# OBSERVATOIRE DES POLLUANTS URBAINS (OPUR)



# **TOITEAU:**

CONTRIBUTION DES MATERIAUX DE COUVERTURES A LA CONTAMINATION METALLIQUE DES EAUX DE RUISSELLEMENT

### CONTEXTE

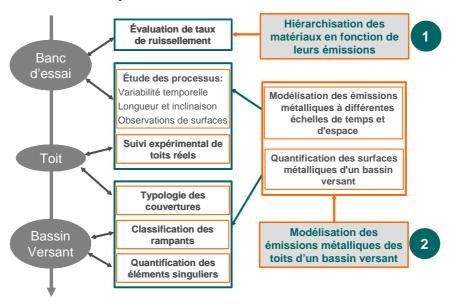
Les travaux menés par le CEREVE dans le cadre du projet OPUR, et notamment les travaux menées sur le bassin versant du Marais en 1996-1997, ont mis en évidence la forte contamination métallique des eaux de ruissellement de certaines toitures. Dans le cas du Marais, cet apport métallique a pu être imputé à la corrosion des matériaux métalliques utilisés pour la couverture des toits et l'évacuation des eaux pluviales. Cependant, les connaissances sur les différents éléments de toiture et matériaux incriminés dans cette corrosion, leur taux de relargage, leur fréquence d'utilisation dans le contexte architectural parisien étaient à ce moment très limitées. Ces connaissances sont pourtant des éléments clefs pour le développement de stratégie de réduction à la source des flux polluants, telles que préconisées par la directive européenne cadre sur l'eau DCE 2000/60/CE (Parlement Européen).

## **OBJECTIFS**

L'objet du projet TOITEAU, mené par le CEREVE et le CSTB, avec le soutien de l'Agence de l'Eau Seine Normandie, est la caractérisation et la quantification des émissions métalliques dans les eaux de ruissellement par les matériaux (matériaux de couverture mais aussi ouvrages d'étanchéité et d'écoulement des eaux) utilisés dans le cas des toitures franciliennes. Les travaux menés ont visé (1) à évaluer le potentiel émissif des différents matériaux de couverture utilisés en Île-de-France (approche expérimentale à l'échelle de bancs d'essais), conduisant à une hiérarchisation des matériaux en fonction de leurs niveaux d'émission; (2) à comprendre et identifier les paramètres importants pour l'extrapolation des données de ruissellement à différentes échelles spatiales et temporelles, afin de développer un outil permettant l'évaluation des flux métalliques émis par les toitures à l'échelle d'un bassin versant.

### METHODOLOGIE

La méthodologie mise en place s'articule autour des deux objectifs principaux mentionnés précédemment et se base sur 3 échelles spatiales croissantes : du banc d'essai au bassin versant, en passant par le toit. Cette méthodologie est schématisée ci-après.



 $Figure\ 1.\ M\'ethodologie\ g\'en\'erale\ mise\ en\ place\ dans\ le\ cadre\ de\ TOITEAU$ 

La première partie du travail a donc consisté à développer et à exploiter, sur deux sites différents en Ile de France (Créteil et Champs sur Marne), des bancs d'essais expérimentaux (Figure 2) d'1/2 m², inclinés de 5° (afin de limiter les effets liés à l'orientation), testant 12 matériaux métalliques issus de 5 familles (zinc, cuivre, plomb acier, aluminium), sous différentes mises en œuvre (panneaux, gouttières, crochets de fixation et éléments d'étanchéité), durant 14 mois, divisés en 13 périodes d'expositions : à l'issue de chaque période, l'ensemble des eaux de ruissellement de chaque banc étaient collectées, permettant de mesurer les flux métalliques ruisselés pour chaque matériau et chaque espèce métallique. 13

espèces métalliques ont été quantifiées dans les eaux de ruissellement collectées (analyse de la fraction métallique acidosoluble par ICP-AES) ce qui a permis (1) d'acquérir une importante base de données de taux de ruissellement annuels par les différents matériaux, (2) de hiérarchiser ces matériaux en fonction de leur potentiel polluant, à travers la définition d'un indice de contamination métallique (ICM) se basant sur les émissions de Cd, Cu, Ni, Pb et Zn et permettant de tenir compte des différences de toxicité des métaux.



Figure 2. Photos des différents types de maquettes exposées, de gauche à droite : panneau, gouttière, crochets de fixation, éléments d'étanchéité en plomb.

Dans le cadre de la deuxième partie de TOITEAU, un travail d'identification des paramètres déterminants pour l'évaluation des émissions des matériaux à différentes échelles de temps a été réalisé afin de travailler à la modélisation de ces émissions en fonction des différents paramètres d'exposition.

Parallèlement, d'autres bancs d'essais expérimentaux en zinc ont été exploités afin de déterminer les effets de longueur et d'inclinaison des panneaux sur les émissions de zinc dans le but de déterminer des règles d'extrapolation spatiale des résultats de ruissellement obtenus sur la première série de bancs d'essais.

Enfin, l'identification et la quantification des surfaces de rampants à l'échelle d'un bassin versant est à réaliser grâce à un outil de classification d'image basé sur l'analyse de la radiométrie des matériaux à partir d'une photo aérienne.

## RESULTATS

### 1. Emissions métalliques des différents matériaux

• Caractéristiques de l'exposition

### <u>Pluviométrie</u>

Les matériaux ont été exposés pendant un peu plus de 14 mois, du 28 novembre 2006 au 4 février 2008. Ces 14 mois ont été divisés en 13 périodes d'exposition, présentant des caractéristiques différentes, tant en termes de durée (15 à 52 jours), qu'en termes de pluviométrie correspondante (de 29 à 82 mm à Créteil et de 34 à 79 mm à Champs).

Les hauteurs de pluie cumulées lors de cette période d'exposition sont bien représentatives de la pluviométrie moyenne dans la région parisienne ces 10 dernières années : une moyenne annuelle de 638 et 669 mm a été mesurée, respectivement pour Créteil et Champs, tandis que la moyenne annuelle de précipitations rapportée pour Paris pour la décennie 1999-2008 est de 653 mm (Données Météo France).

En revanche, la répartition au cours de l'année a été particulièrement atypique, avec un mois d'avril 2007 particulièrement chaud et sec (91% de déficit par rapport à la pluviométrie moyenne de la décennie précédente), et un mois d'août très humide (73 % d'excédent). Les mois de février et mai, sont quant à eux globalement plus pluvieux que la moyenne (d'environ 40%) et les mois de janvier, septembre, octobre et novembre sont plus secs, respectivement de 48%, 67%, 30% et 40%. Pour les autres mois, les différences observées n'excèdent pas les 15%.

### Contamination atmosphérique

Les niveaux de SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub> et O<sub>3</sub>, pouvant avoir un impact sur la corrosion des matériaux et par voie de conséquence sur les niveaux d'émissions dans les eaux de ruissellement, ont été mesurés grâce à des échantillonneurs passifs (IVL – Suède). Les niveaux de contamination atmosphériques moyens sur l'ensemble de la période d'exposition sont rapportés dans le Tableau 1.

Tableau 1. Niveaux de pollution mesurés sur la période d'exposition (en µg.m-3).

	<del>-</del>	SO <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>
Cr	éteil	2,9	34,5	35,8
Champs-	sur-Marne	2,0	24,7	39,8
Paris *	Moy.	4	34	33
	Min-Max	2-7	22-47	31-46

<sup>\*</sup> Donnée AirParif

Les valeurs rapportées pour Paris par (AirParif 2008b) sont également indiquées afin de vérifier la représentativité de nos sites d'études par rapport à l'agglomération parisienne. Pour les trois polluants, les niveaux de contamination observés sur les sites sont du même ordre de grandeur que ceux observés par AirParif dans Paris Intra-Muros, nos sites d'études sont donc globalement bien représentatifs de l'agglomération.

Nous avions choisi ces sites, très différents en termes de tissu urbain et d'exposition à diverses sources de contamination atmosphérique, dans le but de pouvoir appréhender l'impact de la corrosivité de l'atmosphère sur le comportement des matériaux. Finalement, du fait des importantes diminutions de la contamination atmosphérique ces 15 dernières années, cette corrosivité atmosphérique s'avère assez peu différente d'un site à l'autre.

### • Flux métalliques émis par les matériaux

<u>Retombées atmosphériques.</u> Afin de pouvoir discriminer les métaux issus des matériaux exposés de ceux dus aux retombées atmosphériques locales, les apports atmosphériques ont été mesurés sur chacun des sites grâce à un banc d'essai en plexiglas. Les retombées sèches et humides ont été évaluées simultanément. Le Tableau 2 rapporte les flux annuels de dépôts atmosphériques métalliques observés sur nos sites d'exposition.

Tableau 2. Dépôts atmosphériques mesurés en mg. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> sur chacun des sites d'étude

	Al	Ba	Cd	Co	$\mathbf{Cr}$	Cu	Fe	Li	Mn	Ni	Pb	Sr	Ti	Zn
Créteil	26,0	2,6	0,1	0,3	0,2	4,4	34,7	0,1	2,9	0,4	2,1	3,1	0,8	34,2
Champs	19,4	1,7	0,06	0,4	0,2	2,9	21,7	0,08	2,6	0,3	1,3	4,1	0,6	56,9

Les retombées sont comparables entre nos sites, avec un écart observé entre les deux valeurs inférieur à 25% pour 8 éléments.

Néanmoins, certaines différences méritent d'être soulignées. On note ainsi que les dépôts atmosphériques de l'aluminium et du fer sont supérieurs à Créteil, respectivement de 25 et 37%. Cette différence entre les sites s'explique certainement par la différence du niveau de pollution atmosphérique, notamment en ce qui concerne les particules émises par le trafic automobile et les industries voisines beaucoup plus présentes à Créteil qu'à Champs sur Marne. D'autre part, le toit terrasse de Créteil, en gravier, pourrait piéger ces éléments majeurs et les restituer en continu, à cause du ré-envol des poussières. Concernant le zinc, la tendance est clairement inverse, avec un dépôt mesuré à Champs sur Marne 40 % plus important qu'à Créteil. Dans ce cas précis, il est à noter que le banc d'essai installé à Champs est fixé sur un toit terrasse en caillebotis en acier galvanisé. L'érosion de ce matériau, combinée au vent qui favorise le ré-envol est probablement à l'origine de l'excédent de zinc mesuré à Champs.

Concernant les autres éléments, les émissions sont supérieures à Créteil qu'à Champs, avec des écarts observés de 10% pour le manganèse, de 20 à 25% pour le lithium, le titane et le nickel et supérieurs à 35% pour le baryum, le cadmium, le cuivre et le plomb. Seuls le cobalt et le strontium présentent des écarts de l'ordre de 25% à l'avantage de Champs. La présence de ces éléments en quantité plus importante sur ce site pourrait être liée aux activités locales menées au CSTB. Dans la suite, pour l'évaluation des émissions métalliques par les matériaux, ces apports atmosphériques ont été systématiquement déduits des flux mesurés au pied de chaque banc d'essai.

#### Emissions par les matériaux.

✓ Quelles espèces? Le Tableau 3 synthétise les espèces ayant pu être quantifiées dans les eaux de ruissellement collectées au pied des différents bancs d'essais expérimentaux exploités.

		•												
	Al	Ba	Cd	Co	Cr	Cu	Fe	Li	Mn	Ni	Pb	Sr	Ti	Zn
Zinc neuf	X	X					X		X		X		X	X
Zinc Anthra	X	X			X		X		X	X	X		X	X
Zinc ancien	X	X	X		X	X	X	X	X		X	X	X	X
Plomb neuf	X	X				X	X		X		X	X	X	X
Plomb ancien	X	X	X	X		X	X	X	X	X	X	X	X	X
Acier Galva	X	X			X		X		X		X		X	X
Acier Prépeint	X	X				X	X		X		X	X	X	X
Acier Inox	X	X			X	X	X			X			X	
Aluminium	X	X			X	X	X		X		X		X	
Aluminium prépeint	X	X				X	X		X			X		X
Cuivre neuf	X	X			X	X	X		X		X	X	X	X
Cuivre ancien	X	X			X	X	X		X		X	X	X	X

Tableau 3. Espèces quantifiées dans les eaux de ruissellement des matériaux testés

Il apparaît nettement que les matériaux n'émettent pas tous les mêmes espèces, même si certains éléments sont présents de façon récurrente : l'aluminium, le baryum et le fer, présents pour tous les matériaux, le manganèse et le titane exceptés respectivement pour l'acier inoxydable et l'aluminium prépeint.

Dans tous les cas, la présence de ces espèces métalliques dans les eaux de ruissellement peut avoir deux origines distinctes : la composition de l'alliage du matériau considéré (il est normal de retrouver dans les eaux de ruissellement des éléments constitutifs de l'alliage considéré) et les apports atmosphériques auxquels sont soumis les panneaux (même si les dépôts atmosphériques sont mesurés grâce aux panneaux en plexiglas, il est possible que des différences d'interactions entre les particules des dépôts et la surface des matériaux -conduisent à une sous-estimation des dépôts atmosphériques et par voie de conséquence à une surestimation des émissions métalliques par les matériaux. Le plexiglas étant une surface très lisse par rapport aux matériaux métalliques testés, un ré-envol est possible sur les panneaux de référence nous servant à évaluer les retombées atmosphériques).

On note que les matériaux anciens, notamment le zinc et le plomb, émettent davantage d'espèces que leurs homologues neufs : c'est le cas pour les éléments peu répandus tels que le cadmium, le cobalt, le chrome ou encore le lithium. Pour ces matériaux, la différence entre les deux origines possibles est plus difficile à faire. En effet, une part des éléments détectés peut être due à des impuretés initialement présentes dans le matériau, tandis qu'une autre partie est davantage liée à une capture progressive, dans la couche de corrosion du matériau, d'éléments présents dans l'atmosphère durant les quelques dizaines d'années d'exposition antérieure, le matériau les restituant petit à petit au fil des évènements pluvieux.

✓ Quels niveaux d'émissions? Les flux annuels émis par les différents matériaux testés sont rapportés sur la Figure 3 – les éléments ciblés par la directive cadre (Cd, Ni et Pb) ainsi que ceux dont les émissions dépassent 1 g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> (Cu et Zn) sont mis en évidence en gras. Pour avoir un aperçu des émissions de l'ensemble des matériaux, toutes les émissions ont été ici exprimées en mg. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>, que les données aient été acquises sur des panneaux ou des gouttières. On constate que (1) en fonction du matériau, le niveau d'émission des différentes espèces est très variable, (2) certaines espèces peuvent être émises dans des quantités très importantes, de l'ordre de quelques g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> – ces espèces correspondant à l'élément constitutif principal de l'alliage considéré.

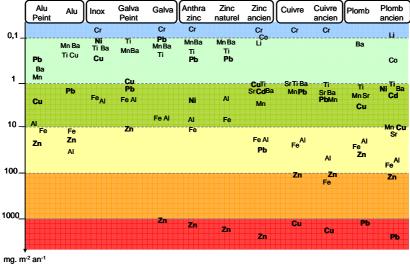


Figure 3. Espèces émises par les différents matériaux, classés par famille.

Concernant les matériaux en *Aluminium*, on note que les flux émis sont tous très faibles comparés à ceux mesurés dans les eaux de ruissellement des autres matériaux : à l'exception de l'aluminium, du fer et du zinc, aucune valeur n'excède les 3 mg. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>. Par ailleurs, il semble que le panneau en aluminium émette également un peu de plomb et que l'aluminium prépeint (tout comme l'acier prépeint), émette un peu de cuivre (1,6 mg. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>). Ce phénomène reste pour l'instant inexpliqué, le cuivre n'étant a priori pas employé dans les peintures.

Pour les matériaux en *Aciers*, les profils d'émissions des trois matériaux testés ne sont pas très différents : l'aluminium, le baryum, le fer, le manganèse et le titane sont retrouvés dans tous les cas. Chaque matériau présente tout de même ses particularités: ainsi, l'acier galvanisé relargue du chrome, et du plomb, l'acier galvanisé prépeint libère du cuivre, du plomb et du strontium, l'acier inoxydable émet du cuivre, du chrome, du nickel et du strontium. La présence de chrome, même en très faible dose, dans les ruissellements de ces matériaux est certainement due à leur base ferritique. La présence de plomb dans les aciers galvanisés est plus difficile à expliquer, de même que celle du cuivre dans l'inox et le galva prépeint. Le strontium est assez souvent employé en traitement de finition des surfaces. Enfin, la présence de nickel dans l'acier inoxydable s'explique assez facilement, puisqu'il intervient dans la composition du matériau, lui conférant des propriétés de robustesse en combinaison avec le chrome. Dans tous les cas, les émissions mesurées pour ces éléments sont particulièrement faibles, toujours inférieures à 2 mg. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>, voire inférieures à 1 mg. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>.

La Figure 4 illustre les profils d'émissions des matériaux en *Plomb* et en *Cuivre*.

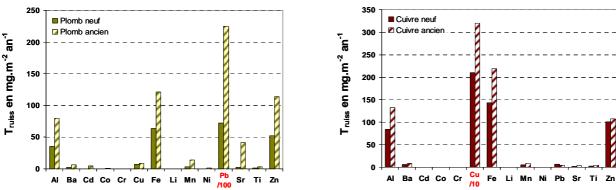


Figure 4. Profils des émissions par les matériaux en Plomb (à gauche) et en Cuivre (à droite). Données recueillies à Créteil.

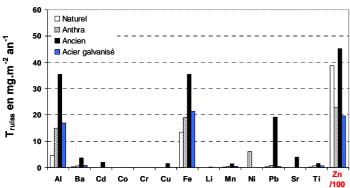
Les profils d'émissions des matériaux en *Plomb* (Figure 4 – à gauche) sont assez différents, tant en termes de nombre d'espèces que de quantités émises, toujours à l'avantage du matériau ancien. Les émissions de plomb sont également plus importantes pour le matériau ancien que pour le neuf, de 50% à Créteil et de 37% à Champs. Ces émissions sont importantes, de l'ordre de la dizaine de grammes par mètre carré et par an : 7,2 à 7,6 g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> pour le plomb neuf et 11,0 à 22,5 g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> pour le plomb ancien.

Les émissions par les matériaux en *Cuivre* (Figure 4 – à droite) sont en revanche assez voisines en termes de profils pour les deux matériaux testés. Seules les quantités diffèrent, là encore à l'avantage du matériau ancien. Les émissions de cuivre par exemple sont beaucoup importantes pour le matériau ancien que pour le neuf, respectivement de 34% à Créteil et de 25% à Champs. Elles varient de 1,6 à 2,1 g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> pour le matériau neuf et de 2,1 à 3,6 g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> pour l'ancien.

Enfin, les émissions par les matériaux en **Zinc** (zinc naturel, anthra-zinc, zinc naturel ancien et acier galvanisé) sont synthétisées sur la Figure 5.

Concernant les différences entre les matériaux, il apparaît que le vieux zinc émet davantage d'espèces, et en plus grande quantité, que les autres matériaux. Cela s'explique à la fois par la qualité initiale de l'alliage, et par l'impact de l'exposition antérieure du matériau. Ainsi, le matériau ancien présente des niveaux d'émissions importants et relargue des espèces absentes des ruissellment des autres matériaux. La présence de Cd est à relier à la qualité initiale de l'alliage (changement de technique de purification du minerai à partir de 1982), le niveau important de plomb (environ 20 mg. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>) résulte vraisemblablement de l'émission de métaux capturés par la couche de patine durant l'exposition antérieure aux essais (exposition lors de l'utilisation massive d'essence plombée). En comparant le zinc ancien avec le zinc neuf, il apparaît que ce dernier émet très peu d'espèces, et les quantités relarguées sont extrêmement faibles, toutes inférieures à 1 mg. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>.

L'anthra-zinc présente le même type de profil que le zinc neuf, à l'exception du fait qu'il relargue du nickel, en quantité non négligeable  $(5,5\ a\ 6\ mg.\ m^2\ an^1\ selon\ le site)$ . Cet élément est en effet utilisé dans le traitement de surface (phosphatation occasionnant la formation d'une couche de  $Zn_3(PO_4)_2$ . Le nickel étant situé dans la couche de surface, on peut s'interroger sur la dynamique et la durabilité dans le temps des émissions de nickel. A l'échelle de nos 14 mois d'exposition, nous avons pu observer que le ratio Ni / Zn tend à diminuer au fil des périodes d'exposition, de 50% entre la première période et la dernière période d'exposition. L'acier galvanisé présente lui aussi un profil similaire à celui du zinc neuf, tant quant aux espèces émises qu'aux quantités émises. Cela était plus ou moins attendu dans la mesure où c'est une couche de zinc qui recouvre l'acier.



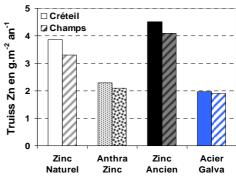


Figure 5. Profils des émissions par les matériaux à base de Zinc, données recueillies à Créteil (à gauche) et zoom sur les émissions de zinc (à droite).

Concernant maintenant les émissions de zinc (Figure 5 – à droite), on note qu'un effet de l'âge du matériau est sensible avec un taux de ruissellement pour le zinc ancien supérieur de 15% à 20% (selon le site) à celui mesuré pour le zinc neuf, cet effet de l'âge du matériau reste néanmoins difficile à appréhender en raison de la qualité des alliages qui peut être très différente. Les émissions de zinc mesurées sur le panneau en anthra-zinc montrent que le traitement de surface subi par ce dernier permet de réduire d'environ 40% les taux de ruissellement en zinc, par rapport aux émissions mesurées sur le panneau en zinc neuf. Les émissions du zinc neuf montrent que ce matériau tend à émettre davantage de zinc que l'acier galvanisé : 49% de plus à Créteil et 43% à Champs. Il en va de même si l'on compare les émissions de zinc de l'anthra-zinc à celles de l'acier galvanisé, même si l'écart entre les matériaux se limite cette fois à 14 et 11%, respectivement à Créteil et à Champs.

#### ✓ Comparaisons avec la littérature

Les résultats obtenus sont de manière générale en assez bonne corrélation avec la littérature.

En effet, pour le cuivre, nos taux de ruissellement annuels évoluent entre 1,6 et 3,6 g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup>. Les taux rapportés par la littérature sont généralement compris entre 0,35 (Leuenberger-Minger et al. 2002) et 1,7 (Odnevall Wallinder et al. 2000) g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> pour le cuivre neuf en milieu urbain ou péri-urbain et entre 1,7 (Sandberg et al. 2006) et 2,1 (He et al. 2001a) g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> pour un matériau ancien exposé dans le même type d'environnement.

Pour le plomb, les références sont plus rares. La seule donnée rapportée fait état d'un taux de ruissellement de 4 g. m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> pour un matériau neuf ((Schultze-Rettmer 1995). Nos résultats sont assez supérieurs.

Enfin, les données relatives au zinc sont regroupées dans le Tableau 4, pour des conditions d'expositions équivalentes (même taux de SO<sub>2</sub>, même inclinaison).

	Créteil	Champs	Stockholm	Lägern	Payerne		
Site et référence	Fra	nce	Suède	Su	isse		
	Cette	étude	(Odnevall Wallinder et al. 2001a)	(Leuenberger-Minger et al. 2002)			
Zinc Neuf	3,9	3,3	3,3	5,0	5,5		
Anthra-Zinc	2,3	2,1	1,8	-	-		
Zinc Ancien	4,5	4,2	4,9	-	-		

Tableau 4. Taux de ruissellement en zinc S<sub>proj.</sub> (exprimés en g.m<sup>-2</sup> an<sup>-1</sup> par surface projetée)

Les valeurs sont bien comparables entre les données de notre étude et celles de Stockholm. Les différences observées avec les données obtenues en Suisse sont à relier à une pluviométrie plus importante dans ce cas précis.

### • Hiérarchisation des matériaux au regard de leurs émissions métalliques

Cette hiérarchisation a été effectuée à travers la définition d'un Indice de Contamination Métallique – calculé comme étant égal à la somme des ratios entre concentrations annuelles mesurées pour les 5 espèces retenues comme critère de classement (Cd, Ni, Pb, Cu et Zn)sur les bancs d'essais et valeurs seuils de la norme environnementale considérée (SEQ-Eau. Système d'Evaluation de la Qualité des cours d'eau. Version 2, 2003).

Les matériaux les plus neutres au niveau de leurs émissions métalliques sont donc les aluminiums, suivis par les aciers inoxydable et galvanisé prépeint. Viennent ensuite l'acier galvanisé et l'anthra-zinc, puis les zinc naturel neuf et ancien. Les matériaux neufs en plomb et cuivre arrivent alors, suivis par leurs homologuent anciens qui présentent des ICM plus fort du fait de leurs forts niveaux d'émissions.

## 2. Variabilité temporelle des émissions (Zn, Cu et Pb)

Pour les émissions des espèces Zn, Cu et Pb, issues des matériaux en zinc, cuivre et plomb, des corrélations ont été recherchées avec les conditions d'exposition, dans le but d'identifier les paramètres à prendre en compte lors de la modélisation des émissions à différentes échelles de temps.

Concernant les paramètres liés à la pluviométrie, il est apparu que la hauteur de pluie est un paramètre très important, systématiquement corrélé aux émissions métalliques. En revanche l'intensité de la pluie et la durée de temps humide ont

donné des corrélations plus aléatoires, ne permettant pas de tirer de conclusion tranchée concernant leur utilité lors de la modélisation des émissions. Concernant les paramètres liés au niveau de pollution atmosphérique auquel sont exposés les matériaux, aucune corrélation n'a pu être mise en évidence.

On note par ailleurs que les évolutions des flux émis au cours de l'année d'exposition sont variables : ainsi, les émissions de zinc et de cuivre ne montrent pas de tendance à la baisse ; tandis que les émissions de plomb, très fortes au début de l'exposition, tendent à se stabiliser après 6 mois d'exposition.

A partir de ces résultats des corrélations, 3 modèles d'évaluation des émissions métalliques ont été testés.

Le premier n'utilise comme paramètre d'estimation des flux métalliques émis que la hauteur de pluie précipitée durant la période considérée. Les résultats obtenus montrent qu'une telle modélisation donne des résultats satisfaisants à l'échelle de temps annuelle, mais n'est pas suffisante pour faire des prédictions fiables sur des échelles de temps plus courtes pour lesquelles d'autres paramètres (qui sont lissés sur des durées plus longues), doivent être pris en compte.

Le second modèle utilise la hauteur de pluie et la durée d'exposition du matériau, aboutissant à des résultats globalement plus fiables pour des périodes courtes, mais certains écarts entre la modélisation et la réalité persistent.

Enfin un troisième modèle plus complexe, basé sur une hypothèse d'accumulation des produits de corrosion pendant le temps sec et de dissolution de ces produits de corrosion durant le temps de pluie donne les meilleurs résultats, notamment pour la modélisation à une échelle de temps courte. Son grand avantage est qu'il permet de tenir compte des phénomènes particuliers inhérents à une période d'exposition donnée (niveau de pluviométrie, historique de l'exposition en terme de pluviométrie), ces particularités (lissées sur une année complète) sont très importantes pour réaliser des estimations fiables à court terme. Ce modèle nécessite cependant le calage de 4 paramètres, qui sont fonctions du matériau et du site d'exposition, ce qui rend son application pratique plus difficile.

Ce dernier modèle d'estimation des émissions métalliques développé sur la base d'une accumulation / dissolution des produits de corrosion permet de modéliser de façon satisfaisante les résultats des bancs d'essais tant à l'échelle annuelle qu'à des échelles plus courtes.

## 3. Variabilité spatiale des émissions de zinc par les matériaux en zinc

#### • Quelle transposabilité spatiale?

L'extrapolation spatiale des résultats de ruissellement obtenus sur les bancs d'essais de 0,5 m² s'est avérée indispensable pour passer de l'échelle réduite à des échelles plus réalistes. Ce travail a été réalisé pour les émissions de zinc par les matériaux en zinc. Deux paramètres ont été testés : la longueur d'écoulement (4 bancs d'essais de longueurs différentes), et l'inclinaison (3 inclinaisons testés sur des bancs d'essais de même surface projetée).





Figure 6: Dispositif "Flûte de pan" testant les différentes longueurs (à gauche) et Pyramides permettant d'appréhender l'effet de l'inclinaison (à droite)

L'analyse de l'importance de la longueur a mis en évidence que ce paramètre n'influe pas sur les émissions.

L'inclinaison du toit peut être importante lorsque cette inclinaison excède les 50°, puisque les émissions de métaux sont alors augmentées d'environ 20%. En deçà de 50°, nous considérons que l'inclinaison peut être négligée.

Ainsi, pour des inclinaisons inférieures à 50°, les masses émises à l'échelle de temps annuelle peuvent être modélisées à partir de la seule surface projetée comme paramètre géométrique du matériau exposé, de la hauteur de pluie sur la période considérée et d'une constante K, fonction du matériau, défini pour chaque couple espèce / matériau, à partir de la première série d'expérimentation.

$$M = K \times H \times S_{proj} \times \left(\frac{1}{\cos(\theta)}\right)^{0.4055}$$
 Equation 1

### Validation à l'échelle du toit puis de la parcelle

Mises en évidence sur des maquettes présentant des surfaces projetées de 0,5 à 1,6 m², les règles de transposition des émissions métalliques à des échelles spatiales plus importantes ont ensuite été validées : d'abord à l'échelle de pans de toits réels, dont les eaux de ruissellement ont été échantillonnées en bas de descente de toit ; puis à l'échelle d'une parcelle bâtie, dont les eaux de ruissellement ont été collectées à leur entrée dans le réseau de collecte des eaux pluviales.

Un toit en anthra-zinc et un toit en tuile présentant des éléments d'étanchéité et d'évacuation des eaux de pluie en zinc ont donc été étudiés, et leurs émissions ont été mesurées et modélisées, mettant en évidence que les émissions de zinc calculées à partir de notre modèle d'émission sont en bonne adéquation avec les flux mesurés, avec des différences qui n'excèdent pas les 10%.

Les émissions de nickel par le toit en anthra-zinc ont également été modélisées : la différence avec les émissions mesurées est plus importante que pour le zinc, le modèle tendant à surestimer la masse de nickel émise. Cela est probablement en lien avec la différence d'âge entre le matériau mis en place sur le toit (environ 5 ans) et celui ayant servi à la modélisation (1 an) et avec le fait que le nickel – utilisé dans la couche de traitement de surface de l'anthra-zinc – tend à s'épuiser dans le temps, au fil des lessivages successifs de la surface.

Sur la parcelle bâtie étudiée, présentant un toit en zinc d'une surface projetée de 555 m², les estimations des émissions de zinc ont également donné des résultats satisfaisants, tant pour l'extrapolation spatiale – telle que définie au préalable et testée sur les toits réels – qui permet d'estimer les émissions de zinc avec une erreur de seulement 5%, que pour l'extrapolation temporelle utilisant les modèles développés précédemment – à l'échelle de la période d'échantillonnage complète (quelques semaines), ou à l'échelle plus courte (quelques heures) de l'évènement pluvieux.

Dans tous les cas, l'utilisation de la surface projetée pour la modélisation des émissions donne donc des résultats satisfaisants, ce qui est compatible avec la décision prise au début de cette étude d'utiliser des images aériennes pour la détermination des surfaces métalliques des toits à l'échelle d'un bassin versant; les orthophotographies employées ne permettent d'avoir accès qu'à des surfaces projetées.

Attention, ce travail d'analyse des effets de longueur et d'inclinaison des panneaux sur les émissions n'a été effectué que sur les matériaux en zinc. Pour les autres familles de matériaux, il serait intéressant de réaliser d'autres expérimentations pour étendre les résultats obtenus sur le zinc naturel.

### 4. Passage à l'échelle du bassin versant

Restait alors à développer une méthode d'évaluation des surfaces métalliques des toitures d'un bassin versant. Cette évaluation devait prendre en compte à la fois les éléments de rampants et les éléments singuliers liés à l'étanchéité.

#### • Estimation des surfaces de rampants

Les rampants ont été identifiés et quantifiés grâce à l'utilisation d'un outil de classification d'image (AVET) développé au laboratoire MATIS de l'IGN. La procédure appliquée est la suivante : les différents matériaux sont reconnus grâce à leur signature radiométrique (c'est-à-dire leur couleur) ; l'image est tout d'abord segmentée en zones de radiométrie homogène, un masque de focalisation est appliqué sur le bâti et des zones d'apprentissages saisies par un opérateur permettent de calculer un modèle de classification, qui est ensuite appliqué à l'ensemble de l'image à traiter. Ce travail peut être fait à partir des canaux originaux de l'image, ou bien à partir du calcul de canaux dérivés, permettant généralement de mieux discriminer les classes entre elles.

L'outil a été appliqué sur 2 zones différentes : le Marais (Paris, 3<sup>ème</sup> arrondissement) qui avait déjà fait l'objet d'une classification utilisant un autre outil, et la ville de Noisy-le Grand (Seine-Saint-Denis) qui fait l'objet d'autres études menées au laboratoire et qui présente de nombreux types d'occupation du sol différents, donnant lieu à différents types de bâtis.

Dans les 2 cas, les résultats obtenus sont satisfaisants, permettant d'estimer les surfaces des différents types de matériaux de toitures (tuiles, ardoises, zinc, terrasses...), avec une précision de l'ordre de 75 à 80%; les erreurs observées sont notamment à relier avec des confusions inter-classes commises par AVET lors de la classification: en effet, certains matériaux présentent des radiométries voisines, ce phénomène est accentué par l'exposition des matériaux – en zone d'ombre ou au contraire au soleil –. La Figure 7 illustre le type d'image obtenue avec AVET sur une zone de Noisy-le-Grand.





Figure 7. Ortho image de l'Îlot 2 (InterAtlas 2005), et image de labels obtenue avec AVET (Classification Chi2 / Canaux rg / log\_rg)

### • Estimation des linéaires d'éléments singuliers

Pour ce qui est des éléments singuliers, les Documents Techniques Unifiés ont été employés. Il s'agit de documents faisant office de normes à l'usage des couvreurs, qui spécifient pour chaque type de toits et chaque type d'élément singulier, les règles de mise en œuvre spécifiques des matériaux. Ils contiennent notamment les informations concernant les surfaces métalliques utilisées au niveau des étanchéités et autres éléments singuliers des toitures.

Ces documents donnent donc accès à des fourchettes de surfaces métalliques mises en œuvre, par mètre linéaire d'éléments singuliers (chacun ayant ses particularités).

Ces éléments singuliers doivent impérativement être pris en considération, du fait des surfaces métalliques importantes qu'ils peuvent impliquer: pour 2 bâtiments en tuiles pour lesquels les surfaces d'éléments singuliers ont été évaluées à partir des DTU et des mesures des linéaires présents faites avec MapInfo, la surface métallique induite par ces éléments était de 5 à 9% de la surface projetée du bâtiment.

La principale limite à la mise en place d'une méthode automatique d'évaluation des surfaces métalliques induites par les éléments singuliers réside dans la difficulté à évaluer les linéaires de ces éléments, qui sont impossibles à détecter à partir de l'orthophoto exploitée par AVET pour les rampants. La question du champ d'application réel des normes DTU serait également à considérer.

### • Vers une amélioration de ces estimations

L'estimation des surfaces peut encore être améliorée (1) en réduisant les erreurs commises par AVET à cause des confusions entre classes : on peut notamment multiplier les zones d'apprentissages prenant en compte au maximum les différentes radiométries rencontrées au sein d'une même classe, (2) en développant des techniques permettant l'estimation

automatique ou semi-automatique des linéaires d'éléments singuliers, peut être notamment à partir des exploitations de données topographiques en 3 dimensions, en développement constant actuellement ; qui permettraient de mieux identifier et visualiser ces éléments, rendus quasiment indétectables par la projection des photographies aériennes et (3) en mettant en place un travail statistique pour l'évaluation des linéaires de ces éléments : réalisation d'échantillonnages sur différents types de toits, dans l'idée de déterminer une information métrée des quantités d'éléments singuliers présents par m² de surface projetée de toit (en fonction du matériau du rampant).

## CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Ce travail a permis d'atteindre les objectifs principaux suivants :

- 1. L'évaluation des émissions annuelles de métaux par différents matériaux métalliques de couverture utilisés dans la région Île de France aboutissant à une base de données substantielle de taux de ruissellement pour différents matériaux et espèces métalliques –, et la hiérarchisation de ces matériaux en fonction de leurs émissions.
- 2. L'établissement d'un cadre méthodologique pour la modélisation des flux métalliques émis à l'échelle annuelle par les toitures d'un bassin versant. Ce cadre méthodologique comporte deux modules : la modélisation des émissions métalliques annuelles en fonction des conditions d'exposition (pluviométrie, géométrie du toit, matériau) et la quantification des surfaces métalliques à l'échelle d'un bassin versant (rampants et éléments singuliers).

Pour aller plus loin sur l'affinage des taux de ruissellement à utiliser dans le modèle, il serait intéressant d'analyser plus précisément l'importance de l'inclinaison des toits sur les émissions métalliques, à partir de bancs d'essais complémentaires avec 4 ou 5 inclinaisons différentes.

D'autre part, les taux de ruissellement présentés et les modèles d'extrapolations dans le temps ayant été acquis dans le contexte climatique et météorologique de l'Île de France, il serait important d'étudier la transposabilité des résultats à d'autres sites géographiques, par exemple en essayant d'appliquer les modèles à d'autres jeux de données de taux de ruissellement acquis par d'autres équipes de recherche dans d'autres contextes (Suède, Suisse).

Il parait maintenant nécessaire de valider ce modèle à l'échelle d'un bassin versant. La principale difficulté vient du fait qu'à cette échelle, il faut tenir compte des apports par la voirie et par l'atmosphère. Pour aller encore plus loin, il parait donc intéressant de chercher à développer un outil d'évaluation des émissions globales (pour toutes les sources et non plus seulement les toitures), à l'échelle d'un bassin versant. Un tel outil d'évaluation nécessitera notamment un travail exploratoire sur un modèle global couplant la voirie et les retombées atmosphériques à mettre en œuvre en plus du modèle concernant les toitures. Il permettra de quantifier les émissions métalliques des eaux pluviales et d'identifier leur origine principale dans la ville (apports atmosphériques, automobiles, matériaux ?).

Toutefois, une validation du modèle d'évaluation des flux métalliques par les toitures pourra être réalisée dans un premier temps à l'échelle du petit bassin versant de l'Îlot2 à Noisy-le-Grand, pour lequel on dispose de toutes les données nécessaires.

# REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

AirParif. (2008b). "Bilan de la qualité de l'air en Ile-de-France en 2007." from http://www.airparif.asso.fr/airparif/pdf/bilan\_2007.pdf.

He, W., Odnevall Wallinder, I. and Leygraf, C. (2001a). "A comparison between corrosion rates and runoff rates from new and aged copper and zinc as roofing material." Water, Air and Soil Pollution: Focus 1: 67 - 82.

Leuenberger-Minger, A. U., Faller, M. and Richner, P. (2002). "Runoff of copper and zinc caused by atmospheric corrosion." <u>Materials and Corrosion</u> **53**: 157 - 164.

Odnevall Wallinder, I., Leygraf, C., Karlen, C., Heijerick, D. and Janssen, C. R. (2001a). "Atmospheric corrosion of zinc-based materials: runoff rates, chemical speciation and ecotoxicity effects." <u>Corrosion Science</u> **43**: 809 - 816.

Odnevall Wallinder, I., Verbiest, P., He, W. and Leygraf, C. (2000). "Effects of exposure direction and inclination on the runoff rates of zinc and copper roofs." <u>Corrosion Science</u> **42**: 1471 - 1487.

Parlement Européen (2000). Directive Cadre 2000/60/CE sur l'Eau, Journal Officiel n°L327 du 22/12/2000: 0001-0073. Sandberg, J., Odnevall Wallinder, I., Leygraf, C. and Le Bozec, N. (2006). "Corrosion-induced copper runoff from naturally and pre-patinated copper in a marine environment." <u>Corrosion Science</u> **48**: 4316-4338.

Schultze-Rettmer, R. (1995). Lead roofing and rainwater. Düsseldorf, A scientific study commissioned by Bleiberatung. SEQ-Eau. Système d'Evaluation de la Qualité des cours d'eau. Version 2 (2003). Paris, Agences de l'Eau. Ministère de l'Environnement et du Développement Durable: 106 pp.

# CONTACTS

CEREVE: Marie-Christine Gromaire <a href="mailto:gromaire@cereve.enpc.fr">gromaire@cereve.enpc.fr</a>, Ghassan Chebbo <a href="mailto:chebbo@cereve.enpc.fr">chebbo@cereve.enpc.fr</a>, ,

Pauline Robert-Sainte robert@cereve.enpc.fr

CSTB: Bernard De Gouvello <u>bernard.degouvello@cstb.fr</u> ou <u>bernard.degouvello@cereve.enpc.fr</u>