



ACTION N° 2.1 : CARACTERISATION DES ÉMISSIONS EN CONTAMINANTS METALLIQUES DES TOITURES EN CONDITIONS CONTROLEES

CONTEXTE ET OBJECTIFS

Les toitures constituent une source de contaminants en éléments métalliques des eaux de ruissellement dont l'importance relative – au regard des autres surfaces urbaines – a été mise en évidence dès la fin des années 1990 (thèse de Marie-Christine Gromaire, 1998). Ce constat a conduit à mener au sein du programme OPUR le projet TOITEAU - occasion d'une collaboration entre CSTB et LEESU - visant à quantifier les émissions de métaux dans les eaux de ruissellement de toiture à l'aide de bancs d'essai (thèse de Robert-Sainte, 2009).

Le Grand Equipement AQUASIM du CSTB Nantes permet la réalisation d'expérimentations à l'échelle 1 en conditions contrôlées. La mise en place d'études systématiques dans la poursuite des travaux du projet TOITEAU peut ainsi être menée.

L'objectif de l'action 2.1 est, dans la continuité de cette collaboration, de chercher à quantifier de manière systématique les émissions métalliques des principaux matériaux mis en œuvre sur les toitures au travers de protocole d'essais menés en conditions réelles ou contrôlées au sein du grand équipement AQUASIM et de proposer, pour chacun des contaminants considérés, des modèles d'émission à l'échelle d'une toiture réelle.

METHODOLOGIE

Les travaux menés entre 2011 et 2015 dans cette action ont porté sur les émissions par deux types de matériaux métalliques utilisés en toiture :

- Les éléments en plomb utilisés en étanchéité à différents emplacements du toit
- Les éléments en zinc, qui ont été étudiés dans leur application descente de gouttière et élément de couverture.

Deux types de travaux ont été développés à travers une série de stages :

- (1) caractérisation d'émissions via des dispositifs expérimentaux développés au sein d'AQUASIM
- (2) compréhension et modélisation des processus d'émission (du zinc et du plomb)

1. Caractérisation d'émissions via des dispositifs expérimentaux développés au sein d'AQUASIM :

- Emission de plomb par les éléments d'étanchéité en plomb

Un dispositif expérimental permettant de tester en extérieur sur des toitures miniatures différentes configurations d'éléments de toiture en plomb (rampant et noue) a été conçu et mis en œuvre en 2011 dans le cadre d'AQUASIM (PFE ENPC, stage CSTB/LEESU réalisé par Fadi Bassir). Ce dispositif a été amélioré en 2012 (stage de master 2, CSTB/LEESU réalisé par Yujie Qiao).

Des pièces en plomb neuf et ancien ont été exposées dans différentes positions (figure 1) sur des bancs en polycarbonate de surface totale 2.85 m² :

- horizontale (en haut, au milieu et en bas des bancs)
- verticale (panneau plat et noue).

Ces positions représentent le mode d'utilisation de plomb comme élément d'étanchéité des toitures. Les bancs d'essais où sont installées les pièces horizontales sont orientés vers le sud-ouest, alors que ceux des pièces verticales sont orientés vers le nord-est. Notons que le vent dominant est direction du sud-est. L'inclinaison des bancs est 45° par rapport à l'horizontal. Les surfaces des bancs sont détaillées dans la figure 19.

15 échantillons correspondant à des périodes d'exposition entre quelques heures et quelques jours ont été prélevés durant le stage de Y. Qiao. Le fonctionnement du dispositif a été maintenu au-delà de la durée du stage, avec une fréquence d'échantillonnage de 1 à 4 fois par mois et 14 échantillons complémentaires ont ainsi été collectés de septembre 2012 à avril 2013. Ces échantillons ont été

analysés en termes de concentration en plomb et indicateurs globaux (pH, conductivité, turbidité, MES, COD).

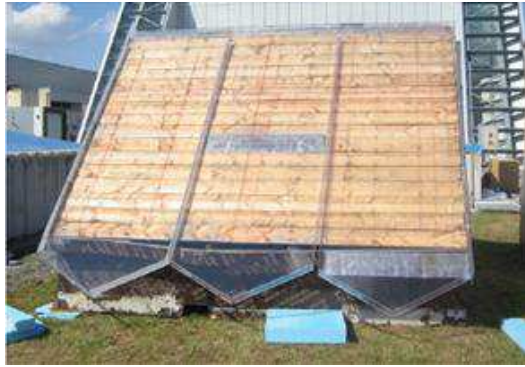


Figure 1 – bancs d'essais de matériaux d'étanchéité en plomb mis en œuvre au CSTB

1. Blanc,
2. Pb neuf au milieu,
3. Pb neuf en bas,
4. Pb ancien en haut,
5. Pb ancien au milieu,
6. Pb ancien en bas,
7. Pb en panneau plat,
8. Pb en noue

- Emission de zinc par les descentes de gouttière en zinc

En 2014, un banc *ad hoc* pour l'évaluation de données des émissions de zinc dans les eaux de ruissellement issues de descentes en zinc a été élaboré. Ce banc a été conçu de sorte à permettre de faire varier les paramètres suivants : débit reçu par la descente, longueur de la descente, quantité d'eau ruisselée, période de temps sec inter-événementielle. Les résultats montrent une apparente très faible contribution des descentes en zinc à la contamination des eaux de ruissellement. Ce résultat nécessite toutefois d'être confirmé par quelques mesures en sites réels (stage de master 2 d'Aniss Zazoua, réalisé en 2014).

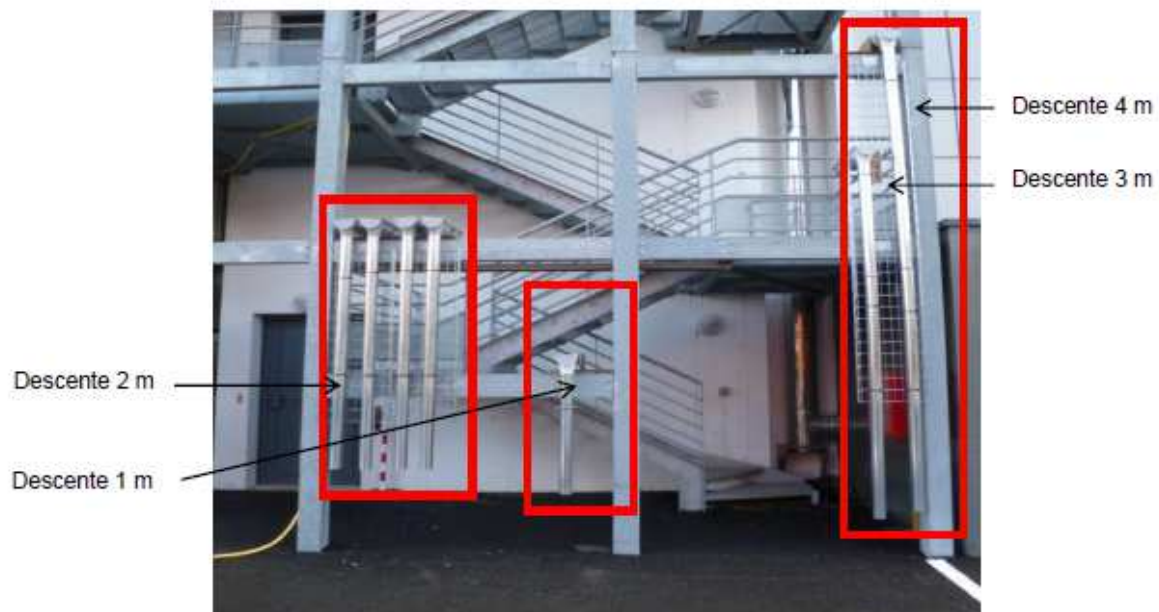


Figure 2 : dispositif expérimental pour l'étude des émissions de zinc par les descentes de gouttière en zinc (CSTB, Aquasim)

- Dynamique d'émission de zinc par les matériaux de couverture en zinc naturel

En 2014-2015 (stage de master 2 de Elissar Oreibi et travaux de thèse de Jérémie Sage), des travaux ont été menés afin de caractériser la dynamique temporelle d'émission de zinc dans des eaux de ruissellement issue de rampants en zinc à l'intérieur d'un même événement pluvial. Il s'est agi d'une part d'analyser l'influence des paramètres intensité de pluie, durée de pluie et durée de temps sec sur la dynamique d'émission du zinc de rampant. Ce premier travail a été mené en conditions contrôlées au laboratoire, sur des échantillons de zinc soumis à des pluies simulées d'intensité constante. D'autre part, un dispositif de collecte d'échantillons fractionnés a été mis en oeuvre sur l'un des bancs d'essai *in-situ* mis en place en 2006 au CSTB de Champs dans le cadre de la thèse de Pauline Robert. Ce dispositif a permis d'évaluer la dynamique d'émission en conditions de pluie réelle.



Figure 1 – système d'échantillonnage fractionné des eaux de ruissellement mis en place au niveau d'un banc d'essai en zinc

2. Compréhension et modélisation des processus d'émission (du zinc et du plomb)

- Les données acquises sur le banc d'éléments de toiture en plomb (rampant et noue) ont permis d'initier un travail de modélisation des émissions de plomb dans les eaux de ruissellement d'éléments de toiture en plomb fournissant des résultats satisfaisant à l'échelle annuelle (stage de fin d'étude d'école d'ingénieur de Farah Ahmad réalisé en 2014).
- Les données sur la dynamique intra et inter événementielle d'émission de zinc par les matériaux de couverture en zinc naturelle ont été exploitées dans le cadre de la thèse de Jérémie Sage (action 5.1) afin de développer et valider un modèle dynamique d'émission de zinc. Ce modèle a été utilisé dans le cadre de l'action 5.1 pour simuler des chroniques couplées de débit et de concentration de longue durée en entrée d'une technique alternative de gestion du ruissellement.

RESULTATS

1. Emissions de plomb par les éléments d'étanchéités des toitures

Les graphes de la figure 2 illustrent l'évolution de la concentration en plomb (en sortie de banc) et du flux de plomb émis durant les périodes d'échantillonnage sur les bancs installés à Nantes.

Des fluctuations importantes sont observées durant les différents périodes vue que l'échantillonnage se fait durant des petites périodes. Les différents bancs suivent la même dynamique en fonction de temps, les concentrations et les flux émis varient cependant en fonction de la position de la bande de plomb sur banc.

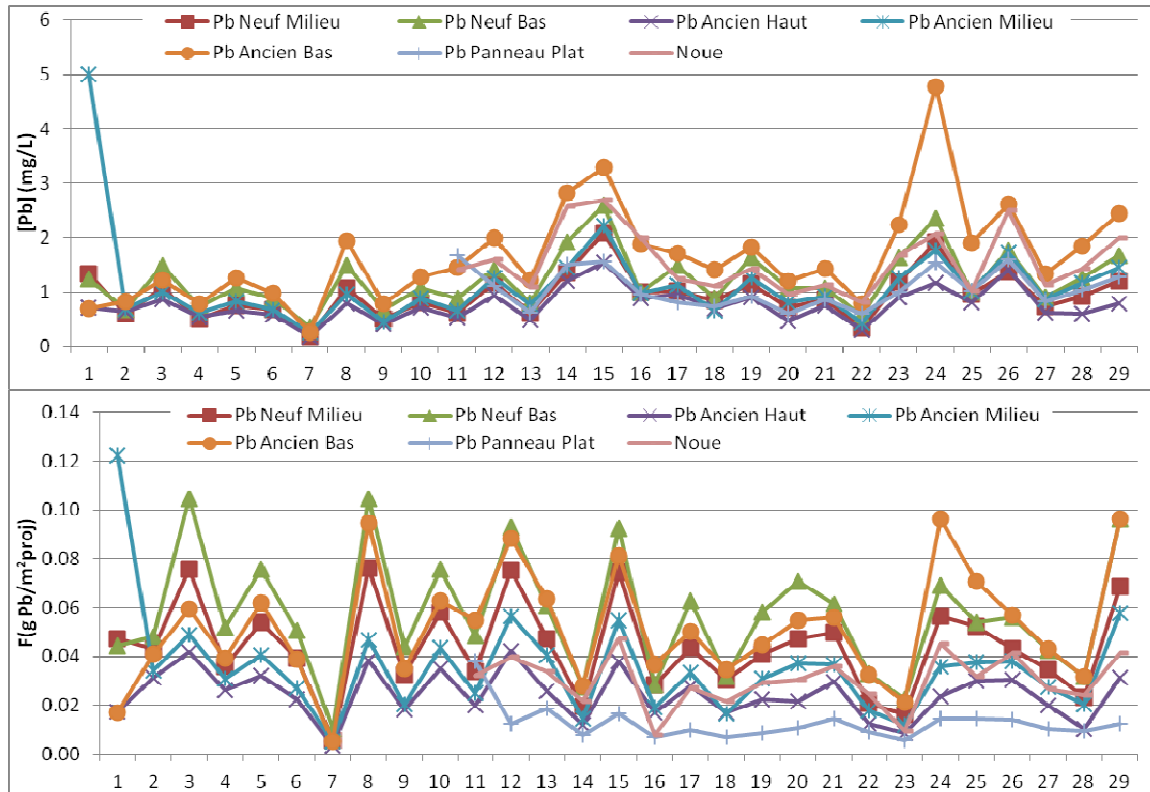


Figure 3- L'évolution temporelle de la concentration de plomb (mg/L) et de flux de plomb émis (g Pb/m² projetée)

Le graphe de la figure 24 illustre la variation de la concentration corrigée de plomb sur les différents bancs en fonction de la hauteur de pluie ruisselée. La concentration corrigée de plomb correspond à la concentration qui serait observée au sortir de la bande de plomb, elle équivaut au flux de plomb émis F divisé par la hauteur d'eau ayant ruisselé sur la bande de plomb (qui diffère suivant la position de la bande de plomb sur les différents bancs d'essais). On remarque dans ce graphe la tendance exponentielle décroissante qui tend vers une limite minimale.

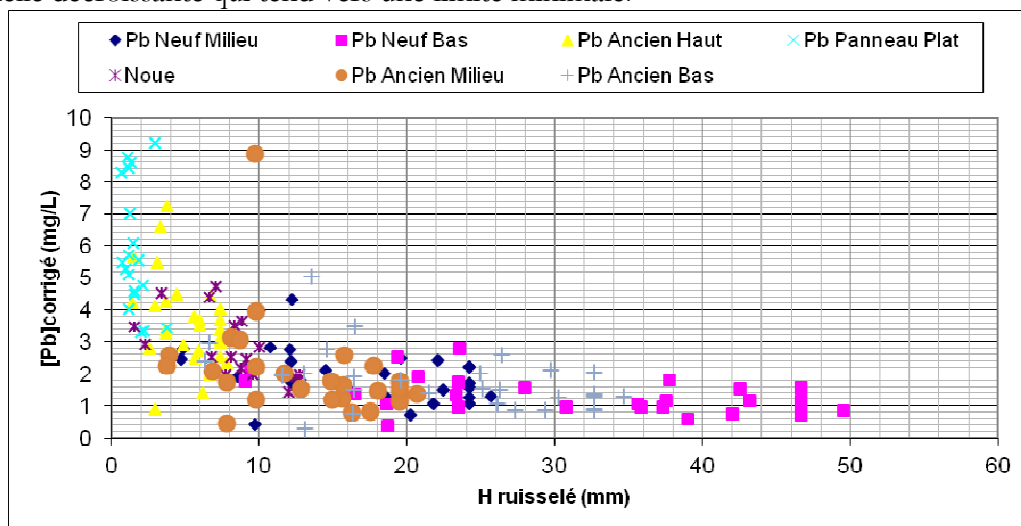


Figure 4- La Concentration du plomb corrigée (mg/L) en fonction de la hauteur de pluie ruisselée

L'analyse de la relation entre les flux de plomb émis dans les eaux de ruissellement et les différents paramètres d'exposition fait apparaître le rapport entre la hauteur d'eau ayant ruisselé sur la surface de plomb et la durée d'exposition apparaît comme un facteur explicatif important. Un bon coefficient de corrélation est trouvé entre ce rapport et les flux de plomb émis par les différents bancs d'essais des études de la littérature et par ceux mis en place au CSTB dans le cadre d'OPUR. En revanche, il n'a pas été trouvé de corrélation significative entre les flux de plomb émis et l'intensité maximale de la pluie, ni la durée de temps sec qui précède la période d'échantillonnage, ni la durée des périodes humides (TOW), ni l'humidité de l'atmosphère.

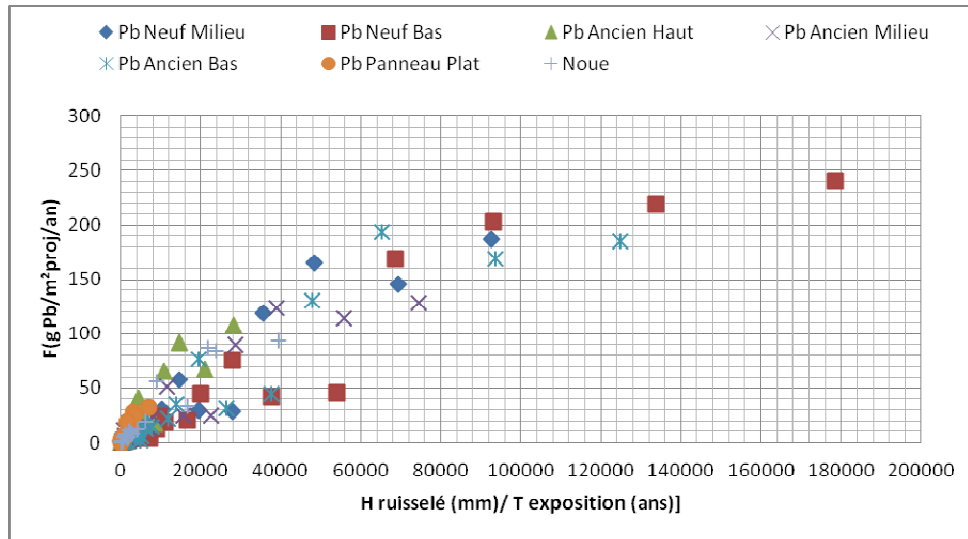


Figure 5- Graphe montrant la relation entre le flux de plomb (g Pb/m²proj/an) émis par période d'échantillonnage et la hauteur de pluie ruisselée (mm) sur la durée d'exposition (années)

Plusieurs modèles, continu ou discontinu, ont été testés sur les différentes études et sur les résultats des bancs d'essais CSTB. Le modèle de puissance, $F=K \times (H_{\text{ruisselé}}/T)^\alpha$, reliant le flux émis à la hauteur d'eau ruisselée sur la surface en plomb (F = flux de plomb émis par m² de surface projetée de plomb et par an ; $H_{\text{ruisselé}}$ = hauteur de pluie précipitée sur la surface de plomb + hauteur apportée par les surfaces en amont pendant la durée d'exposition T) est le modèle le plus représentatif à l'échelle des flux moyens sur la durée totale d'exposition des différentes études. Ce modèle permet d'expliquer les différences d'émission de plomb en fonction des conditions d'exposition des éléments de plomb toiture.

Modèle 1	$F=K_1 \cdot (H_{\text{ruisselé}}/T) + K_2$	$K_1 = 1.4 \times 10^{-3}$	$K_2 = 2.17$	$R^2 = 0.94$
Modèle 2	$F= M_{\text{max}} [1 - \exp(-K_3 \cdot H_{\text{ruisselé}}/T)]$	$M_{\text{max}} = 8.17$	$K_3 = 6.02 \times 10^{-4}$	$R^2 = 0.97$
Modèle 3	$F=K \cdot (H_{\text{ruisselé}}/T)^\alpha$	$K = 0.1125$	$\alpha = 0.51$	$R^2 = 0.99$

Tableau 1- Modèles testés et valeurs des paramètres (F en gPb/m²/an, $H_{\text{ruisselé}}$ en mm, T en année)

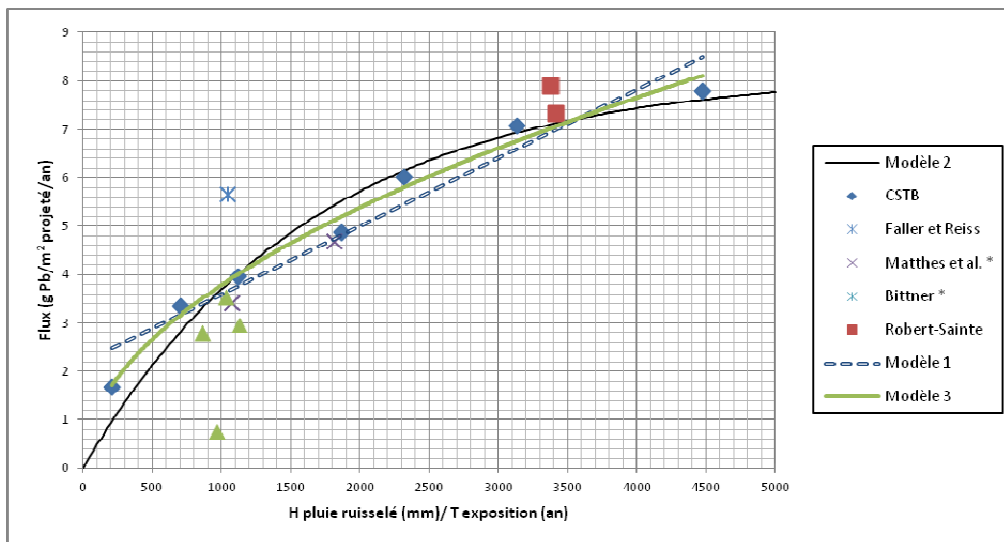


Figure 6- Comparaison entre les modèles 1, 2 et 3 appliqués sur les valeurs moyennes de CSTB et les différentes études

Les différents modèles testés, s'ils permettent de reproduire l'allure générale de l'évolution des flux émis en fonction de la hauteur de pluie ruisselée, n'ont en revanche pas permis d'expliquer la variabilité du flux d'une pluie à l'autre. Le plomb semble présenter un comportement assez différent des autres métaux. Sa dynamique d'émission à l'échelle événementielle ne suit pas les lois classiques d'accumulation et de lessivage. Les flux émis sur une échelle de temps longue par élément de toiture en plomb peuvent cependant être assez bien estimés en connaissant la surface d'apport drainant les eaux de pluie vers la surface de plomb et la hauteur pluviométrique.

2. Dynamique temporelle d'émissions de zinc par les matériaux de couverture en zinc

Les expérimentations réalisées tant en laboratoire sous pluie simulée qu'en conditions d'exposition naturelles mettent en évidence une certaine homogénéité de la dynamique temporelle d'émission du zinc, avec une diminution systématique et rapide des concentrations en début d'évènement pluvieux, lesquelles se stabilisent ensuite autour d'une valeur approximativement constante après 2 à 3 mm de pluie (Figure 7 et Figure 8). Cette dynamique d'émission ne parait pas varier avec l'intensité de la pluie, pour des intensités dans la gamme 4 à 17 mm/h. Les mesures in-situ font cependant apparaître des fluctuations de la concentration de base observée après la phase de décroissance rapide, avec une tendance à l'augmentation de cette concentration pour les très faibles intensités. Les résultats obtenus suggèrent également que la durée de temps sec séparant deux évènements pluvieux pourrait en partie conditionner les concentrations en zinc dans les premiers millimètres de ruissellement.

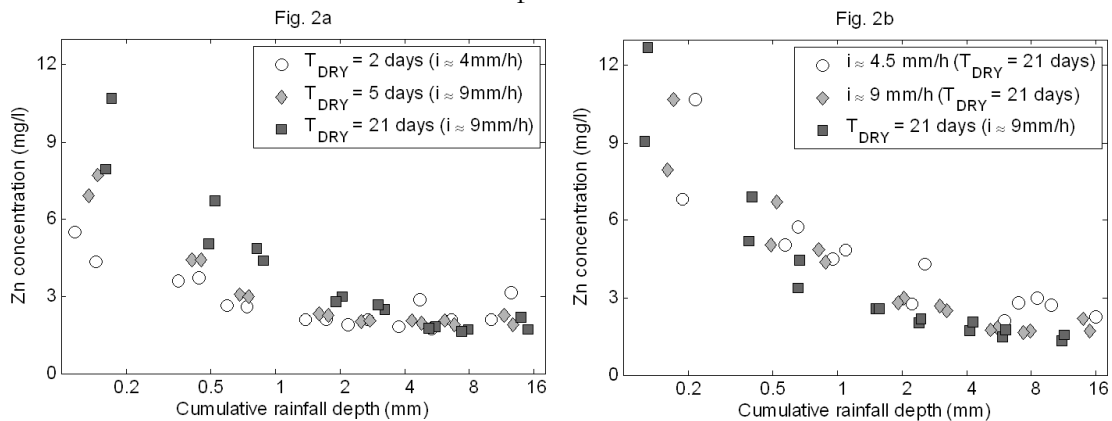


Figure 7 –Dynamique d'émission de zinc en condition de pluie simulée – 2a: effet de la durée de temps sec préalable pour une pluie d'intensité constante de 9 mm/h, 2b: effet de l'intensité de pluie pour une durée de temps sec préalable de 21 jours.

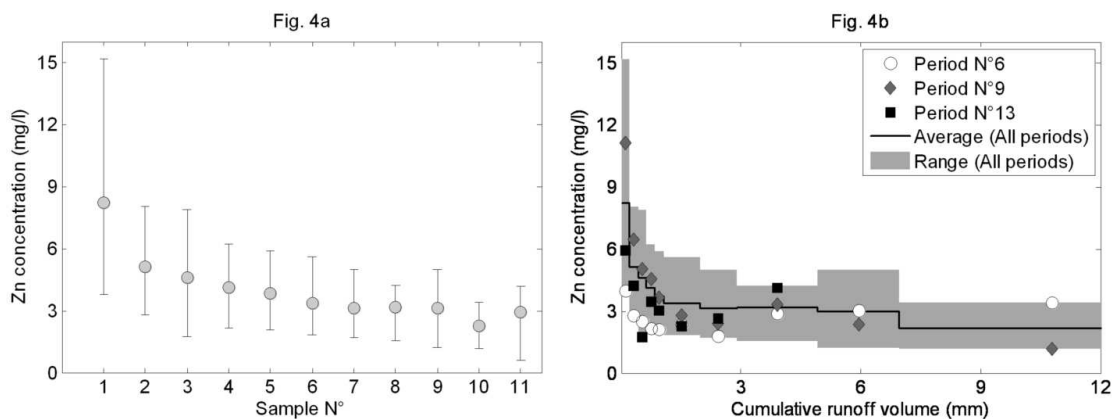


Figure 8 –Dynamique d'émission de zinc au cours des différents épisodes pluvieux étudiés en conditions extérieurs sur banc d'essai

Les modèles usuels de lessivage peuvent alors aisément être modifiés de manière à reproduire l'allure des pollutogrammes observés pour une pluie donnée. Les équations de lessivage et d'accumulation suivantes ont été appliquées pour décrire l'émission de zinc :

- Accumulation d'un stock de zinc lessivable (produits de corrosion solubles):

$$M_{ACC}(t + \Delta t) = [M_{ACC}(t) - M_t] \times \exp(-D \times \Delta t) + M_{LIM} \times [1 - \exp(-D \times \Delta t)]$$

Avec $M_{ACC}(t)$ la masse de zinc facilement lessivable disponible au temps t , M_t la masse de zinc issue de ce stock lessivée entre t et $t + \Delta t$, M_{LIM} la masse maximale du stock de zinc accumulable.

- Lessivage :

$$C_t = \frac{1}{i_t \times \Delta t} \times \left(M_{ACC}(t) \times [1 - \exp(-K_1 \times i_t^{K_2} \times \Delta t)] + K_0 \times i_t^{K_3} \times \Delta t \right)$$

Où C_t est la concentration en zinc au temps t , i_t l'intensité de la pluie durant ce pas de temps.

Ce modèle d'accumulation-lessivage reproduit assez bien la tendance générale des dynamiques d'émission de zinc et permet de simuler des chroniques d'émission réalistes. Les concentrations en zinc simulées pour une pluie donnée demeurent cependant incertaines et ce modèle n'explique donc que partiellement la variabilité temporelle des concentrations mesurées.

VALORISATION

Rapports de master

ZAZOUA A. (2014). Caractérisation des émissions en contaminants métalliques d'un matériau de toitures en conditions contrôlées : quantification des émissions de zinc par les descentes en zinc. Master 2 « Physico-Chimie pour l'Ingénierie », spécialité « Procédés pour la qualité de l'environnement », Université Paris- Est Marne-la-Vallée.

EL OREIBI E. (2014). Etude expérimentale et analyse de la dynamique des flux de zinc émis par temps de pluie des toitures métalliques. Projet de fin d'études ingénieur Faculté de Génie et Master 2 Hydrosiences, Université Libanaise.

AHMAD F. (2013). Analyse et modélisation des processus d'émission de plomb dans les eaux de ruissellement de toitures. Projet de fin d'études ingénieur Faculté de Génie et Master 2 Hydrosiences, Université Libanaise.

QIAO Y. (2012). Contribution à l'élaboration d'un modèle d'émission dans les eaux de ruissellement du plomb mis en œuvre sur les toitures. Master 2 Traitement des Eaux, Université Lille 1.

BASSIR F. (2011). Mise au point d'un banc expérimental pour caractériser les émissions de plomb dans les matériaux de toiture. Projet de fin d'études, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées.

Publications dans des revues à comité de lecture

SAGE J., EL OREIBI E., SAAD M., GROMAIRE M.-C. (accepté). Modelling the temporal variability of zinc concentrations in zinc roof runoff - Experimental study and uncertainty analysis. Environmental Science and Pollution Research.

CONTACTS

Bernard de Gouvello, bernard.degouvello@leesu.enpc.fr

Marie-Christine GROMAIRE, gromaire@leesu.enpc.fr

Gaëlle Bulteau, gaelle.bulteau@cstb.fr