université de Toulouse, 231p.

Glasauer, S.M., Beveridge, T.J., Burford, E.P., Harper, F.A. and Gadd, G.M. (2013). Metals and metalloids, transformation by microorganisms. In: Elsevier Reference Module: Earth Systems and Environmental Sciences, pp. 1-11.

Gobat J.M., Aragno M., Matthey V. (2010) Le sol vivant. Bases de pédologie - Biologie des sols. 3ème édition revue et augmentée. Presses polytechniques et universitaires romandes, 817p.

Göbel P., Dierkes C., Coldeway W.G. (2007) Storm water runoff concentration matrix for urban areas. Journal of Contaminant Hydrology 91(1-2), pp.26-42.

Godron M. (2012) Ecologie et évolution du monde vivant (Volume 1) Biologie, Ecologie, Agronomie – Editions l'Harmattan, 612p.

Goldhaber S. (2003) Trace element risk assessment: essentiality vs. toxicity. Regulatory Toxicology and Pharmacology 38, pp. 232-242.

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.

Gregoire B., Clausen J. (2011) Effect of a modular green roof on stormwater runoff and waer quality. Ecological Engineering 37, pp. 963-969.

Gromaire-Mertz M.C. (1998) La pollution des eaux pluviales urbaines en réseau d'assainissement unitaire : caractéristiques et origines. Thèse de doctorat, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, 550p.

Gromaire M.C., Garnaud S., Saad M., Chebbo G. (2001) Contribution of different sources to the pollution of wet weather flows in combined sewers. Water Research 35(2), pp.521-533.

Gujisaite V. (2008) Transport réactif en milieux poreux non saturés. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, 232p.

Han F.X., Banin A., Triplett G.B. (2001) Redistribution of heavy metals in arid-zone soils under a wetting–drying cycle soil moisture regime. Soil Sci. 166, pp. 18–28.

Hang P.T., Brindley G.W. (1970) Methylene blue absorption by clay minerals – determination of surface areas and cation exchange capacities (Clay-organic studies XVIII). Clays and Clay Minerals 18, pp. 203-212.

Hanif A., Bhatti H.N., Asif Hanif M. (2009) Removal and recovery of Cu(II) and Zn(II) using immobilized Mentha arvensis distillation waste biomass. Ecological Engineering 35, pp.1427–1434.

Hansen M. (1988) Escape from the pesticide treadmill: alternatives to pesticides in developing countries. International Organization of Consumers Unions and Pesticide Action Network, 1988, 185p.

Haque N., Morrison G., Cano-Aguilera I., Gardea-Torresdey J.L. (2008) Iron-modified light expanded clay aggregates for the removal of arsenic(V) from groundwater. Microchemical Journal 88, pp.7–13.

Hilten R., Lawrence T., Tollner E. (2008) Modeling stormwater runoff from green roofs with Hydrus-1D. Journal of Hydrology 358 (3-4), pp. 288 – 293.

Hlackova P. (2005) Evaluation du comportement du cuivre et du zinc dans une matrice de type sol à l'aide de différentes méthodologies. Thèse de doctorat, INSA de Lyon, 202p.

Ho Y.S., McKay G. (2000) The kinetics of sorption of divalent metal ions onto sphagnum moss peat. Water Research 34(3), pp. 735-742

Ho Y.S., McKay G. (2002) Application of kinetic models to the sorption of copper(II) on to pea. Ads. Sci. Technol. 20, pp.797-815.

Ho Y.S., Ofomaja A.E. (2006) Kinetic studies of copper ion adsorption on palm kernel fibre Journal of Hazardous Materials B137, pp.1796–1802.

Ho Y. S., Wase D. A. J., Forster C. F. (1995) Batch nickel removal from aqueous solution by Sphagnum moss peat. Water Research 29(5), pp.1327-1332.

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.

Huot H., Simonnot M.O., Watteau F., Marion P., Yvon J., De Donato P., Morel J.L. (2013) Early transformation and transfer processes in a Technosol developing on iron industry deposits. European Journal of Soil Science 10/2013, DOI:10.1111/ejss.12106.

Huss J. (2011) Les risques sanitaires des métaux lourds et d'autres métaux. Rapport, Conseil et Assemblée parlementaire de l'Europe, 13p.

Jerez M., Pinelo M., Sineiro J., Nuñez M. J. (2006) Influence of extraction conditions on phenolic yields from pine bark : assessment of procyanidins polymerization degree by thiolysis. Food Chemistry 94, pp.406-414.

Juste C. (1988) Appréciation de la mobilité et de la biodisponibilité des elements traces du sol. Sciences du sol 26(2), pp. 103-112.

Kalmykova Y., Strömvall A.M., Steenari B.M. (2008) Adsorption of Cd, Cu, Ni, Pb and Zn on Sphagnum peat from solutions with low metal concentrations. Journal of Hazardous Materials 152, pp.885–891.

Kamal M., Ghaly A.E., Mahmoud N., Côté R. (2004) Phytoaccumulation of heavy metals by aquatic plants. Environment International 29, pp. 1029-1039.

Katyal J.C., Randhawa N.S. (1986) Les oligo-éléments. Bulletion FAO engrais et nutrition végétale n°7, Organisation des Nations Unies pour l'Alimentation et l'Agriculture, 90p.

Köhler M., Schmidt M. (2003) Study of extensive Green Roofs in Berlin: Part III Retention of Contaminants. International Report, Technical University of Berlin.

La Rocca B., Houeix N., Andres S., Bisson M. (2010) Arsenic et ses dérivés inorganiques. INERIS – Riche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, 90p.

Lagergren S. (1898) Zur Theorie der Sogenannten Adsorption gelöster Stoffe, Kungliga Svenska Vetenskapsakademiens. Handlingar, 24 (4), pp.1-39.

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, Scotland, UK, 11-15 September 2008, 8p.

Lamprea K. (2009) Caractérisation et origine des métaux traces, hydrocarbures aromatiques polycycliques et pesticides transportés par les retombées atmosphériques et les eaux de ruissellement dans les bassins versants séparatifs péri-urbains. Thèse de Doctorat, Ecole Centrale de Nantes, 244p. + Annexes.

Lamprea K., Mirande C., Bressy A., Caupos E., Gromaire M.C. (2013) Processus d'émission de micropolluants par lessivage : étude du potentiel d'émission d'alkylphenol et de bispenol-A par les matériaux de construction et l'automobile. Actes du séminaire de clôture INOGEV & GDEP « Quelles innovations pour la gestion durable des eaux pluviales en milieu urbain ? », Nantes, 3- 5 décembre 2013.

Lamy-Muca E. (2009) Ecoulement et transfert colloïdal dans des matrices hétérogènes et stratifies – Application à des milieux poreux modèles. Thèse de doctorat, Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, 219p.

Lancaster B. (2006) Guiding principles to welcome rain into your life and landscape. In: Rainwater Harvesting for Drylands and Beyond, Volume 1, Rainsource Press, Tucson, Arizona.

Langmuir I. (1916) The constitution and fundamental properties of solids and liquids. J Am. Chem. Soc. 38 (11), pp.2221–2295.

Lassalle F. (2008) Végétalisation extensive des terrasses et toitures: conception et mise en oeuvre, aspects réglementaires, données économiques, exigences et solutions. Edition Le Moniteur, 2ème Edition, Paris, 243p.

Lassalle F. (2012) Le marché des toitures végétalisées et son évolution en France. ème rencontres Toitures Végétalisées, ARRDHOR, La Rochelle , 23 mai 2012.

Legret M. (2001). Pollution et impact d'eaux de ruissellement de chaussées. Laboratoire Central des Ponts et Chaussées. 109 p

Lemaire, F., Dartigues A, Rivière L.M., Charpentier S., Morel P. (2003) Cultures en pots et conteneurs : principes agronomiques et applications. INRA Ed, 232p.

Li Y., Yue Q., Gao B. (2010) Adsorption kinetics and desorption of Cu(II) and Zn(II) from aqueous solution onto humic acid. Journal of Hazardous Materials 178, pp. 455–461.

Li T., Di Z., Islam E., Jiang H., Yang X. (2011) Rhizosphere characteristics of zinc hyperaccumulator Sedum alfredii involved in zinc accumulation. Journal of Hazardous Materials 185, pp. 818-823.

Liaw C.H., Tsai Y.L. (2004) Optimum storage volume of rooftop rainwater harvesting systems for domestic use. Journal of American Water Resources Association 40(4), pp. 901-912.

McCutcheon S.C., Schnoor J.L. (2003) Phytoremediation: transformation and control of contaminants. Hoboken, Wiley-Interscience Editions, 987p.

McKay G., Porter J. (1997) Equilibrium Parameters for the Sorption of Copper, Cadmium and Zinc Ions onto Peat. Journal of Chemical Technology and Biotechnology 69(3), pp. 309-320.

Makepeace D.K., Smith D.W., Stanley S.J. (1995) Urban stormwater quality: sum- mary of contaminant data. Crit. Rev. Environ. Sci. Technol. 25, pp.93–139.

Marquez-Garcia B., Perez-Lopez R., Ruiz-Chancho M.J., Lopez-Sanchez J.F., Rubio R., Abreu M.M., Nieto J.M., Cordoba F. (2012) Arsenic speciation in soils and Erica andevalensis Cabezudo & Rivera and Erica australis L. from São Domingos Mine area, Portugal. Journal of Geochemical Exploration 119–120, pp.51–59.

Marseille F., Denot A. (2007) Mobilité et biodisponibilité des contaminants présents dans les sols aux abords des infrastructures et impact sur la santé – Rapport intermédiaire. Utilisation de CALTOX pour la dispersion numérique. CERTU, SETRA, 85p.

Martinez C.E., Motto H.L. (2000) Solubility of lead, zinc and copper added to mineral soils. Environmental Pollution 107, pp. 153-158.

Mason Y., Ammann A.U., Sigg L. (1999) Behavior of heavy metals, nutrients and major components during roof runoff infiltration. Environmental Science Technology 33, pp. 1588-1597.

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), p. 217-226.

Mesquita M.E., Vieira e Silva J.M. (2002) Preliminary study of pH effect in the application of Langmuir and Freundlich isotherms to Cu–Zn competitive adsorption. Geoderma 106, pp.219–234

Metselaar K. (2012) Water retention and evapotranspiration of green roofs and possible natural vegetation types. Resources, Conservation and Recycling 64, pp. 49-65.

Minceva M., Fajgar R., Markovska L., Meshko V. (2008) Comparative study of Zn^{2+}, Cd^{2+}, and Pb^{2+} removal from water solution using natural clinoptilolitic zeolite and commercial granulated activated carbon. Equilibrium of Adsorption. Separation Science and Technology 43 (8), pp. 1974-2002.

Miretzky P., Muñoz C., Carrillo-Chavez A. (2006) Experimental Zn(II) retention in a sandy loam soil by very small columns. Chemosphere 65, pp.2082-2089.

Molineux C.J., Fentiman C.H., Gange A.C. (2009) Characterising Alternative Recycled Waste Materials For Use As Green Roof Growing Media In The U.K. Ecological Engineering 35, pp.1507–1513.

Monnereau E. (2013) Élaboration de la première étape d'un Outil d'Aide à la Décision pour des toitures végétalisées adaptées aux besoins des maîtres d'ouvrages. Rapport de stage de Master 2 Géographie Aménagement du territoire, Université de Lorraine, 154p.

Moran A., Hunt B., Jennings G. (2005) Hydrologic and Water Quality Performance from Greenroofs in Goldsboro and Raleigh, North Carolina. Paper presented at Green Roofs for Healthy Cities Conference in Washington, D.C. May 2005, 11p.

Morel J.L. (1997a) Assessment of phytoavailability of trace elements in soils. Analusis 25, pp.70-72.

Morel J.L. (1997b) Bioavailability of trace elements to terrestrial plants. Chapter 6, pp 141-176. In : Tarradellas J., Bitton G. and Rossel D. (eds.), Soil Ecotoxicology, Lewis Publishers, CRC Press, Boca Raton, Fl, 400p.

Morel J.L. (2012) La phytoremédiation des sols contaminés: des plantes pour guérir… les sols. In : Amouroux J., Blin E., Coquery M., Fontecave M., Goffé B., Guéritte F., Martin Ruel S., Monsan P., Morel J.L., Rohmer M., Rupp-Dahlem C., Sanchez C., Soussana J.F., Villenave E. La chimie et la nature. EDP Sciences, ISBN: 978-2-7598-0754-3, 300 p.

Mualem Y. (1976) A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. Water Resources Research, 12(3), pp. 513-522, 1976.

Mudhoo A., Garg V., Wang S. (2012) Removal of heavy metals by biosorption. Environ. Chem. Lett. 10, pp. 109–117.

Nabors M. (2008) Biologie végétale - Structures, fonctionnement, écologie et biotechnologies. Pearson Education, 650p.

Nagase A., Dunnet N. (2011) The relationship between percentage of organic matter in substrate and plant growth in extensive green roofs. Landscape and Urban Planning 103, pp. 230-236.

Nasr J. (2013) The roof as a productive resource: new actors and challenges. World Green Infrastructure Congress 2013, Nantes , 9-13 septembre 2013.

Nehrenheim E. (2005) Metal reduction from landfill leachate by using blast furnace slag and pine bark – discussion about the pararameters significant for metal removal. Kalmar Eco-Tech ’05, Sweden.

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, pp.1571–1577.

Nriagu J.O., Pacyna J.M. (1988) Quantitative assessment of worldwide contamination of air,water and soils by trace metals. Nature 333, pp.134-139.

Nriagu J.P. (1990) Human influence on the global cycling of trace metals. Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology, Global and Planetary Change Section 82 , pp.113-120

NRMMC (2009) Australian Guidelines for Water Recycling - Stormwater harvesting and reuse. National Water Quality Management Strategy. Document N°23, 140p.

Nwachukwu, O.I., Pulford, I. (2008) Comparative effectiveness of selected adsorbant materials as potential amendments for the remediation of lead, copper and zinc-contaminated soil. Soil Use and Management 24, pp. 199-207.

OFEFP (1991) Les métaux lourds et le fluor dans les engrais minéraux. Cahier de l’environnement n°162 – Sol, OFEFP, 57p.

Pacyna E., Pacyna J., Fudala J., strzelecka-Jastrzab E., Hlawickza S., Panasiuk D., Nitter S., Pregger T., Pfeiffer H., Freidrich R. (2007) Current and future emissions of selected heavy metals to the atmosphere from anthropogenic sources in Europe. Atmospheric Environment 41, pp. 8557-8566.

Pacyna J.M., Pacyna E.G. (2001) An assessment of global and regional emissions of trace metals to the atmosphere from anthropogenic sources worldwide. Environmental Reviews 9, pp.269-298.

Palla A., Sansalone J., Gnecco I., Lanza L. (2010) Storm water infiltration in a monitored green roof for hydrologic restoration. In proceedings of NOVATECH 2010, Session 1.3, , Lyon, France, 27 juin - 1er juillet 2010, 10p.

Paradelo R., Barral M.T. (2012) Evaluation of the potential capacity as biosorbents of two MSW composts with different Cu, Pb and Zn concentrations. Bioresource Technology 104, pp.810-813.

Patel S., Tomar R., Gajera H., Golakiya B.A., Parakhia M.V. (2010) Handbook of Life Sciences. New India Publishing Agency, 792p.

Pédro G. (1979) Précis de pédologie. Tome II, Constituants et propriétés. In Duchaufour et Souchier, Masson Paris éditions, 480p.

Percot S. (2012) Contribution des retombées atmosphériques aux flux de polluant issus d'un petit bassin versant urbain – Cas du Pin Sec à Nantes. Thèse de Doctorat, IFSTTAR, 252p.

Pey B. (2010) Contribution de la faune du sol au fonctionnement et à l'évolution des Technosols. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, 304p.

Pilon-Smits E., Hart H., Meesterburrie J., Naber P., Kreuler R., Van Brederode J. (1991) Variation in crassulacean acid metabolism within the genus sedum : carbon isotope composition and water status dependant phosphoenolpyruvate carboxylase activity. Journal of Plant Physiology, 137, pp.342-346.

Pousset J. (2003) Guide - Agriculture sans herbicides - Principes et méthodes. Editions Agridécisions, 705p.

Pyrzynska K., Bystrzejewski M. (2010) Comparative study of heavy metal ions sorption onto activated carbon, carbon nanotubes, and carbon-encapsulated magnetic nanoparticles. Colloids and Surfaces A: Physicochemical Engineering Aspects 362, pp.102–109.

Quek S. Y., Al-Duri B, Wase D. A. J., Forster C. F. (1998) Coir as a biosorbent of copper and lead. Institution of Chemical Engineers, Volume 76, Part B, pp. 50-54.

Quek S.Y., Al Duri B. (2007) Application of film-pore diffusion model for the adsorption of metal ions on coir in a fixed-bed column. Chemical Engineering and Processing 46, pp. 477-485.

Ramier D., Berthier E ?, de Gouvello B. (2010) Bibliographie et plan d'expérience sur le comportement hydrique des toitures végétalisées. Livrable L.2.1 du projet TVGEP, 16p.

Raskin I., Smith R.D., Salt D. E. (1997) Phytoremediation of metals : using plants to remove polluants from the environment. Current Opinion in Biotechnology 1997(8), 221-226.

Robert-Sainte P. (2009) Contribution des matériaux de couverture à la contamination métallique des eaux de ruissellement. Thèse de doctorat, Université Paris-Est, 426 p.

Rowe D., Monterusso M., Rugh C. (2006) Assessment of Heat-expanded Slate and Fertility Requirements in Green Roof Substrates. HortTechnology 16 (3), pp.471-477.

Sabin L., Lim J.H., Stolzenbach,K., Schiff K. (2005) Contribution of trace metals from atmospheric deposition to stormwater runoff in a small impervious urban catchment. Water Research, Volume 39, Issue 16, pp.3929-3937.

Sansalone J.J., Buchberger S.G. (1995) An infiltratation device as a best management practice for immobilizing heavy metals in urban highway runoff. Water Science and Technology Vol. 32 (1), 119-125.

Sartaj M., Fernandes L. (2005) Adsorption of boron from landfill leachate by peat and the effect of environmental factors. Journal of Environmental Engineering and Science 4 (1), pp.19-28.

Schmidt M., Gonzalez J., Halvorson J., Hagerman A. (2013) Metal mobilization in soil by two structurally defined polyphenols. Chemosphere 90(6), pp. 1870-1877.

Scholtus N., Leclerc E., De Donato P., Morel JL., Simonnot M.O. (2009) Eluto-frontal chromatography to simulate chemical weathering of COx by low-molecular-weight organic compounds and early pedogenesis processes. European Journal of Soil Science 60, pp.71-83.

Schuber M., Kluge M. (1981) In situ studies on Crassulacean Acid Metabolism in Sedum acre L. and Sedum mite Gil. Oecologia 50, pp.82-87.

Schwager J., Irles A. (2013) Introduction de végétaux locaux sur des toitures végétalisées en Lorraine : retours d'expériences. Poster, World Green Infrastructures Congress, France, 9-13 septembre 2013 Nantes.

Schwager J., Irles A., de Gouvello B. (2013a) Vegetative roof maintenance issues : some recommendations based on a diagnosis of current practices, from the builder to the owner. Présentation orale, World Green Infrastructures Congress, France, 9-13 septembre 2013 Nantes.

Schwager J., Tisserand A., Ruban V., Morel J.L., Laurent J., Wanko A. (2013b) Modélisation des transferts de micropollutants métalliques à travers des toitures végétalisées : quel intérêt pour leur conception ? Actes du séminaire de clôture INOGEV & GDEP « Quelles innovations pour la gestion durable des eaux pluviales en milieu urbain ? », Nantes, 3-5 décembre 2013.

Schwartz C., Echevarria G., Morel J.L. (2003) Phytoextraction of cadmium with Thlaspi caerulescens. Plant & Soil 249, pp.27-35.

Seidl M., Gromaire M.C., Saad M., de Gouvello B. (2013) Effect of substrate depth and rain-event history on the pollutant abatement of green roofs. Environmental Pollution 183, pp. 195-203.

Seki K., Saito N., Aoyama M. (1997) Removal of heavy metal ions from solutions by coniferous bark. Wood Science and Technology 31, pp. 441-447.

Séré G., Schwartz C., Ouvrard S., Renat J.C., Watteau F., Villemin G., Morel J.L. (2010) Early pedogenic evolution of constructed Technosols. Journal of Soils & Sediments 10, pp.1246-1254.

Sharma A., Tjell J., Sloth J., Holm P. (2014) Review of arsenic contamination, exposure through water and food and low cost mitigation options for rural areas. Applied Geochemistry 41, pp. 11-33.

Shriver D., Atkins P. (1999) Chimie inorganique, 3ème édition. De Boeck Université, 765p.

Shukl 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, pp. 141–147.

Singh B.R., Steinness E. (1994) Soil and water contamination by heavy metals. In Soil processes and water quality, Edition Lewis, pp. 233-271.

Skinner S. (2005) Proper Soil Selection For Garden Roofs: A Primer. Design Cost Data, nov- dec 2005, 2p.

Snodgrass E., Snodgrass L. (2006) Green Roof Plants: A Resource and Planting Guide. Timber Press Incorporated, 220p.

Speak A., Rothwell J., Lindley S., Smith C. (2014) Metal and nutrient dynamics on an aged intensive green roof. Environmental Pollution 184, pp. 33-43.

Sterckeman T., Douay F., Baize D., Fourrier H., Proix N., Schwartz C. (2007) Référentiel Pédo-Géochimique du Nord-Pas de Calais - Méthode et principaux résultats. Etude et Gestion des Sols 14 (2), pp.153-168.

Steusloff S. (1998) Input and output of airborne aggressive substances on green roofs in Karlsruhe. In: Breuste J., Feldmann H., Uhlmann O. editors. Urban Ecology 1998, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Germany, pp. 144-148.

Stovin V., Poë S., Berretta C. (2013) A modelling study of long term green roof retention performance. Journal of Environmental Management 131, pp. 206-215.

Tack K., Joachim S., Chancerelle L. (2008) Biodisponibilité et spéciation : bilan sur les modèles BLM. Convention ONEMA-INERIS 2008, Action N°14, 38p.

Taty-Costodes C., Fauduet H., Porte C., Ho Y.S. (2005) Removal of lead(II) ion from synthetic and real effluents using immobilized Pinus sylvestris sawdust : Adsorption on a fixed-bed column. Journal of Hazardous Materials B123, pp. 135-144.

Thomas H. (2012) Plant senescence. In: Biological Science Fundamentals and Systematics (Eds. A Minelli, G Contrafatto). 76p. Encyclopedia of Life Support Systems (EOLSS), Developed under the Auspices of the UNESCO, Eolss Publishers, Oxford ,UK, [http://www.eolss.net].

Teemusk A., Mander U. (2007) Rainwater runoff quantity and quality performance from greenroof: the effect of short-term events. Ecological Engineering 30, pp. 271-277.

Tremel-Schaub A., Feix I. (2000) Contamination des sols : transferts des sols vers les plantes. EDP Sciences et ADEME éditions, 413p.

US EPA (2005) National Management Measures to Control Nonpoint Source Pollution from Urban Areas. US EPA, Office of Water, 518p.

Van De Voorde A. (2012) Incidence des pratiques d'entretien des toitures sur la qualité des eaux de ruissellement - Cas des traitements par produits biocides. Thèse de doctorat, Université Paris Est, 277p.

Van Genuchten M. (1980) A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soils Science Society of America Journal 44, pp. 892-898.

Vander Linden W. (2008) Wet Weather Performance of an extensive vegetated roof in Waterloo, Ontario. Thèse de Master, Master of Environemental Studies in Planning, 140 p.

Van Seters T., Rocha L., Smith D., McMillan G. (2009) Evaluation of green roofs for runoff retention, runoff quality and leachability. Water Qual. Res. J. Can. 44(1), pp. 33-47.

Vergroesen T., Joshi U. M. (2010) Green roof runoff experiments in Singapore. In proceedings of NOVATECH 2010, Session 1.3, Lyon, France, 27 juin - 1er juillet 2010, 10p.

Versini P.A., Jouve P., Ramier D., Berthier E., de Gouvello B. (2013) Hydrological impact of green roofs on urban runoff at the watershed scale – Case studies in the Hauts-de-Seine county (France). In proceedings of NOVATECH 2013, Lyon, France, 23-27 June 2013, 9p.

Vialle C. (2011) Etude du comportement hydraulique, physico-chimique et microbiologique d'un système de récupération d'eaux de toiture. Evaluation de l'empreinte environnementale. Thèse de doctorat, Université de Toulouse, 335p.

Vijayaraghavan K., Joshi U.M., Balasubramanian R. (2012) A field study to evaluate runoff quality from green roofs. Water Research 46, pp. 1337-1345.

Virginia Department of Conservation and Recreation. 2010. Virginia DCR Stormwater DesignSpecification No. 5 Vegetated Roof Version 2.2. http://www.vwrrc.vt.edu/ Dernière consultation le 31 janvier 2014.

Voegelin A., Barmettler K., Kretzschmar R. (2003). "Heavy Metal Release from Contaminated Soils: Comparison of Column Leaching and Batch Extraction Results."J. Environ. Qual. 32(3), pp. 865-875.

Vohla C., Koiv M., Bavor J., Chazarenc F., Mander U. (2009) Filtrer materials for phosphous removal from wastewater in treatment wetlands - A review. Ecological Engineering 37(1), pp. 70-89.

Walker D.J., Hurl S. (2002) The reduction of heavy metals in a stormwater wetland. Ecological Engineering 18, pp. 407-414.

Wang J., Chen C. (2009) Biosorbents for heavy metals removal and their future. Biotechnology Advances 27, pp. 195-226.

Wang S., Peng Y. (2010) Natural zeolites as effective adsorbents in water and wastewater treatment. Chemical Engineering Journal 56, pp.11-24.

Ward S., Memon F.A., Butler D. (2010) Harvested rainwater quality: the importance of appropriated design. Water Science and Technology 61(7), pp.1707-1714.

Weber T.W., Chakraborty R.K. (1974) Pore and solid diffusion models for fixed bed absorbers. American Institute of Chemical Engineering 20, pp.228-238.

Wei Y., Li H., Yamada N., Sato A., Ninomiya Y., Honma K., Tanosaki T. (2013) A miscroscopic study of the precipitation of metallic iron in slag from iron-rich coald during high temperature gasification. Fuel 103, pp. 101-110.

Wingenfelder U., Hansen C., Furrer G., Schulin R. (2005) Removal of heavy metals from mine waters by natural zeolites. Environmental Science Technology 39, pp. 4606-4613.

WHO (2000) Global Water Supply and Sanitation Assessment. World Health Organization, Geneva, 80p.

Wu Q.T., Wei Z.B., Ouyang Y. (2007) Phytoextraction of metal-contaminated soil by sedum alfredii H: effects of chelator and co-planting. Water, Air and Soil Pollution, Volume 180, Issue 1-4, pp. 131-139.

Xue Y., Hou H., Zhu S. (2009) Competitive adsorption of copper(II), cadmium(II), lead(II) and zinc(II) onto basic oxygen furnace slag. Journal of Hazardous Materials 162, pp.391–401.

Yang X.E., Ye H.B., Long X.X., He B., He Z.L., Stoffella P.J., Calvert D.V. (2005) Uptake and accumulation of cadmium and zinc by Sedum alfredii at different Cd/Zn supply levels. Journal of Plant Nutrition 27, pp. 1963-1977.

Ye J., Liu C., Zhao Z., Li Y., Yu S. (2013) Heavy metals in plants and substrate from simulated extensive green roofs. Ecological Engineering 55, pp. 29-34.

Yong R.N., Mohaned A.M.O., Warkentin B.P. (1992) Principles of Contaminant Transport in Soils. Elsevier, 327p.

Yu J., Tong M., Sun X., Li B. (2006) Cystine-modified biomass for Cd(II) and Pb(II)biosorption. Journal of Hazardous Materials 132, pp.126–139.

Zhang Y., Banks C. (2006) A comparison of the properties of polyurethane immobilised Sphagnum moss, seaweed, sunflower waste and maize for the biosorption of Cu, Pb, Zn and Ni in continuous flow packed columns. Water Research 40, pp.788 – 798.

Zimdahl R. (2010) A History of Weed Science in the United States - Chap. 6 : Development of herbicides after 1945. Elsevier Inc. 207p.

Zobrist J., Müller S.R., Amman A., Bucheli T.D., Mottier V., Ochs M., Schoenneberger R., Eugster J., Boller M. (2000) Quality of roof runoff for groundwater infiltration. Water Research 34 (5), pp. 1455-1462.

Réglementations

Arrêté du 11 janvier 2007 relatif aux limites et références de qualité des eaux brutes et des eaux destinées à la consommation humaine mentionnées aux articles R. 1321-2, R. 1321-3, R. 1321-7 et R. 1321-38 du code de la santé publique.

Arrêté du 21 août 2008 relatif à la récupération des eaux de pluie et à leur usage à l'intérieur et à l'extérieur du bâtiment.

Arrêté du 17 décembre 2008 établissant les critères d'évaluation et les modalités de détermination de l'état des eaux souterraines et des tendances significatives et durables de dégradation de l'état chimique des eaux souterraines.

Arrêté du 17 juillet 2009 relatif aux mesures de prévention ou de limitation des introductions de polluants dans les eaux souterraines.

Arrêté du 25 janvier 2010 modifié relatif aux méthodes et critères d'évaluation de l'état écologique, de l'état chimique et du potentiel écologique des eaux de surface, pris en application des articles R.212-10, R.212-11 et R.212-18 du code de l'environnement.

Arrêté du 2 août 2010 relatif à l'utilisation d'eaux issues du traitement d'épuration des eaux résiduaires urbaines pour l'irrigation de cultures ou d'espaces verts.

Circulaire du 23 octobre 2012 relative à l'application de l'arrêté du 17 décembre 2008 établissant les critères d'évaluation et les modalités de détermination de l'état des eaux souterraines et des tendances significatives et durables de dégradation de l'état chimique des eaux souterraines

Circulaire du 29 janvier 2013 relative à l'application de l'arrêté du 25 janvier 2010 modifié établissant le programme de surveillance de l'état des eaux, pour les eaux douces de surface (cours d'eau, canaux et plans d'eau).

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

DIRECTIVE 2006/7/CE DU PARLEMENT EUROPÉEN ET DU CONSEIL du 15 février 2006 concernant la gestion de la qualité des eaux de baignade et abrogeant la directive 76/160/CEE Directive 2008/105/CE

Directive 2008/105/CE du Parlement européen et du Conseil du 16 décembre 2008 établissant des normes de qualité environnementale dans le domaine de l'eau, modifiant et abrogeant les directives du Conseil 82/176/CEE, 83/513/CEE, 84/156/CEE, 84/491/CEE, 86/280/CEE et modifiant la directive 2000/60/CE

Résolution législative du Parlement européen du 2 juillet 2013 sur la proposition de directive du Parlement européen et du Conseil modifiant les directives 2000/60/CE et 2008/105/CE en ce qui concerne les substances prioritaires pour la politique dans le domaine de l'eau

Rubrique 2.1.5.0 de la nomenclature de l'article R. 214-1 du Code de l'Environnement.

Normes

BSI British Standards (2009) BS 8515:2009. Rainwater harvesting systems - Code of practice. 50p.

NF 12457-3 (2002) Caractérisation des déchets - Lixiviation - Essai de conformité pour lixiviation des déchets fragmentés et des boues - Partie 3 : essai en bâchée double avec un rapport liquide-solide de 2 l/kg et de 8 l/kg pour des matériaux à forte teneur en solides et une granularité inférieure à 4 mm (sans ou avec réduction de la granularité.

NF ISO 10390 (2005) Qualité du sol - Détermination du pH

NF ISO 10694 (1995) Qualité du sol - Dosage du carbone organique et du carbone total après combustion sèche (analyse élémentaire)

NF ISO 11263 (1995) Qualité du sol - Dosage du phosphore - Dosage spectrométrique du phosphore soluble dans une solution d'hydrogénocarbonate de sodium.

NF ISO 11466 (1955) Qualité du sol – Extraction des éléments en traces solubles dans l'eau régale.

NF ISO 13878 (1998) Qualité du sol - Détermination de la teneur totale en azote par combustion sèche ("analyse élémentaire").

NF X 31-106 (2002) Qualité des sols - Détermination du calcaire actif.

NF X 31-107 (2003) Qualité du sol - Détermination de la distribution granulométrique des particules du sol - Méthode à la pipette.

NF X 31-108 (2002) Qualité des sols - Détermination des cations Ca++, Mg++, K+, Na+ extractibles par l'acétate d'ammonium - Méthode par agitation.

NF X 31-130 (1999) Qualité des sols - Méthodes chimiques - Détermination de la capacité d'échange cationique (CEC) et des cations extractibles.

NF X 31-147(1996) Qualité des sols – Sols, sédiments – mise en solution totale par attaque acide.

NF U44-551 (2002) Supports de culture - Dénominations, spécifications, marquage.

NF ISO 10693 (1995) Qualité du sol - Détermination de la teneur en carbonate - Méthode volumétrique.

ANNEXES

Annexe I

Caractérisation d'essentialité et de toxicité de différents ETM chez les êtres vivants.

Adapté de Lamprea (2009).

Elément	Symbole	Indispensable en faible concentration			Toxique en faible concentration			Commentaires
		Plantes	Animaux	Hommes	Plantes	Animaux	Hommes	
Arsenic	As	Non	Oui	Non	Oui	Oui	Oui	Phytotoxique, cancérigène
Cadmium	Cd	Non	Non	Non	Oui	Oui	Oui	Phytotoxique, cancérigène
Chrome	Cr	Non	Non	Non	Oui	Non	Oui	Cr(VI) : Toxique, cancérigène (Burnol et al., 2006) et mobile dans le sol, Cr (III) peu toxique pour les mammifères
Cuivre	Cu	Oui	Oui	Oui	Oui	Non	Non	Immobile dans le sol, peu toxique à dose faible à moyenne mais l'ingestion d'une très forte quantité peut être mortelle pour l'homme (Goldhaber, 2003)
Nickel	Ni	Oui	Oui	Oui	Non	Oui	Oui	Très mobile dans le sol et les plantes, cancérigène
Plomb	Pb	Non	Non	Non	Oui	Oui	Oui	Peu phytotoxique, immobile dans le sol, saturnisme
Zinc	Zn	Oui	Oui	Oui	Oui	Non	Non	Facilement complexé dans le sol, peu toxiques pour les mammifères

Annexe II

Tableau récapitulatif des caractéristiques des différentes toitures végétalisées ayant fait l'objet d'une analyse globale des concentrations et flux de nutriments et métaux en entrée et sortie de toitures végétalisées.

					Substrat			Drainage			
Référence	**Pays**	**Référence de la toiture**	**Age**	**Environnement**	**Epaisseur**	**Composant**	**Nature**	**Epaisseur**	**Composant**	**Nature**	**Fertilisation**
Köhler et al. (2003)	Allemagne	TU	3	Laboratoire		sable, cailloux	min nat				
		Z	10	Laboratoire		roche, lave	min nat				
		U	10	Laboratoire		ardoise expansée	min ind				
		TU	10	Laboratoire		sable, lave	min nat				
Czemiel Berndtsson et al. (2005)	Suède	CV	8	Résidentiel / parc	3		min nat + org	2	synthétique	synth	
		AV	2	Résidentiel / parc	3	calcaire, craie tourbe	min nat + org	2	divers	synth	printemps 2001 et 2002 (35g/m²): 50% Multicote 8 extra (18-6-12) (dissolution en 8 mois) et 50% ProMagna (11-5-18) à dissolution quasi-immédiate
		KV	2	Résidentiel / commercial	4	substrat type STT		3,5	Flor Depot	synth	printemps 2003: application de fertilisants avec long temps de relargage
		GV	9	Résidentiel / parc	3		min nat + org	2	gravier grossier	nat	jamais fertilisé
Moran et al. (2005)	USA	WCC	2	Résidentiel	7,5	ardoise expansée, sable, compost (15%)	min ind + org		hydrodrain 300	synth	
Czemiel Berndtsson et al. (2006)	Suède	AV	2	Résidentiel / parc	3	calcaire, craie, tourbe	min nat + org	2	divers	synth	printemps 2001 et 2002 (35g/m²): 50% Multicote 8 extra (18-6-12) (dissolution en 8 mois) et 50% ProMagna (11-5-18) à dissolution quasi-immédiate
		AV S1	2		3	calcaire, craie, tourbe	min nat + org	2	brique écrasée	ind	
		AV S4	2		3	calcaire, craie, tourbe	min nat + org	2	brique écrasée	ind	
		AV S3	2		3	calcaire, craie, tourbe	min nat + org	2	gravier (gneiss - granit)	nat	
		CV	8	Résidentiel / parc	3		min nat + org	2	synthétique	synth	
		GV	9	Résidentiel / parc	3		min nat + org	2	gravier grossier	nat	jamais fertilisé
		KV 1	2		4	substrat type STT		3,5	Flor Depot	synth	printemps 2003: application de fertilisants avec long temps de relargage
		KV 2	2		4	substrat type STT		3,5	Flor Depot	synth	
Bates et al. (2007)	Royaume Uni	Dem. Comp.	1	Résidentiel	10	matériaux démollition, paillis, compost, terreau riche	min recup + org				
		Dem. Loam	1	Résidentiel	10	matériaux démollition, paillis, terreau stérilisé	min recup + org stérilisé				
		Dem. No mulch	1	Résidentiel	10	matériaux démollition sans paillis	min recup				
		Brick	1	Résidentiel	10	brique concassée, paillis stérilisé	min recup + org stérilisé				
		Ash	1	Résidentiel	10	cendre incinératio, paillis, terreau stérilisé	min recup + org stérilisé				
		Brick Dem.	1	Résidentiel	10	matériaux démollition, paillis stérilisé, brique concassée	min recup + org stérilisé				
		Ash Dem.	1	Résidentiel	10	cendre incinération, matériaux démollition, paillis, terreau stérilisé	min recup + org stérilisé				
Teemusk et al. (2007)	Estonie	Gr1	1	Résidentiel	10	LWA (light weight agregate), humus 30%, argile	min ind + org	8,8	laine roche (8 m) + plastique ondulé (8mm)	synth	jamais fertilisé
		Gr2	1	Résidentiel	10	LWA (light weight agregate), humus 30%, argile	min ind + org	8,8	laine roche (8 m) + plastique ondulé (8mm)	synth	
Czemiel Berndtsson (2008)	Suède	AV aut. 03	2	Résidentiel / parc	3	calcaire, craie tourbe	min nat + org	2	divers	synth	printemps 2001 et 2002 (35g/m²): 50% Multicote 8 extra (18-6-12) (dissolution en 8 mois) et 50% ProMagna (11-5-18) à dissolution quasi-immédiate
		AV print. 05	4	Résidentiel / parc	3	calcaire, craie tourbe	min nat + org	2	divers	synth	printemps 2001 et 2002 (35g/m²): 50% Multicote 8 extra (18-6-12) (dissolution en 8 mois) et 50% ProMagna (11-5-18) à dissolution quasi-immédiate
		AV aut. 06	5	Résidentiel / parc	3	calcaire, craie tourbe	min nat + org	2	divers	synth	printemps 2001 et 2002 (35g/m²): 50% Multicote 8 extra (18-6-12) (dissolution en 8 mois) et 50% ProMagna (11-5-18) à dissolution quasi-immédiate
		AV print. 07	6	Résidentiel / parc	3	calcaire, craie tourbe	min nat + org	2	divers	synth	printemps 2001 et 2002 (35g/m²): 50% Multicote 8 extra (18-6-12) (dissolution en 8 mois) et 50% ProMagna (11-5-18) à dissolution quasi-immédiate

					Substrat			Drainage			
Référence	**Pays**	**Référence de la toiture**	**Age**	**Environnement**	**Epaisseur**	**Composant**	**Nature**	**Epaisseur**	**Composant**	**Nature**	**Fertilisation**
Vander Linden (2008)	Canada	VR	1	Résidentiel	2	60% brique, pumice, ardoise expansée / 25 % sable / 14% compost, 1% dolomite	min nat + org	4	laine rétention (synth), drain	synth	une fois entre juin et octobre 2006 avec des fertilisants à dispersion régulée.
		1	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	cendre charbon, compost	min nat + org				
		2	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	brique recyclée	min recup				
		3	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	brique recyclée, compost	min recup + org				
		4	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	7	mat démollition recyclé, compost	min recup + org	3	zinco	synth	
		5	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	argile expansée	min ind				
		6	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	lave, pumice, zeolite	min nat				
		7	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	lave, sable, cendre charbon, 50% cendre schiste bitumineux	min nat + recup?				
		8	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	7	cendre schiste bitumineux, lave, sable, cendre charbon	min nat + recup?	3	lave	nat	
		9	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	lave, pumice, compost, argile expansée, brique concassé	min nat + recup + org				
		10	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	7	lave, pumice, écorce, humus, compost	min nat + org	3	argile expansée	ind	
Carillo (2009)	Allemagne	11	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	porlith, compost, « air crete »	min nat + org				
		12	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	sable, gravier, air crete, porlith, compost	min nat + org				
		13	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	argile expansée, air crete, porlith, compost	min ind + nat + org				
		14	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	7	porlith, argile expansée, air crete, compost	min ind + nat + org	3	air crete	nat	
		15	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	7	brique concassée, argile expansée, compost, lave, cendre	min ind + nat + org	3	gravier fin	nat	
		16	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	argile expansée, compost, lave	min ind + nat + org				
		17	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	7	ardoise concassée, argile expansée, compost, gravier fin	min ind + nat + org	3	gravier fin	nat	
		18	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	Brique concassée, cendre, compost,argile expansée, lave	min ind + nat + org				
		19	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	7	Ardoise expansée, compost, zeolite	min ind + nat + org	3	gravier fin	nat	
		20	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	Ardoise expansée, zeolite, compost	min ind + nat + org				
		21	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	7	zeolite, pumice, compost	min nat + org	3	lave	nat	
		22	1	Laboratoire exposé aux dépôts atmosphérique	10	lave, zeolite, xylit	min nat				
Czemiel Berndtsson et al. (2009)	Japon	J1 V	12	Résidentiel	40	aquasoil perlite (roche naturelle)	min nat		plastique	synth	
		J2 V	12	Résidentiel	40	aquasoil perlite (roche naturelle)	min nat				
	Suède	AV	4	Résidentiel / parc	3	calcaire, craie tourbe	min nat + org	2	divers	synth	printemps 2001 et 2002 (35g/m²): 50% Multicote 8 extra (18-6-12) (dissolution en 8 mois) et 50% ProMagna (11-5-18) à dissolution quasi-immédiate

Annexe III

Recensement des structures existantes sur le territoire de la Communauté Urbaine du Grand Nancy

Il était initialement envisagé d'utiliser comme sites expérimentaux des toitures végétalisées présentes sur le territoire de la Communauté Urbaine du Grand Nancy, pour des raisons de proximités géographiques, de partenariat existant entre le Grand Nancy et la Direction territoriale Est du Cerema via le GEMCEA et l'intérêt de cette communauté urbaine pour la végétalisation de toiture (inscription dans son Agenda 21, communication sur plusieurs bâtiments publics mettant en œuvre cette technique...). Afin de lister les ouvrages existant sur ce territoire, un recensement, accompagné d'une étude socio-économique permettant de contextualiser les enjeux du développement de la végétalisation de toiture à cette échelle locale, ont été réalisés en 2010 (Ernewein, 2010).

Méthodologie de la campagne de recensement menée en 2010

Afin d'avoir une liste la plus complète possible, ceci ne garantissant toutefois pas son exhaustivité, différents acteurs du domaine ont été approchés. Une liste d'information à recueillir sur chaque toiture repérée a également été établie et était complétée au mieux auprès de la personne nous informant de l'existence de cette toiture ou de personnes rencontrées par la suite sur le site et à même de nous renseigner. Ces informations peuvent être regroupées en trois principales catégories :

- pratiques : adresse, contacts...
- socio-économiques : bâtiment public ou privé, collectif ou individuel, visibilité par les usagers ou les voisins...
- techniques : type de toiture végétalisée (extensive, intensive, semi-intensive), épaisseur du substrat, nature du substrat ou des végétaux, entretien prodigué...

Pour ce projet spécifique, les informations les plus importantes sont les informations techniques puisqu'un certain nombre d'entre elles comme la nature des matériaux ou de l'entretien pourraient influer sur la qualité des eaux en sortie des toitures (Czemiel Berndtsson, 2010).

Dans un premier temps, les fabricants de membrane d'étanchéité pour toitures végétalisées (notamment Sopranature et Renolit France) ont été contactés afin d'obtenir une liste d'étancheurs qu'ils fournissent sur la région Lorraine. Ces étancheurs ont ensuite été interrogés afin de savoir s'ils avaient déjà réalisés des toitures végétalisées sur le territoire du Grand Nancy et si oui, obtenir les informations précédentes concernant ces toitures.

Afin de croiser ces informations, les services urbanismes des vingt communes du Grand Nancy ont également été contactés. Par ailleurs, la Communauté Urbaine du Grand Nancy octroie une réduction sur la taxe de raccordement au réseau d'eau pluviale pour les bâtiments mettant en œuvre des techniques alternatives de gestion des eaux pluviales, comme les toitures végétalisées. L'obtention de cette réduction nécessite une déclaration auprès du service assainissement qui recense ensuite toutes ces informations dans un fichier spécifique. Celui-ci a pu être consulté et a fourni une liste importante de toitures végétalisées. Enfin le recensement a été complété au fur et à mesure de l'étude socio-économique auprès des différents acteurs interrogés (architectes et paysagistes, responsables d'offices HLM, Conseil d'Architecture, d'Urbanisme et d'Environnement 54, Maison de l'Habitat et du Développement Durable, Architectes des Bâtiments de France...).

Plus d'une centaine de toitures végétalisées repérées sur le territoire du Grand Nancy

Ce recensement a permis de repérer plus d'une centaine d'opérations existantes ou en projet, mettant en œuvre une ou plusieurs toitures végétalisées. La plus ancienne date de 1963, il s'agit d'une toiture végétalisée intensive (pelouse) construite sur la tour Joffre, l'un des plus hauts bâtiments de Nancy. Jusqu'en 2004, l'utilisation de cette technique est restée très rare (trois toitures recensées entre 1964 et 2004). Puis on observe ensuite une forte augmentation du nombre de toitures construites annuellement entre 2005 avec 3 toitures et 2009, avec 18 opérations recensées. Cette évolution se rapproche de celle observée à l'échelle nationale, tout comme pour les autres tendances telles que la majorité de maître d'ouvrage public (60%) construisant des toitures extensives (63%) sur des toitures plates (91%) de bâtiments neufs (81%). Beaucoup de toitures végétalisées sont réalisées sur des bâtiments scolaires (maternelles, collèges, lycées) comme sur les toits du lycée général et technologique agricole de Malzéville. Seulement sept particuliers ayant construit une toiture végétalisée sur leur logement individuel ont été repérés sur le territoire du Grand Nancy.

Concernant les structures en elles-mêmes, la plupart disposait d'une couche de drainage, conformément aux recommandations des règles professionnelles (ADIVET et al., 2007). Le substrat avait une épaisseur de l'ordre de 8 cm et était généralement constitué de pouzzolane pour la part minérale (10 substrats sur 14 pour lesquels les informations étaient disponibles) et tourbe pour la matière organique (5 substrats sur 7 pour lesqueles les informations étaient disponibles). La végétation était essentiellement de type « sedum » (35 toitures végétalisées sur 38) parfois complétée par des petites plantes vivaces ou des graminées. Peu d'information étaient disponibles concernant l'entretien prodigué à ces toitures, elles étaient relativement peu entretenues et ne faisaient pas l'objet d'apport d'engrais dans la plupart des cas (18/23).

Des informations insuffisantes pour pouvoir réaliser une expérimentation

Les informations recueillies notamment sur la nature des matériaux utilisés ou encore les techniques d'entretien depuis la date de construction étaient très partielles et pas suffisantes pour pouvoir débuter des expérimentations sur ces toitures. L'objectif de ce projet étant de comparer des toitures avec des caractéristiques (nature des matériaux, âge, pratique d'entretien…) similaires et différentes afin d'identifier l'impact de ces différences, il n'était donc pas possible de se contenter d'informations partielles sur des paramètres pouvant autant influer sur la qualité de l'eau en sortie de toitures.

Ce recensement a toutefois permis de mieux connaître le marché français de la végétalisation de toiture via une approche locale et d'aider au choix de certains matériaux et à l'établissement des pratiques d'entretien des toitures végétalisées expérimentales construites par la suite.

Annexe IV

Les toitures végétalisées et la réglementation

Il n'existe actuellement pas de normes relatives aux toitures végétalisées, visant à établir des techniques de pose et d'entretien ou encore des méthodes de caractérisation des matériaux utilisés. Fin 2008, un projet de normalisation a vu le jour à l'échelle européenne avec la création du CEN/TC 390, présidé par l'UNI (organisme de normalisation italien). Il avait pour objectif d'élaborer des documents normatifs en vue du dimensionnement des toitures végétalisées, de la caractérisation de leurs performances ou encore de l'établissement de pratiques d'entretien. Au niveau français, le comité miroir BN TEC P84V a été créé en 2009. Cependant, en l'absence de la réalisation de travaux, le CEN/TC 390 a été démantelé en mars 2011.

Le DTU 43.1 « Travaux d'étanchéité des toitures-terrasses avec éléments porteurs en maçonnerie » donne quelques préconisations notamment pour la réalisation des terrasses-jardins, considérées comme une application particulière des toitures-terrasses (Lassalle, 2008).

En l'absence de normes, les professionnels du domaine se sont rassemblés pour réaliser des guides recensant des informations relatives à la mise en œuvre des systèmes, aux matériaux et leurs propriétés ou encore l'entretien à prodiguer. Au début des années 2000, les Allemands ont été les premiers à réaliser ce type de document au sein du FLL (*Forschungsgesellschaft Landschaftsentwicklung Landschaftsbau* : société allemande pour la recherche, le développement et la construction dans le domaine du paysagisme). Ce document fait aujourd'hui office de référence à l'échelle internationale et une seconde version est parue en 2008 (FLL, 2008). En France, l'ADIVET (Association des Toitures Végétales), la CSFE (Chambre Syndicale Française de l'Etanchéité), le SNPPA (Syndicat National du Profilage des Produits Plats en Acier) et l'UNEP (Union Nationale des Entreprises du Paysage) ont travaillé ensemble à la rédaction un document similaire en 2007 (ADIVET et al., 2007).

A l'échelle nationale, des matériaux constitutifs de toitures végétalisées ont récemment obtenu des "Avis Techniques du CSTB". Ces documents, disponibles gratuitement sur le site du CSTB, fournissent une description du matériau (caractéristiques, conditions de mises en œuvre, réglementation...) ainsi que des avis par rapport à leur aptitude à l'emploi (résistance au feu, isolation thermique, résistance au vent, accessibilité de la toiture...), leur durabilité et entretien, la fabrication et la mise en œuvre du produit ou encore des prescriptions techniques spécifiques à certains cas. Enfin, le CSTB donne son avis sur le système (avis favorable, avec ou sans réserve) et des précisions éventuelles par rapport aux restrictions apportées (seulement pour telle pente, telle surface, pas sur un accessoire spécifique

comme le système de drainage...). Il indique également une période de validité pour cet avis. Les étanchéités anti-racines ont été les premières à obtenir ces avis (réf SOPREMA), plus d'une demi-douzaine en disposent désormais (Eurojardin de Index SpA, Cityflor de Axter, Moplas SBS jardin de Texsa SAS...). VERTIGE de Vertige SARL a été le premier complexe végétalisé à obtenir un avis technique début 2010. L'Hydropack et le système Vegetal ID de Le Prieuré l'ont obtenu peu de temps après. Ce sont les seuls avis techniques relatifs à des techniques de végétalisation disponibles à ce jour sur le site du CSTB.

Quant à la réglementation par rapport à la récupération des eaux de pluie et leur usage à l'intérieur et à l'extérieur des bâtiments, encadrée par l'arrêté du 21 août 2008, les toitures végétalisées extensives étant considérées comme des toitures inaccessibles, il est autorisé de récupérer ces eaux et les utiliser dans le cadre des usages établis par l'arrêté évoqué précédemment.

Annexe V

Compositions des substrats utilisés sur les structures expérimentales

Substrat « extensif »

- 60% de pouzzolane 7/15 mm
- 20% de pouzzolane 3/6 mm
- 10% de tourbe blonde balte B1
- 10% d'écorce de pin maritime compostée neutrophile 0/5

+ 1 kg/m^3 de Faliorga 5-3-8 Cal 2-5 mm

+ 2 kg/m^3 de Nutricote T140 18-6-8

Substrat « fibre de coco »

- 60% de pouzzolane 7/15 mm
- 20% de pouzzolane 3/6 mm
- 20% de fibre de coco M

+ 3 kg/m^3 de zéolithe

+ 1 kg/m^3 de Faliorga 5-3-8 Cal 2-5 mm

+ 2 kg/m^3 de Nutricote T140 18-6-8

+ lithothamne

Substrat « semi-intensif »

- Terre cuite recyclée 3-16 mm
- Pouzzolane / Argile expansé 3 - 8 mm
- Sable de terre cuite / Sable de ponce 0 - 4 mm
- Scories de charbon 0 - 16 mm
- Compost / Compost d'écorce 0 - 15 mm

Le fournisseur n'a pas pu donner d'information sur la proportion de chaque matériau dans le mélange.

Annexe VI

Listes des végétaux introduits sur les différentes parcelles végétalisées

	Mélange de végétaux		
Nom de la plante	**Classique**	**Plateaux calcaires**	**Vosges**
Sedum album	X	X	X
Sedum reflexum larix	X	X	X
Sedum reflexum germanium	X	X	X
Sedum spurium	X	X	
Sedum sexangulare	X	X	
Sedum floriferum	X		
Sedum telephium			X
Euphorbia polychroma		X	
Lavandula angustifolia		X	
Festuca glauca		X	
Potentilla erecta		X	X
Briza media		X	
Allium schoenoprasum		X	X
Hieracium aurantiacum			X
Sempervivum tectonum			X
Iris sibirica			X
Petrorhagia saxifraga (dianthus saxifragus)			X
Poa alpina			X

Disparue après l'été 2011

Le *Sedum hispanicum* n'a pas été introduit volontairement sur les parcelles mais il était présent dans certaines micro-mottes de *Sedum album* et s'est développé de façon significative.

Annexe VII

Protocoles de minéralisation des différents types d'échantillons

Végétaux

Mise en solution par attaque HNO_3/H_2O_2 avec le DigiPREP

Protocole mis au point par le Laboratoire Sols Environnement (ENSAIA – Université de Lorraine - INRA)

1. Objet

La méthode vise à mettre en solution les éléments dans les échantillons de végétaux en vue de leur dosage, notamment par des méthodes spectrométriques.

2. Domaine d'application

La méthode s'applique aux échantillons de végétaux séchés et finement broyés.

3. Hygiène et sécurité

La manipulation d'acide nitrique concentré ou dilué et de peroxyde d'hydrogène est dangereuse. Prendre impérativement les précautions qui s'imposent afin de se prémunir de toute atteinte de la peau, des yeux, des voies respiratoires et digestives.

Porter une blouse de laboratoire, des gants, des protections oculaires (lunette ou masque).

Travailler sous hotte aspirante en marche.

La méthode ne peut être mise en œuvre la première fois sans l'aide d'une personne expérimentée.

4. Principe de la méthode

Les échantillons sont attaqués par HNO_3 et H_2O_2 à chaud dans un bloc en graphite thermostaté.

5. Matériels

*Digi***PREP** MS (LSE CHA 017). Le système de digestion *Digi*PREP MS (SCP Science) permet de travailler avec 48 tubes. C'est un système de digestion avec bloc de graphite recouvert de Teflon à température programmable. Les méthodes sont enregistrées via le contrôleur de température (7.2.)

*Digi***PREP** TS (LSE DIV 017). Contrôleur à écran tactile pour *Digi*PREP. Le contrôleur à écran tactile convient aux digestions programmées à températures multiples. Le système s'arrête automatiquement après le cycle.

Collecteur pour *Digi***FILTER :** facilite la préparation des échantillons en permettant la filtration de 12 *Digi*FILTERs en parallèle après connexion du collecteur à une pompe à vide.

*Digi***PROBE** : sonde de température pour *Digi***PREP**

*Digi***TUBE**s : tubes gradués classe A en polypropylène (ref 010-500-262) avec bouchon vissable en polyéthylène (ref 010-500-060).

Verres de montre pour *Digi***TUBE**s (ref 010-500-081).

Portoirs pour *Digi***TUBE**s (ref 010-500-021).

Racks de stockage en polystyrène (ref 010-500-028).

*Digi***FILTER**s : corps de filtre en polypropylène avec filtre en papier sans cendres 0,45 µm (ref 010-500-070).

Etuve ventilée (LSE ETU 004 ou LSE ETU 004 ou LSE ETU 010)

Broyeur en agate (LSE BRO 009 ou LSE BRO 002)

Balance de précision (LSE BAL 002 ou LSE BAL 009 ou LSE BAL 011)

Pompe à vide

6. Réactifs

Eau déionisée ultra pure, d'une résistivité supérieure à 18 Mohms.

Acide nitrique concentré, c(HNO_3) = 15,8 mol L^{-1}, ρ ~ 1,42.

Peroxyde d'hydrogène, de qualité analytique à 30 % (110 vol).

7. Mode opératoire

7.1 Préparation des échantillons

L'échantillon doit être sec et broyé à une granulométrie inférieure à 250 µm. Nettoyer les végétaux abondamment à l'eau du robinet afin d'éliminer toutes les particules de terre. Si des résidus terreux subsistent, un passage en bain à ultrasons peut être utilisé. Rincer à l'eau osmosée puis sécher dans une étuve à 72°C pendant 48 heures (Etuve ventilée (LSE ETU 004 ou LSE ETU 004 ou LSE ETU 010)). Broyer les organes végétaux dans un mortier en agate (Broyeur en agate (LSE BRO 009 ou LSE BRO 002)).

7.2 Minéralisation

7.2.1 Pesée

Peser environ 0,5 g (± 1%) d'échantillon (Préparation des échantillons) dans le *Digi***TUBE** (DigiTUBEs : tubes gradués classe A en polypropylène (ref 010-500-262) avec bouchon vissable en polyéthylène (ref 010-500-060).). Noter la valeur exacte dans le cahier d'enregistrement de la balance.

***Note** : L'électricité statique peut provoquer des difficultés à l'introduction des prises d'essai dans les tubes. L'utilisation d'une main à poudre en inox pour effectuer les pesées et insérer la poudre dans le fond du tube permet de limiter ces problèmes. Les récipients en verre sont préférables à ceux en matière plastique pour le stockage des poudres végétales.*

7.2.2 Ajout des réactifs

Sous une hotte aspirante en marche, ajouter dans l'ordre 8 ml d'acide nitrique concentré (Acide nitrique concentré, c(HNO3) = 15,8 mol L-1, ρ ~ 1,42.) et 4 ml de peroxyde d'hydrogène (Peroxyde d'hydrogène, de qualité analytique à 30 % (110 vol).). Disposer les tubes sur un portoir (Portoirs pour DigiTUBEs (ref 010-500-021).) en utilisant les ergots de positionnement. Boucher les tubes et laisser les réactifs agir à froid durant une nuit.

7.2.3 Chauffage

Installer les portoirs sur le *Digi***PREP** (DigiPREP MS (LSE CHA 017). Le système de digestion DigiPREP MS (SCP Science) permet de travailler avec 48 tubes. C'est un système de digestion avec bloc de graphite recouvert de Teflon à température programmable. Les méthodes sont enregistrées via le contrôleur de température (7.2.)). Oter les bouchons et poser un verre de montre (Verres de montre pour DigiTUBEs (ref 010-500-081).) sur chaque tube. Allumer le contrôleur de température (DigiPREP TS (LSE DIV 017). Contrôleur à écran tactile pour DigiPREP. Le contrôleur à écran tactile convient aux digestions programmées à températures multiples. Le système s'arrête automatiquement après le cycle.). Tourner les tubes de façon à ce que les ergots de positionnement correspondent avec les encoches et que le fond des tubes soit en contact avec le bloc graphite.

Installer la sonde de température (DigiPROBE : sonde de température pour DigiPREP) dans un tube contenant un **blanc**. L'extrémité de la sonde doit être glissée dans le support pour sonde et ensuite inséré dans l'échantillon de contrôle désiré. Ajuster la hauteur de façon à ce que l'extrémité de la sonde soit à environ 1 mm du fond du *Digi***TUBE**.

Note : *L'échantillon de contrôle doit être un échantillon de digestion. La Digi**PROBE** doit toujours être placée dans la cavité située à l'arrière droit du bloc en graphite lorsqu'elle n'est pas utilisée.*

Sur le contrôleur de température, choisir la méthode « PLANTES » (annexe 1) et appuyer sur « départ ».

Une fois le cycle terminé, retirer les portoirs avec les tubes et les laisser refroidir sur la paillasse.

7.4 Contrôle de la qualité

Dans chaque série de 24 tubes, placer au moins un blanc (réacteur contenant les réactifs sans échantillon) et un échantillon de contrôle interne ou certifié (L:\LSE-Assurance-Qualite\5-Inventaire et liste AQ\inventaire échantillons-produits\échantillons de référence).

7.5 Filtration

Connecter le collecteur (Collecteur pour DigiFILTER : facilite la préparation des échantillons en permettant la filtration de 12 DigiFILTERs en parallèle après connexion du collecteur à une pompe à vide.) à la pompe à vide (Pompe à vide). Avec de l'eau déionisée (Eau déionisée ultra pure, d'une résistivité supérieure à 18 Mohms.), ajuster le volume de chaque échantillon à exactement 25 mL dans le *Digi***TUBE**.

Connecter un *Digi***FILTER** sur le *Digi***TUBE** contenant l'échantillon en veillant à ce que la fermeture soit bien étanche puis, connecter un *Digi***TUBE** vide à l'autre extrémité. Chaque *Digi***FILTER** comporte 2 orifices. Veiller à ce que l'orifice supérieur (lorsque le tube vide est en bas) soit obturé par un bouchon rouge. Connecter l'ensemble sur le collecteur en veillant à ce que les robinets du collecteur soient fermés.

Mettre en route la pompe à vide. Ouvrir successivement tous les robinets et ôter les bouchons rouges. Laisser filtrer. Fermer les robinets avant de déconnecter les *Digi***FILTERs**. Jeter les *Digi***FILTERs** et les *Digi***TUBEs** usagés de façon appropriée. Fermer les *Digi***TUBEs** contenant les échantillons à l'aide d'un bouchon et stocker les tubes dans un rack (Racks de stockage en polystyrène (ref 010-500-028).).

Conserver les tubes à 4°C avant analyse.

7.6 Nettoyage du matériel

7.6.1 Nettoyage des petites souillures de surface

Lorsqu'il devient nécessaire de nettoyer l'instrument, à cause d'éclaboussures accidentelles, il faut éteindre et débrancher l'appareil. Enlevez tout excès de liquide puis nettoyez la surface avec un papier fin.

<u>Attention :</u> la surface peut être chaude. La surface chaude et le liquide vont créer de la vapeur et peuvent causer des brûlures très facilement. Il vaut donc mieux laisser l'appareil refroidir avant tout nettoyage.

7.6.2 Nettoyage des puits de digestion

Si du liquide a coulé dans les puits du système *Digi***PREP**, éteindre et débrancher l'appareil. Le laisser refroidir à température ambiante. Aspirer le liquide avec un compte-goutte ou une pipette. Diluer le reste avec de l'eau distillée deux ou trois fois et aspirer autant de solution que possible. Enlever le résidu avec du papier fin et jeter la solution de façon appropriée. Laisser l'appareil sécher avant de le rebrancher.

8. Calculs et interprétation des résultats

Après analyse par ICP ou AAS, calculer la concentration en élément dans la biomasse sèche telle que :

$C_{Plante} = (C_{solution} \times V_F) / M$

Avec :

C_{Plante} la concentration en élément dans la biomasse sèche en mg kg^{-1}

$C_{Solution}$ la concentration en élément dans le minéralisat en mg L^{-1}

V_F le volume de minéralisat en mL (soit 25 mL)

M la masse d'échantillon végétal prélevé en g (soit 0,5 g)

Le rendement de minéralisation est calculé sur les échantillons certifiés ou de contrôle interne tel que :

$R_{Mine} = Ech\text{-}Cont_{Mesuré} / Ech\text{-}Cont_{Consensus} \times 100$

Avec :

R_{Mine} le rendement de minéralisation en %

$Ech\text{-}Cont_{Mesuré}$ la concentration en élément mesurée dans l'échantillon de contrôle en mg kg^{-1} de matière sèche

$Ech\text{-}Cont_{Consensus}$ la concentration de consensus en élément de l'échantillon de contrôle en mg kg^{-1} de matière sèche (disponible sur Evgeny L:\LSE-Assurance-Qualite\5-Inventaire et liste AQ\inventaire échantillons-produits\échantillons de référence\Certificats des échantillons de contrôle)

$R_{Mine} = Ech\text{-}Cert_{Mesuré} / Ech\text{-}Cert_{Consensus} \times 100$

Avec :

R_{Mine} le rendement de minéralisation en %

$Ech\text{-}Cert_{Mesuré}$ la concentration en élément mesurée dans l'échantillon certifié en mg kg^{-1} de matière sèche

$Ech\text{-}Cert_{Consensus}$ la concentration de consensus en élément de l'échantillon certifié en mg kg^{-1} de matière sèche (disponible sur Evgeny L:\LSE-Assurance-Qualite\5-Inventaire et liste AQ\inventaire échantillons-produits\échantillons de référence\Certificats des échantillons de contrôle)

Les résultats sont considérés comme valides si la concentration en élément mesurée dans le blanc de minéralisation est inférieure à la limite de détection et si les rendements de minéralisation calculés sur les échantillons de contrôle entrent dans l'intervalle de confiance ou dans l'intervalle de tolérance donnés par les certificats d'analyse.

Filtres ayant récupéré la phase particulaire des dépôts atmosphériques et des eaux en sortie de toitures

Mise en solution par attaque HNO_3 avec le DigiPREP

Adapté d'un protocole de l'IFSTTAR

Mettre les filtres secs et préalablement pesés dans un tube pour DigiPREP en borosilicate, qui aura préalablement été nettoyé à l'acide puis rincé trois fois à l'eau déminéralisée.

Introduire 4 ml d'acide nitrique HNO_3 pour analyse de métaux traces dans chaque tube.

Déposer un verre de montre sur le tube et le placer dans le DigiPREP.

Programmer le DigiPREP pour atteindre une température de 105 °C et la conserver pendant 2 h.

Après ces 2 h à 105 °C, enlever le verre de montre et réduire presque à sec à 140 °C.

Sortir les tubes du DigiPREP après réduction et les laisser refroidir.

Après refroidissement, ajouter 1 ml d'HNO_3 et laisser agir 30 min.

Ajouter 20 ml d'eau ultrapure puis laisser agir 30 min.

Passer le tube aux ultrasons jusqu'à désagrégation des éventuels dépôts présents dans le tube.

Filtrer à l'aide de DigiFILTERS, du collecteur associé et d'une pompe à vide.

Compléter à 50 ml avec de l'eau ultrapure.

Eaux de lavage des végétaux

Mise en solution par attaque HNO_3 avec le DigiPREP

Adapté d'un protocole de l'IFSTTAR

Les végétaux lavés auront été pesés préalablement au lavage puis après séchage afin de pouvoir déterminer la quantité d'ETM en surface de végétaux par g de matière sèche. Celle-ci sera ensuite rapportée à la surface grâce au paramètre indiquant la masse de végétaux frais par m², connaissant le ratio entre masse de matière sèche/masse de matière fraîche.

Mesurer le volume d'eau de lavage recueilli à l'aide d'une burette graduée.

Acidifier l'eau de lavage avec 1 % d' HNO_3 pour analyse de métaux traces.

Introduire l'eau de lavage dans un flacon DigiPREP en borosilicate pour évaporation. Si le volume d'eau de lavage est supérieur à 100 ml, celui-ci pourra être fractionné en différents tubes qui seront rassemblés en un seul au fur et à mesure de leurs évaporations respectives. Si le volume total est inférieur à 150 ml, il est conseillé de l'évaporer dans son intégralité. Sinon, 150 ml peuvent être suffisant selon les quantités de métaux présents en solution.

Placer les tubes dans le DigiPREP à 100 °C pendant la durée nécessaire pour arriver presque à sec.

Introduire 4 ml d'acide nitrique HNO_3 pour analyse de métaux traces dans chaque tube.

Déposer un verre de montre sur le tube et le placer dans le DigiPREP.

Programmer le DigiPREP pour atteindre une température de 105 °C et la conserver pendant 2 h.

Après ces 2 h à 105 °C, enlever le verre de montre et réduire presque à sec à 140 °C.

Sortir les tubes du DigiPREP après réduction et les laisser refroidir.

Après refroidissement, ajouter 1 ml d'HNO_3 et laisser agir 30 min.

Ajouter 20 ml d'eau ultrapure puis laisser agir 30 min.

Passer le tube aux ultrasons jusqu'à désagrégation des éventuels dépôts présents dans le tube.

Filtrer à l'aide de DigiFILTERS, du collecteur associé et d'une pompe à vide.

Compléter à 50 ml avec de l'eau ultrapure.

Matériaux synthétiques (structure stockante, filtre, étanchéité)

Mise en solution par attaque HNO_3 sur plaque chauffante

Adapté d'un protocole de l'IFSTTAR

Découper le plus finement possible un peu plus d'1g de matériau (carré de 5mm x 5mm maximum).

Dans un flacon en verre propre, introduire le matériau découpé en prenant soin de le peser.

Ajouter 15 ml d'HNO_3 pour analyse de métaux traces.

Déposer un verre de montre sur le flacon et le passer sur une plaque chauffante à 105 °C sous une sorbonne pendant 2 h.

Après ces 2 h à 105 °C, enlever le verre de montre et réduire presque à sec à 140 °C.

Déposer le flacon en dehors de la plaque chauffante pour qu'il refroidisse.

Renouveler ces quatre dernières actions (depuis l'ajout de 15 ml d'HNO_3) autant de fois que nécessaire tant qu'il reste des particules en solution.

Lorsqu'il n'y a plus de particules en solution, enlever le verre de montre et réduire une dernière fois presque à sec. Sortir le flacon de la plaque chauffante pour qu'il refroidisse.

Après refroidissement, ajouter 1 ml d'HNO_3 et laisser agir 30 min.

Ajouter 20 ml d'eau ultrapure puis laisser agir 3 0min.

Passer le flacon aux ultrasons jusqu'à désagrégation des éventuels dépôts présents dans le tube.

Filtrer à l'aide d'un filtre à seringue en acétate de cellulose (0,45 µm).

Compléter à 50 ml avec de l'eau ultrapure.

Annexe VIII

Fiches techniques des sondes de teneurs en eau et potentiel matriciel

SOLS MESURES
INSTRUMENTS, SYSTEMES ET SERVICES POUR LA GEOTECHNIQUE ET L'AGRONOMIE

SONDE ECH$_2$O 2 & 3 PARAMETRES
Par DECAGON Devices Co.

- Capteurs capacitifs en fibre de verre
- Mesure de la constante diélectrique pour la détermination de la teneur en eau volumique d'un sol et mesure de sa température
- Capteur économique et robuste
- Nombreuses applications : irrigation, études des balances en eau, contrôle des sites pollués, contrôle de la salinité, gestion de la fertigation, prévention des pathologies végétales, etc.

Sondes Echo-TM & Echo-5TE

Sonde de 5 cm de long à trois « broches » pour la mesure de la teneur en eau, de la température et de la conductivité électrique dans tout type de sol : sols standards agricoles (minéral : argile, limon, sable) et spécifiques (organique : tourbe, laine de roche, etc.) ayant une salinité maximale de 20 dS.m^{-1}.

Durée d'une mesure		150 ms
Paramètres mesurés		❶ ε_b : 1-80 ± 1 (1-40 std), ± 15% (40-80) ❷ EC apparente sol (EC_b) : 0-23 dS.m^{-1} ± 10% (0-7), au-delà étalonnage spécifique nécessaire ❸ T. mes. : -40…+50± 1°C
Paramètres calculés	ECHO-5TE ❶ + ❷ + ❸	❶ VWC : 0-100% ± 3 % (sol minéral, < 10 dS.m^{-1}, équation de Topp), ± 2% avec un étalonnage spécifique ❷ EC eau porale (EC_p): voir équations constructeur
	ECHO-TM ❶ + ❸	❶ VWC : 0-100% ± 4 % (sol minéral, < 8 dS.m^{-1}), ± 2% avec un étalonnage spécifique, ± 3 % (laine de roche, 0,5-8 dS.m^{-1}), ± 3 % (sol organique, 3-14 dS.m^{-1})
Dimensions		Sonde ECH$_2$O en 5 cm x 3,30 cm large
Signal de sortie tension		RS232 ou SDI-12 (indépendant de l'alimentation) : 0 to 3,6 V ASCII TTL à 1200 baud
Alimentation		3,6…15V DC @ 0,3 mA au repos & 10 mA en mesure
Température		-40…+50°C
Centrales d'acquisition		CSI I/O, **EM50**/**EM50R** et autres centrales pouvant délivrer une alimentation par relai entre 3 et 15 V et mesurer en signal tension série sous une résolution mini de 12 bits
Boîtier de mesure		**Procheck**

Sols Mesures - 17 rue Jean Monnet, ZA des Côtes - 78990 Elancourt - France
Tel : 33 (0) 130503450 - Fax : 33 (0) 130503449 - Email : info@sols-mesures.com - Web : www.sols-mesures.com

SOLS MESURES
INSTRUMENTS, SYSTEMES ET SERVICES
POUR LA GEOTECHNIQUE ET L'AGRONOMIE

CAPTEUR DE POTENTIEL MATRICIEL MPS-1

Par DECAGON Devices Co.

- Capteur à céramique poreuse utilisant une méthode diélectrique pour la mesure du potentiel matriciel
- Capteur économique et robuste
- Aucune maintenance
- Pas de calibration spécifique
- Résiste au gel
- Nombreuses applications : gestion de l'irrigation, stress hydrique, étude de drainage, etc.

La sonde MPS-1 intègre le circuit diélectrique de l'Echo-5 et deux disques en céramique poreuse. Le capteur MPS-1 mesure la constante diélectrique dans les céramiques de porosité connue et détermine ainsi le potentiel matriciel du sol selon une formule exponentielle.

Temps d'équilibre	De 10 minutes à 1 heure
Durée d'une mesure	10 ms
Gamme de mesure	-10…-500 kPa (pF 2…pF 3,71)
Précision	+/- 5 kPa (-10…-50 kPa), +/- 20% (-50…-500 kPa)
Résolution	1 kPa (-10…-100 kPa), 4 kPa (-100…-500 kPa)
Dimensions	75 x 32 x 15 mm
Signal de sortie tension	500-1000 mV (indépendant de l'alimentation)
Alimentation	2…5V DC 25 mA
Température	-40…+50°C
Centrales d'acquisition	CSI et **EM50/EM50R** autres centrales pouvant délivrer une alimentation par relai entre 3 et 5 V et mesurer en signal tension non différentiel sous une résolution mini de 12 bits
Boîtier de mesure	**Procheck**

Sols Mesures - 17 rue Jean Monnet, ZA des Côtes - 78990 Elancourt - France
Tel : 33 (0) 130503450 - Fax : 33 (0) 130503449 - Email : info@sols-mesures.com - Web : www.sols-mesures.com

Annexe IX

Blancs réalisés sur les débitmètres à auget

En septembre 2012, l'auget situé à l'aval de la toiture « bac préplanté » a été nettoyé à l'aide d'une solution d'eau déminéralisée contenant 2% d'acide nitrique puis rincée abondamment avec de l'eau déminéralisée. Les eaux issues de cette parcelle n'étaient plus récupérées depuis plusieurs mois suite à l'enlèvement des bacs préplantés et celle-ci n'a donc pas été étudiée dans le cadre de cette thèse.

Environ 15 litres d'une solution d'eau de pluie simulée similaire à celle utilisée dans le cadre des essais en batch (1/20ème de Volvic complété par de l'eau déminéralisée) a ensuite été préparée. Un échantillon d'environ 100 ml a été mis de côté. L'eau de pluie simulée restante a été introduite progressivement dans le débitmètre à auget. L'ensemble des eaux issues du système permettant de récupérer 1 % du flux sortant a été récupéré.

Les deux échantillons d'eaux ont été filtrés à 0,45 µm. Les eaux filtrées ont été acidifiés avec 0,5 % d'HNO_3 pour analyse de métaux traces avant analyse à l'ICP MS et OES (cf. tableau ci-dessous).

Concentration en ETM dans la phase dissoute des eaux en entrée et en sortie de débitmètre à auget.

	As	B	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Sb	Zn
Limite de quantification (µg L^{-1})	0,1	10	0,1	0,1	0,2	0,1	0,1	10	0,3
Concentration en entrée (µg L^{-1})	<LQ	<LQ	0,3	<LQ	4,7	<LQ	5,0	<LQ	3,3
Concentration en sortie (µg L^{-1})	<LQ	<LQ	0,3	0,1	2,4	0,3	4,8	<LQ	5,9

Au regard, des concentrations minimales et moyennes obtenues en sortie des différentes toitures expérimentales (cf. Partie III paragraphe 2.2), les variations de teneurs en ETM observées dans ces échantillons entre l'entrée et la sortie du débitmètre à auget peuvent être considérées comme négligeables.

Annexe X

Limites de quantification et incertitudes d'analyses à l'ICP OES

Laboratoire de rattachement de l'ICP OES	*Elément*	Limite de quantification (mg L^{-1})	Incertitude (mg L^{-1})
LSE Université de Lorraine - INRA	*As*	0,0082	0,022
	B	0,0056	0,045
	Cd	0,0003	0,009
	Cr	0,0010	0,017
	Cu	0,0026	0,042
	Ni	0,0018	0,023
	Pb	0,0117	0,025
	Sb	0,0049	0,024
	Zn	0,0046	0,031
Cerema DTer Est Lab. De Nancy	*Cu*	0,26	0,9
	Zn	0,09	0,3

Annexe XI

Essais de modélisation des transferts de Cu et Zn en phase dissoute par le logiciel Hydrus-1D

Adapté de l'article rédigé dans le cadre du séminaire de clôture des opérations de recherche INOGEV- GDEP (Schwager et al.*, 2013b).*

La durée de vie d'une toiture végétalisée est de l'ordre de 25 ans. Or ses capacités épuratoires peuvent potentiellement évoluer du fait de la mobilisation progressive de substances initialement présentes dans les matériaux sous l'action des végétaux, d'une saturation des sites de captages des éléments ou encore d'une désorption de substances provenant des dépôts atmosphériques préalablement retenus par les différentes couches de la structure. En outre, la gamme de matériaux utilisée est très large et continue à se développer. Le développement rapide de la technique et les attentes grandissantes des maîtres d'ouvrage par rapport aux fonctions de ces structures ne permettent pas cependant de tester la capacité à retenir les polluants atmosphériques de chacune de ces combinaisons sur le long terme dans le cadre d'expérimentations *in situ*.

Souvent utilisée pour mettre en œuvre des scénarios de longues durées en testant différents paramètres, la modélisation est de plus en plus fréquemment utilisée pour comprendre le comportement des toitures végétalisées à long terme et des outils de conception basés sur des critères de gestion quantitative des eaux pluviales se développent (Berthier et al., 2013 ; Stovin et al., 2013). Il pourrait donc être envisagé de construire le même type d'outil en vue de la conception de toitures végétalisées aux capacités épuratoires optimisées. Cela nécessite donc le développement d'un modèle qui prendrait en compte l'ensemble des mécanismes d'émission et de rétention d'ETM identifié précédemment. Dans un premier temps, il est envisagé de modéliser les processus de sorptions des ETM apportés en phase dissoute par le substrat et le drainage. Cela nécessite la simulation des transferts hydriques au sein des structures de toitures végétalisées mais également le transport des différents polluants et les réactions qui ont lieu entre ces éléments et les matériaux de la structure.

HYDRUS-1D a été utilisé dans le cadre de ce projet car il permet notamment de simuler les flux de polluants dans une structure grâce à l'un de ses modules de transfert physico-chimique, en plus de ces fonctions de modélisation du comportement hydrodynamique déjà testées sur des toitures végétalisées (Hilten et al., 2008). Les données d'entrées et sorties utilisées pour le calage et la validation du modèle

sont issues du suivi de la toiture Extensive, dont les matériaux ont précédemment montré des capacités de rétention importantes (Partie II). Le cuivre et le zinc étant présents en plus forte concentration dans les eaux de pluie (Sabin et al., 2005 ; Percot, 2012), cette première étape sera consacrée à la modélisation des transferts de ces métaux au sein de cette toiture végétalisée extensive.

I. HYDRUS-1D

I.1. Choix du modèle

Lors du passage des eaux de pluies dans les différentes couches de la toiture végétalisée, deux principaux phénomènes physico-chimiques jouent un rôle essentiel dans l'évolution des flux de polluants : le transfert, qui peut être considéré comme un phénomène hydraulique, et la spéciation, phénomène geochimique. De nombreux modèles existent pour modéliser ces deux phénomènes. Des logiciels couplent même un module de transfert avec un module de spéciation, créant ainsi un outil complet et à l'usage simplifié. Grâce au guide établi par Burnol et al. (2006), deux codes de transport réactif répondant aux besoins de cette étude ont été identifiés : HYTEC et PHREEQC 1D.

L'intérêt de PHREEQC 1D réside dans l'utilisation de PHREEQC-2 en code géochimique, plus complet que CHESS, module intégré à HYTEC. Cependant le code de transfert de PHREEQC 1D ne fonctionne qu'en milieu saturé, contrairement à celui de HYTEC. Or les réactions dans les différentes couches de la toiture végétalisée ne se feront pas systématiquement en milieu saturé. Mais Gujisaite (2008) a que ce paramètre influençait peu les résultats des modèles lorsque l'on se situe dans des gammes proches de la saturation. En outre, le fait que PHREEQC 1D ne permette qu'une modélisation de transfert à une dimension n'est pas forcément problématique pour les toitures végétalisées puisque les surfaces étant très étendues par rapport à l'épaisseur de la toiture, une étude du transfert vertical semble suffisante, dans un premier temps en tout cas. En outre, ce modèle a déjà fait ses preuves pour la modélisation hydrodynamique de toiture végétalisée (Hilten et al., 2008). Il a donc été utilisé dans le cadre de ce projet.

I.2. Modèle hydrodynamique

I.2.1. Modèle d'écoulement de Richards

Basé sur le principe de conservation de la masse d'un volume élémentaire représentatif du milieu poreux et de l'équation de Darcy, l'équation de Richards (1931) modélise l'écoulement en milieu poreux variablement saturé. HYDRUS-1D propose plusieurs fonctions de teneur en eau, de conductivité hydraulique en eau et de pression en eau pour l'implémentation complète du modèle. Celles de van Genuchten (1980)-Mualem (1976) ont été utilisées dans le cadre de ce projet :

$$\theta(h) = \begin{cases} \theta_r + \dfrac{\theta_s - \theta_r}{(1 + |\alpha\, h|^n)^m} & si\ \ h < 0 \\ \theta_s & si\ \ h \geq 0 \end{cases} \qquad (2)$$

$$K(h) = K_s\, S_e^l \left[1 - \left(1 - S_e^{\frac{1}{m}}\right)^m\right] \quad avec\, n > 1 \qquad (3)$$

où $$m = 1 - \frac{1}{n} \qquad avec\ n > 1 \qquad (4)$$

et S_e est la teneur effective en eau :

$$S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} \qquad (5)$$

Ces équations font intervenir six paramètres : la teneur en eau résiduelle Θ_r (-),la teneur en eau à saturation Θ_s (-), des facteurs de formes α et n (L^{-1} ; -), la conductivité hydraulique à saturation K_s ($L.T^{-1}$), le coefficient de connectivité des pores l (-).

I.2.2. Estimation des paramètres

La connaissance complète de l'hydrodynamique de la structure poreuse de la toiture nécessite la détermination de 12 paramètres associés aux couches du substrat et du drainage (Tableau 41). Pour les deux matériaux, l a été fixé à 0,5 comme préconisé par les travaux de Mualem (1976). Concernant le substrat, les paramètres hydrodynamiques cités plus haut ont été déterminés de façon expérimentale dans le cadre de travaux visant à caractériser les transferts hydro-thermiques dans cette même structure (Bouzouidja et al., 2013). La conductivité hydraulique à saturation K_s de la couche de drainage a également été déterminée dans les mêmes conditions (Bouzouidja et al., 2013) et les autres paramètres ont tous été calés par le modèle HYDRUS-1D à partir des chroniques de teneurs en eau dans le substrat grâce au module de résolution inverse disponible dans le code.

Tableau 41 : Paramètres utilisés pour la modélisation des phénomènes hydrodynamiques

Matériau	Θ_r	Θ_s	K_s (cm h^{-1})	α (cm^{-1})	*n*	*l*
Substrat	0,0515	0,459	777	0,0802	1,58	0,5
Argile expansée	A caler	A caler	1195	A caler	A caler	0,5

I.3. Modèle de transport réactif du cuivre et du zinc

I.3.1. Le transport conservatif

L'advection, la dispersion et la diffusion moléculaire, les trois principaux processus physiques de transport conservatif régissant la migration des éléments chimiques en phase liquide lors d'un écoulement en milieu poreux sont pris en compte par le logiciel Hydrus via trois paramètres pour chaque couche : ρ (la densité apparente sèche ($M.L^{-3}$), soit la masse d'une unité de volume de matériau sec et non tassé), d (la dispersivité (L)), D_k * (le coefficient de diffusion moléculaire de chaque espèce chimique étudiée en phase aqueuse).

Les deux premiers paramètres ont été définis expérimentalement (Tableau 2) : la densité apparente sèche dans le cadre de l'étude citée précédemment pour les paramètres hydrodynamiques et la dispersivité via des essais de traçage d'un élément conservatif en colonne. L'essai a été répété avec différents débits permanents afin de vérifier qu'un même ordre de grandeur était conservé et que ce paramètre était donc une caractéristique du milieu poreux indépendante des conditions d'écoulement, hypothèse prise dans le logiciel pour décrire le phénomène de dispersion. Aucune donnée expérimentale relative au coefficient de diffusion moléculaire n'est disponible et peu d'informations sont fournies dans la littérature. Cependant, une analyse de sensibilité effectuée sur ce paramètre indique que dans toutes les gammes de débit la diffusion moléculaire est un processus marginal, le phénomène de diffusion moléculaire sera donc négligé par la suite.

Tableau 42 : Paramètres utilisés pour la modélisation des phénomènes de transport

Matériau	ρ (mg cm^{-3})	d (cm)	D_k * (cm^2 h^{-1})
Substrat	800	2,2	0
Argile expansée	274	6,2	0

I.3.2. Réactions physico-chimiques

Modélisation du processus de sorption

La représentation de la physico-chimie repose sur une formule générale utilisée par HYDRUS-1D pour décrire le transport en non-équilibre d'espèces chimiques présentes *a priori* dans toutes les phases (liquide, solide et gazeuse). Les interactions entre les phases liquide et solide peuvent être décrites par des équations non-linéaires de non-équilibre basées sur les modèles d'isotherme de sorption de Langmuir et Freundlich (équation 6) et de cinétique d'ordre 1 (équation 7). Trois paramètres obtenus empiriquement à partir de l'isotherme de sorption (k_s, β, η) et un pour la cinétique (ω) sont à fournir au logiciel afin de modéliser ces processus (Tableau 3).

$$s_k = \frac{k_{s,k}\ c_k^{\beta_k}}{1 + \eta_k c_k^{\beta_k}} \qquad (6)$$

$$\frac{\partial s_k}{\partial t} = \omega_k \left(\frac{k_{s,k}\ c_k^{\beta_k}}{1 + \eta_k c_k^{\beta_k}} - s_k \right) \qquad (7)$$

Avec c_k et s_k les concentrations et teneurs de l'espèce k dans les phases liquides et solides.

Tableau 43 : Paramètres utilisés pour la modélisation des phénomènes physico-chimiques

Métal	Matériau	k_s	η	β	ω
Cu	*Substrat*	0,150	54,54	0,252	1,05
	Argile expansée	0,853	39,61	0,289	1,15
Zn	*Substrat*	0,00556	0,277	0,735	1,82
	Argile expansée	0,366	16,14	0,329	0,57

Il est pris pour hypothèse par la suite que Cu et Zn, les deux espèces chimiques étudiées, ne sont pas réactives entre elles et ont par conséquent des comportements physico-chimiques différents. En outre, il sera considéré que l'eau de pluie qui apporte ces deux éléments ne contient pas d'autres espèces susceptibles de réagir avec ceux-ci et avec les matériaux constitutifs de la toiture.

Réalisation de cinétique et d'isotherme de sorption en batch

Les essais d'isotherme et de cinétique de sorption ont été réalisés selon les mêmes protocoles que ceux définis au paragraphe 2.3.1 de la Partie I sur le substrat extensif et l'argile expansée, la seule différence étant que les matériaux n'ont pas été préalablement concassés et que ces essais ont donc été réalisés sur matériaux entiers de façon à être plus proche des conditions réelles.

Les paramètres évoqués précédemment ont été définis en calant ces modèles sur les isothermes obtenues. Cependant, la modélisation de ces réactions de sorption par des cinétiques d'ordre 1 et des isothermes de Langmuir ou Freundlich était peu satisfaisante. Les calages ont donc été effectués sur les gammes de concentrations les plus basses et les temps les plus faibles afin de se rapprocher des conditions réelles de teneurs en Cu et Zn dans les eaux de pluie et de temps de contact entre ces eaux et les matériaux de la toiture.

II. Données nécessaires au modèle

II.1. Simulation du comportement hydrodynamique

Les flux en surface correspondent aux flux entrants correspondant à la pluviométrie sur la toiture végétalisée et aux flux sortants induits par l'évapotranspiration. Celle-ci a été calculée à partir de la formule de Penman-Monteith dont le protocole standardisé est proposé par l'American Society of

Civil Engineers (2005). Les données fournies pour caractériser le milieu en lui-même sont la teneur en eau et le potentiel matriciel, qui sont obtenus à partir des capteurs présents dans le substrat (Partie II paragraphe 2.2.2). Enfin, concernant les données de sortie du système, il est considéré que les débits en sortie de la couche de drainage correspondent à ceux fournis par le débitmètre à auget en sortie de gouttière. L'ensemble de ces données est fournie au modèle au pas de temps horaire.

II.2. Evaluation de la qualité du modèle hydrodynamique

Afin de déterminer la pertinence du modèle élaboré, le coefficient de corrélation et le critère de Nash ont été calculés entre données expérimentales et données simulées à un pas de temps horaire. Le premier, donné comme le rapport de la covariance des deux jeux de données sur le produit des deux écart-types de ces séries de données, permet de vérifier globalement que les données simulées suivent bien les tendances obtenues par les valeurs mesurées. Le critère de Nash quant à lui est un critère couramment utilisé en hydrologie pour comparer la forme de deux séries de données décrivant des hydrogrammes. Il exprime l'erreur relative entre le modèle et un modèle de référence défini par la moyenne des débits.

II.3. Simulation des flux de cuivre et de zinc

Les données apportées en entrée du modèle sont les concentrations de Cu et Zn en phase dissoute dans les dépôts atmosphériques recueillis, les interactions physico-chimiques entre la phase particulaire et le substrat étant très limitées. Un seul prélèvement étant réalisé par mois, il a été considéré que les apports d'ions métalliques étaient faits par les pluies à concentration constante tout au long du mois, égale à la moyenne obtenue dans les prélèvements mensuels.

III. Modélisation hydrodynamique

III.1. Calage sur le mois de janvier

Dans un premier temps, le modèle d'écoulement a été calé sur l'ensemble des données du mois de janvier 2012 à partir du module d'inversion d'HYDRUS-1D. Le jeu de paramètre obtenu pour ce modèle C0 est indiqué dans le Tableau 44. Le critère de Nash obtenu est peu satisfaisant car inférieur à 0 (-0,12). Ce modèle présente cependant un coefficient de corrélation élevé (0,82) indiquant qu'il reproduit correctement les variations de teneurs en eau dans le substrat (Figure 88). La bonne reproduction des transferts d'eau dans la toiture est également confirmée par la similarité des courbes de débit cumulé expérimentales et simulées (Figure 89). Les périodes sur lesquelles le modèle semble le moins performant sont celles présentant des précipitations très faibles. Une forte diminution de la teneur en eau est indiquée par le modèle alors qu'elle n'est pas forcément aussi visible dans la réalité, notamment sur la seconde période.

Période de faible pluviométrie avec forts biais entre teneurs en eau mesurées et simulées

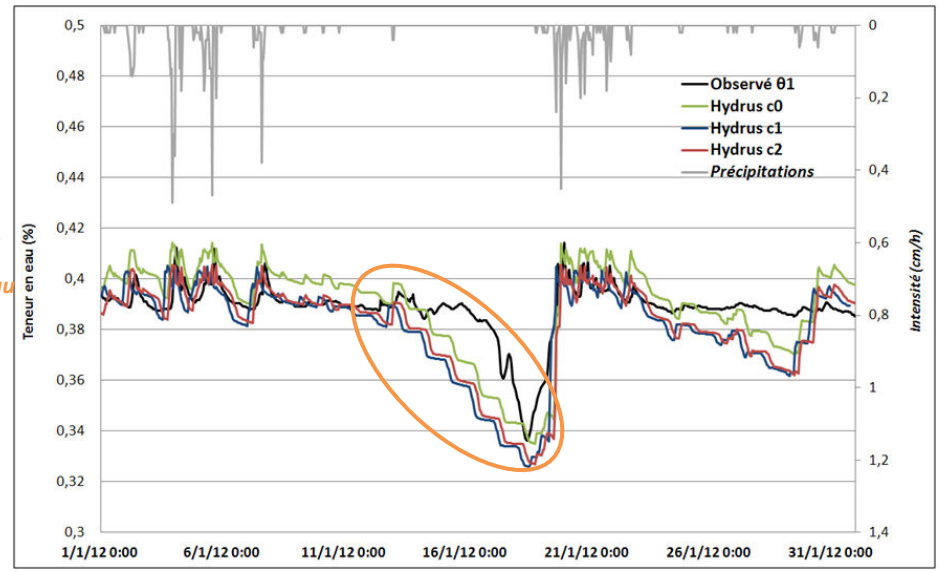


Figure 88 : Comparaisons des teneurs en eau observées et simulées via différents modèles avec le logiciel HYDRUS-1D sur janvier 2012

III.2. Calage sur les périodes pluvieuses de janvier

Afin d'améliorer les performances du modèle, des calages ont été réalisés sur deux séries de données du mois de janvier reprenant des périodes pluvieuses, le calage C1 a été obtenu sur la période du 1 au 10 janvier et le calage C2 du 21 au 25 janvier 2012 (Tableau 44). Ces nouveaux calages permettent d'obtenir des critères de Nash positifs et des coefficients de corrélation satisfaisants (Tableau 45). L'évaluation du modèle se poursuivra donc uniquement sur ces deux jeux de données.

Tableau 44 : Jeux de paramètres hydrodynamiques obtenus par calage sur différentes périodes

Modèle	Matériau	Θ_r	Θ_s	K_s (cm.h^{-1})	α (cm^{-1})	*n*	*l*
C0	***Substrat***	0,0515	0,459	777	0,0802	1,58	0,5
	Argile expansée	0,084	0,4	1195	0,52	6,8	0,5
C1	***Substrat***	0,0515	0,459	777	0,1047	1,4	0,5193
	Argile expansée	0,0132	0,9676	1195	0,5119	6,6	0,5398
C2	***Substrat***	0,0515	0,459	777	0,1205	1,4	0,5275
	Argile expansée	0,0181	1	1195	0,5703	7	0,4614

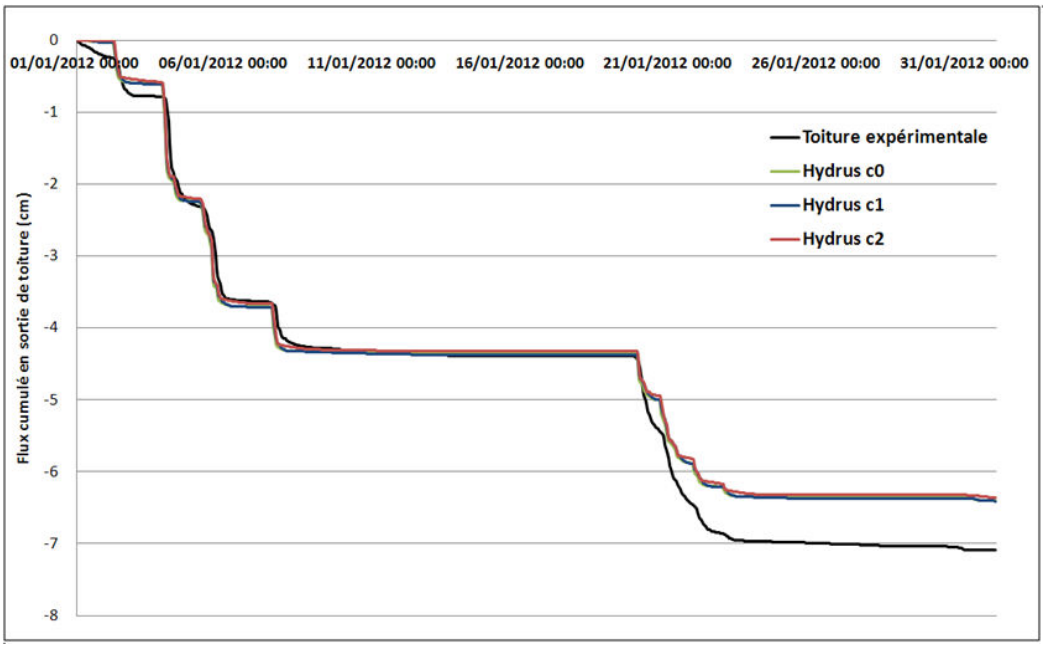


Figure 89 : Comparaisons des flux cumulés à l'exutoire pour différents modèles en janvier 2012

III.3. Sélection des chroniques de validation

HYDRUS-1D ne prenant pas en compte le changement de phase de l'eau lié aux variations de température, les mois présentant une période de gel dans le substrat ne peuvent être utilisés pour la validation, à savoir février et mars 2012.

Par ailleurs, l'évapotranspiration calculée a été mise en parallèle des précipitations obtenues pour les différents mois restants. Il a alors été observé que durant les mois de printemps et d'été, l'évapotranspiration cumulée sur un mois calculée par la formule de Penman-Monteith était très forte et beaucoup plus importante que les quantités d'eaux précipitées sur ce mois. Le même constat est visible sur l'ensemble de l'année 2012 (Figure 90). Or, les structures végétalisées contiennent une quantité d'eau limitée puisqu'elles ne présentent qu'une faible épaisseur de matériaux au dessus d'une couche étanche et ne peuvent donc pas évapotranspirer plus d'eau que ce qui est rentré pendant de longues périodes. Seuls les mois de novembre et décembre ont donc été conservés pour la validation de ces deux modèles, ces deux mois présentant en outre un bilan hydrique (précipitation - (ETP + volume à l'exutoire) = stockage) cohérent comme pour le mois de janvier.

Les modèles C1 et C2 ayant été calés sur une partie seulement du mois de janvier, les données du mois de janvier 2012 non utilisées pour leur calage respectif ont également été utilisées pour validation.

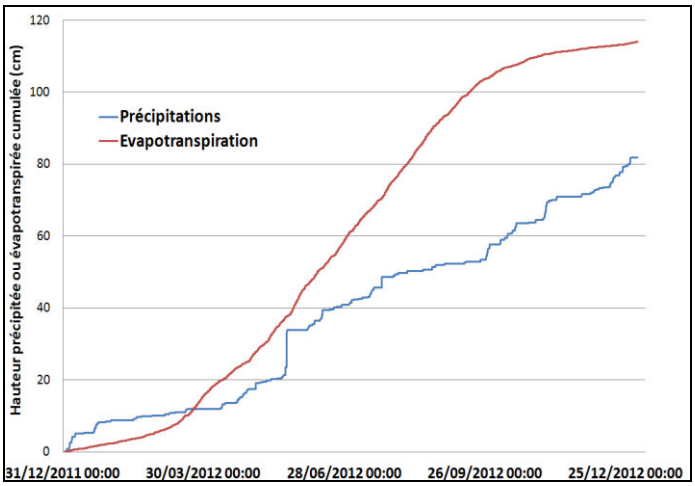


Figure 90 : Comparaison de l'évapotranspiration calculée et des précipitations réelles sur 2012

III.4. Validation des modèles

Les coefficients de corrélations et critères de Nash estimés sur les périodes de validation indiquées ci-dessus sont présentés dans le Tableau 45. Le modèle C2 est plus performant que le modèle C1 pour l'ensemble de ces paramètres et de ces plages de données. Une corrélation est visible entre l'évolution des tendances de teneur en eau mesurée et simulée dans le substrat par temps de pluie, même si un léger décalage est présent en permanence (Figure 88). Une difficulté à représenter les évolutions de la teneur en eau dans le substrat par temps sec est également visible. Cela peut expliquer en partie les critères de Nash faibles voire négatifs obtenus notamment pour le modèle C1. Concernant les volumes en sortie de toitures, les volumes simulés sont cohérents avec les valeurs observées sur la toiture expérimentale (Figure 89).

Tableau 45 : Performances des modèles C1 et C2 sur les différentes périodes de calage et de validation

	Sur période de janvier utilisée pour le calage		Sur tout le mois de janvier 2012		Sur la période de janvier non utilisée pour le calage		Sur novembre - décembre 2012	
Modèles	***Coeff. Corr.***	***Nash***	***Coeff. Corr.***	***Nash***	***Coeff. Corr.***	***Nash***	***Coeff. Corr.***	***Nash***
C1	0,62	0,10	0,83	-0,69	0,51	-0,09	0,44	-0,02
C2	0,61	0,25	0,83	-0,58	0,61	0,09	0,45	0,04

IV. Modélisation des phénomènes physico-chimiques

IV.1. Simulation des flux en sortie de toitures et teneurs en cuivre et zinc dans les matériaux

Lorsque les transferts de Cu et Zn sont simulés simultanément, le modèle ne converge pas. Les transferts de ces deux ions ont donc été modélisés séparément. Les données fournies et les équations utilisées par HYDRUS-1D prenant pour hypothèse que ces molécules ne sont pas réactives entre elles, les résultats obtenus pour chaque métal sont semblables, qu'ils soient modélisés ensemble ou séparément. Les flux mensuels de polluants simulés sont fortement sous-estimés par rapport aux flux mesurés. En effet, les résultats issus de la toiture végétalisée expérimentale montre un flux de Zn inférieur au flux sortant (de l'ordre de $9,9*10^{-5}$ mg cm^{-2} contre $1,8*10^{-4}$ mg cm^{-2} en entrée). Cependant les teneurs restent significatives contrairement au flux simulé par le modèle ($2*10^{-18}$ mg cm^{-2}). Concernant Cu, contrairement au flux fortement diminué fourni par le modèle en sortie de toiture ($3*10^{-16}$ mg cm^{-2}), l'abattement du flux par la toiture expérimentale n'est pas sensible pour le mois de janvier 2012 ($2,4*10^{-5}$ mg cm^{-2} en sortie contre $1,2*10^{-5}$ mg cm^{-2} en entrée). Une tendance à l'abattement des flux de Cu dissout sur cette toiture expérimentale est cependant observée sur de plus longues périodes, cette augmentation sur le mois de janvier n'est donc pas représentative des performances globales de la structure étudiée. Le modèle reproduit donc les capacités générales de rétention de Cu et Zn observées *in situ* avec cependant une forte surestimation de ce potentiel.

IV.2. Evolution des capacités de rétention au cours du temps

Les quantités de Cu et Zn adsorbés au préalable sur la structure expérimentale n'étant pas connues, il a été considéré dans la modélisation précédente que les quantités adsorbées au début du mois de janvier étaient nulles. Afin d'évaluer l'impact de la teneur initiale des matériaux sur la rétention de Cu et Zn, la simulation a été effectuée sur plusieurs cycles correspondant à deux mois (novembre et décembre). Après chaque cycle, l'état final des teneurs en Cu et Zn était utilisé comme état initial du cycle suivant. Afin de diminuer les nombres de cycle à simuler et réduire le temps de réalisation de l'essai, des concentrations « dopées » (donc très élevées par rapport à celles retrouvées dans les eaux de pluie) ont été utilisées pour ces simulations (10 mg L^{-1} contre 0,5 mg L^{-1}). On peut alors observer une augmentation sensible des flux en sortie de toitures au fur et à mesure des cycles et de l'augmentation des teneurs en ions sorbés sur les matériaux associés (Figure 91). Les flux en sortie restent cependant faibles devant ceux rencontrés en sortie de toiture expérimentale, malgré les concentrations beaucoup plus élevées apportées en entrée du modèle.

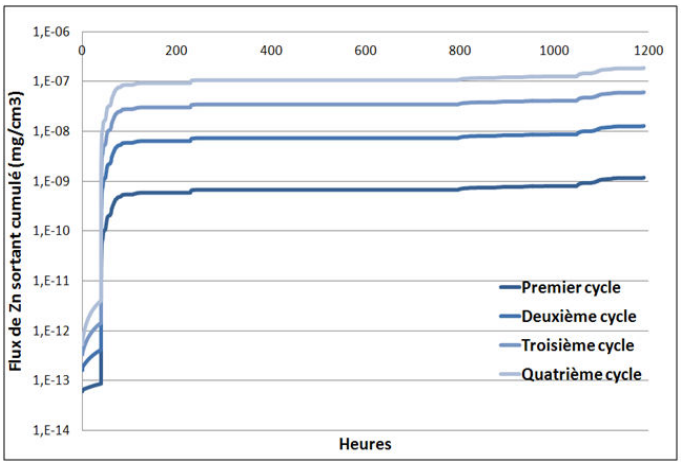


Figure 91 : Evolution des flux de zinc en sortie de toitures au fur et à mesure des cycles de simulation

IV.3. Evaluation des effets d'un changement d'épaisseur de l'argile expansée

L'argile expansée étant un matériau léger aux capacités de rétention de Zn importantes, il pourrait être opportun d'en augmenter l'épaisseur afin d'améliorer les capacités de rétention de la structure. L'épaisseur de la couche de drainage a été portée à 10 cm contre 5 cm sur la structure existante. La concentration en entrée prise en compte est toujours de 10 mg L^{-1} afin de pouvoir observer une évolution des concentrations, qui seraient nulles selon le modèle si on considérait les apports réels. Les flux en sortie ont alors été significativement réduits d'un ratio supérieur à 2 (Figure 92). Une augmentation de la capacité de rétention d'un système plus importante proportionnellement que l'augmentation de la hauteur de matériau traversé peut être observée dans les essais en colonne réalisés sur différents sorbents (Taty-Costodes et al., 2005), dans des ordres de grandeurs qui ne sont toutefois pas comparables avec les résultats obtenus à partir du modèle.

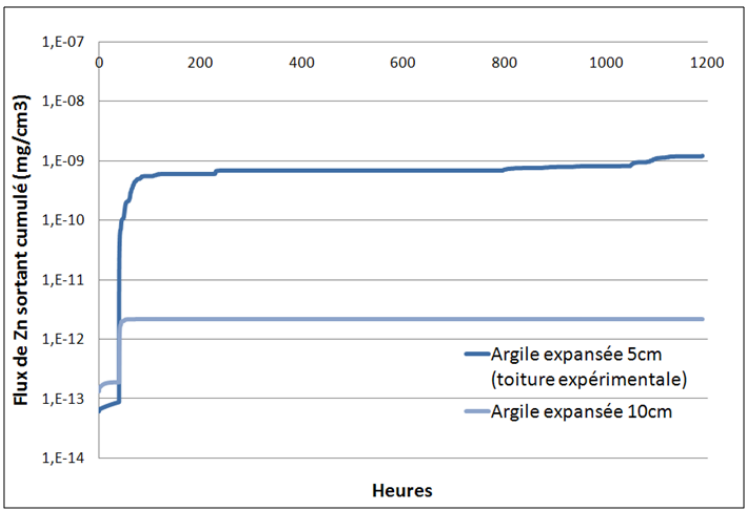


Figure 92 : Impact de la hauteur de drainage sur les flux de zinc cumulé en sortie de toiture

V. Discussion

V.1. Limites liées au modèle hydraulique

Une première limite associée au calage du modèle hydraulique est indépendante d'HYDRUS-1D et provient de l'évaluation de l'évapotranspiration. La formule de Penman-Monteith est la plus fréquemment utilisée notamment par Météo France. Cependant elle ne semble pas convenir à la modélisation de l'évapotranspiration par les *Sedums* présents sur les toitures végétalisées. Concernant la végétation, cette formule prend uniquement en compte leur hauteur (un paramètre à choisir pour les végétaux supérieurs et inférieurs à 12 cm). Or certains *Sedums*, en particulier lorsqu'ils sont soumis à un stress hydrique, peuvent adopter un métabolisme CAM (*Crassulacean Acid Metabolism*) (Schuber et Kluge, 1981 ; Pilon-Smits et al., 1991). Celui-ci a notamment pour caractéristique une ouverture des stomates uniquement durant la nuit afin de limiter les pertes d'eau par transpiration lors des heures les plus chaudes de la journée (Patel et al., 2010). Contrairement à des végétaux à métabolisme C3 ou C4, la majeur partie de la transpiration se fait donc la nuit plutôt que le jour dans ces conditions spécifiques de stress hydrique et reste relativement limitée. C'est d'ailleurs grâce à cette spécificité que ce type de végétaux est utilisé en végétalisation de toitures puisqu'elle leur permet d'avoir des besoins en eau moins importants et de ne pas nécessiter d'irrigation dans des conditions météorologiques normales. La transpiration des *Sedums* étant difficile à calculer à partir de formules existantes du fait de leurs spécificités, un projet en cours vise justement à la mesurer au cours du temps sur des toitures végétalisées expérimentales (Claverie et al., 2013).

Par ailleurs, le changement de phase de l'eau du fait de la température n'est pas pris en compte par HYDRUS-1D or ce phénomène influence fortement les écoulements d'eau lorsque les températures sont négatives. Ces deux aspects expliquent que le modèle obtenu est performant essentiellement sur les périodes humides à des températures tempérées.

V.1. Limites liées aux transferts physico-chimiques

Les résultats obtenus par les différentes simulations de transferts de polluants montrent une forte surestimation de la capacité de la structure à retenir Cu et Zn par rapport à ce qui a été observées sur la toiture expérimentale réelle, même lorsque la teneur initiale dans le matériau est considérée comme non nulle.

Cela peut provenir notamment des paramètres de caractérisation des cinétiques et isotherme d'adsorption des matériaux proposés. En effet, le choix des modèles cinétiques est très restreint et ne correspond pas forcément aux résultats obtenus avec ce substrat et cette couche de drainage. C'est

notamment le cas pour la cinétique d'ordre 1 qui ne correspond pas à celles observées, d'où la nécessité de réduire les gammes de temps considérées pour améliorer cette estimation.

En outre le pH des eaux en entrée et dans les matériaux n'est pas pris en compte. Pourtant celui-ci a un impact important sur les mécanismes de sorptions des ions métalliques sur les sols (Bradl, 2004). De plus, l'argile expansée présente un pH élevé, de l'ordre de 10, qui diffère sensiblement de ce qui peut être rencontrés dans des sols classiques.

Enfin, le modèle utilisé ne permet pas de prendre en compte les éventuels rejets de Cu ou de Zn, qui peuvent être soient initialement présents dans les matériaux et lixiviables soient issues des dépôts atmosphériques et temporairement adsorbés dans la structure comme évoqué dans la partie.

Le fait d'entrer un apport de polluant constant dans la structure lors des évènements pluvieux est également une hypothèse simplificatrice qui ne prend pas en compte les variations de teneurs en éléments traces métalliques potentiellement importantes entre deux évènements pluvieux et au cours d'un même évènement et pourrait avoir un impact sur la façon dont est modélisé la rétention de ces éléments par HYDRUS-1D.

Conclusion

Utiliser les toitures végétalisées en vue de dépolluer les eaux de pluie nécessite une conception spécifique avec une sélection de matériaux permettant d'optimiser cette fonction. En complément d'essais grandeur nature menés à long terme permettant de caractériser les capacités de rétentions d'une structure, la modélisation pourrait aider à tester en un temps limité des modalités variées en terme de nature de matériaux mais également d'épaisseurs de chaque couche. L'objectif de cette première étape dans la constitution d'un tel outil visait à simuler les phénomènes de sorption de Cu et Zn en phase dissoutes sur le substrat et le drainage grâce à un outil de modélisation communément utilisé dans la littérature comme HYDRUS-1D et son module physico-chimique à partir de données issues d'une toiture végétalisée expérimentale du Laboratoire de Nancy (Cerema). Les résultats obtenus montrent plusieurs limites de cette première mise en œuvre du modèle aussi bien en terme de qualité de données fournies au logiciel (surestimation de l'ETP notamment) que de paramètres non pris en compte par celui-ci comme la température. La modélisation des transferts de Cu et de Zn reproduit les tendances de rétention observées sur les toitures réelles tout en les surestimant largement. Les nombreuses hypothèses simplificatrices pour la caractérisation des réactions entre matériaux et métaux, imposées par ce module spécifique de transfert physico-chimique disponible dans HYDRUS-1D, peuvent notamment être mises en cause tout comme la fréquence des données qualité fournies, disponibles uniquement à un pas de temps mensuel. Le logiciel utilisé a toutefois permis d'évaluer l'impact d'un changement d'épaisseur de la couche de drainage, modification qui peut être envisagée

en vue d'améliorer les capacités de rétention des polluants par la structure. En outre, les résultats issus de ces modèles ont montré un impact de la teneur initiale des matériaux sur leurs capacités de rétentions ce qui indique que la saturation de la structure au cours du temps pourra bien être prise en compte par le modèle. De nombreux mécanismes complémentaires seront également à simuler comme la filtration des ETM atmosphériques apportés sous forme particulaire ou encore l'émission de ces éléments par les différentes couches de la structure.

ABSTRACT

With the development of upstream stormwater management and rainwater reuse, it has often been considered to use green roofs to improve water quality. Vegetative roofs are indeed constituted by two materials used in water depollution, a "soil" and plants. 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.

Seven experimental roofs (six vegetalized ones + a gravel one) were built in 2010 near Nancy (France) on Cerema – DTer Est buildings. Concentrations and fluxes of the following trace metals (TM) were followed during two years: As, B, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, Sb and Zn. Materials and plants were sampled regularly. Moreover, substrate evolution and specialization of TM plant and substrate thin sections were observed thanks to thin sections. Batch and column tests were conducted to evaluate TM availability and to characterize material abilities to sorb Cu and Zn.

In terms of pollutant loads, fertilizers could represent a significant amount if Professionnal Rules were thoroughly applied. In green roof waters, concentrations are variable, generally higher than rain water ones and globally in the same range than classical roof ones. Thanks to a significant decrease in roof water volume in comparison to rain water ones, TM fluxes tend to decrease and all the green roofs prove to store Cd, Cr, Cu Pb, Sb and Zn with distinct efficiencies according to the elements and structures. Ni and B emissions by different substrates were identified. One of the drainage material also emits significant amounts of As. In correlation with laboratory experiments, it was shown that green roof structures provide favorable conditions to store TM brought by atmospheric deposits. The different layers act as a filter for TM on particles. Besides, the high pH and the presence of organic matter and iron oxide-hydroxides enhance ion sorption in substrate and drainage layers constituted of mineral and organic materials. However, substrate observations after two and a half year revealed characteristic evolution, such as organic matter content drop off, which could induce a decrease in the green roof ability to retain TM in the long run. As for TM emission by materials, two main mechanisms were identified: fine particle leaching, which generally diminishes after a few months and available TM lixiviations. The second one is not systematically immediate as TM availability varies over time in particular under the effect of plants and soil fauna. Lastly, plants have an indirect impact on water quality improvement mainly thanks to a temporary storing of a part of substrate available TM.

Several technical suggestions are drawn from these results to design green roofs inducing a limited deterioration of rain water quality or able to store some atmospheric pollutants, according to the specific context of considered projects. One of the main suggestions is to use materials with low total and available TM contents. Furthermore, these experimentations were carried out only during the first years of the green roof life. It is, therefore, necessary to continue green roof observations to confirm the sustainability of their TM retention abilities and mechanisms in the long run.

Key words: *green roof, metal, water, storing, emission, designing.*

RESUME

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. Ces structures sont en effet munies d'un « sol » et de plantes, dont le potentiel de rétention de polluants est avéré. 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 en jeu dans ces structures est donc nécessaire pour une sélection pertinente des substrats et drainages utilisés.

Sept parcelles expérimentales (six végétalisées + un témoin en gravier) ont été construites en 2010 sur les toitures du Laboratoire de Nancy (Cerema – Direction territoriale Est). Les concentrations et flux d'éléments traces métalliques (ETM) : As, B, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, Sb, Zn ont été suivis pendant deux ans. Des prélèvements de matériaux et végétaux ont également été effectués ponctuellement. De plus, des lames minces ont été réalisées afin d'observer plus précisément l'évolution des substrats. En parallèle, des essais en batchs et en colonnes ont été effectués afin de caractériser plus précisément les capacités de ces matériaux à retenir le cuivre et le zinc et d'évaluer la disponibilité des ETM présents.

En termes d'apports aux structures, les engrais peuvent constituer une source non négligeable d'ETM si les préconisations professionnelles d'apports annuels venaient à être suivies. En sortie de toitures végétalisées, les eaux présentent des concentrations variables, généralement supérieures à celles des eaux en entrée et globalement dans la même gamme que celles de toitures classiques. Grâce à une diminution significative des volumes d'eau en sortie par rapport à l'entée, les flux montrent une rétention de Cd, Cr, Cu, Pb, Sb et Zn par l'ensemble des structures, mais variable selon les éléments. Des émissions de Ni et B, issus de différents substrats, ont été identifiées. Des flux importants d'As ont également été émis par l'une des couches de drainage. Ces observations, confrontées aux résultats obtenus en laboratoire, ont permis d'établir que les structures de toitures végétalisées présentent des conditions favorables à la rétention des ETM apportés par l'atmosphère. Les différentes couches jouent un rôle de filtre mécanique sur les éléments apportés sous forme particulaire. Par ailleurs, la présence de matière organique et d'oxyhydroxydes d'aluminium et de fer, ainsi qu'un pH élevé favorisent la rétention des ions libres dans les substrats et drainages composés de matières minérales et organiques. L'étude des substrats après plus de deux ans et demi de vie de la toiture montre cependant une évolution de ces caractéristiques qui pourrait induire une diminution des capacités de rétention au cours de la vie de la toiture. Concernant les émissions d'ETM par les matériaux, deux principaux mécanismes ont été identifiés. Le premier est le lessivage de particules fines, en particulier issues du drainage, qui s'atténue au bout de quelques mois. Le second est une lixiviation d'éléments disponibles. La disponibilité des ETM présents variant au cours du temps, notamment sous l'action des végétaux et de la faune du sol, ce type de rejet n'est pas systématiquement immédiat.

L'ensemble de ces résultats montre l'importance de l'utilisation de matériaux présentant des quantités d'ETM totales et disponibles faibles lorsqu'un objectif d'amélioration de la qualité des eaux en sortie de toitures végétalisée est recherché. En outre, ces expérimentations ont seulement porté sur les premières années de vie de ces toitures végétalisées. Il est donc nécessaire de poursuivre leur suivi afin de s'assurer de la pérennité de leurs capacités et mécanismes de rétentions des apports d'ETM atmosphériques et anthropiques.

Mots clefs : toiture végétalisée, émission, rétention, métaux, eaux pluviales.