

évaluation des niveaux de COV dans l'air

dans l'environnement de la raffinerie
Total à Donges

campagne de mesure 2016-2017

septembre 2017

air | pays de
la Loire
www.airpl.org



sommaire

contexte.....	1
dispositif de mesure	1
résultats pour le benzène	2
résultats pour le méthane	5
résultats pour les COV non méthaniques.....	7
analyse spécifique	9
conclusions et perspectives.....	10
bibliographie.....	11

contributions

Coordination de l'étude : Florence Guillou, Rédaction : Corentin Lemaire, Exploitation du matériel de mesure : Arnaud Calvar, Validation : François Ducroz, David Bréhon.

conditions de diffusion

Air Pays de la Loire est l'organisme agréé pour assurer la surveillance de la qualité de l'air dans la région des pays de la Loire, au titre de l'article L. 221-3 du code l'environnement, précisé par l'arrêté du 1^{er} août 2016 pris par le Ministère chargé de l'Écologie.

A ce titre et compte tenu de ses statuts, Air Pays de la Loire est garant de la transparence de l'information sur les résultats des mesures et les rapports d'études produits selon les règles suivantes :

Air Pays de la Loire, réserve un droit d'accès au public aux résultats des mesures recueillies et rapports produits dans le cadre de commandes passées par des tiers. Ces derniers en sont destinataires préalablement.

Air Pays de la Loire a la faculté de les diffuser selon les modalités de son choix : document papier, communiqué, résumé dans ses publications, mise en ligne sur son site Internet www.airpl.org, etc...

Air Pays de la Loire ne peut en aucune façon être tenu responsable des interprétations et travaux intellectuels, publications diverses ou de toute œuvre utilisant ses mesures et ses rapports d'études pour lesquels Air Pays de la Loire n'aura pas donné d'accord préalable.

contexte

Afin d'évaluer les niveaux de composés organiques volatils dans l'environnement de l'établissement, la raffinerie Total Raffinage France à Donges a sollicité Air Pays de la Loire.

Cette évaluation a un double objectif :

- répondre aux exigences réglementaires en matière de surveillance du site, telles que précisées par l'arrêté préfectoral n°2014/ICPE/306 relatif à l'exploitation de la raffinerie, notamment par la mesure des niveaux en composés organiques volatils,
- poursuivre la stratégie de surveillance du benzène mise en œuvre depuis 2005 par Air Pays de la Loire.

En ce qui concerne le benzène, les campagnes de mesure réalisées depuis 2005 ont mis en évidence un impact fort des zones de stockage et de la partie centrale de la raffinerie dans l'environnement immédiat de l'établissement (0-300 mètres). La campagne de 2016 a néanmoins conduit à écarter, en zone habitée, le risque de dépassement de l'objectif de qualité fixé à $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne annuelle.

dispositif de mesure

deux analyseurs automatiques

La campagne utilise deux analyseurs automatiques (chromatographes en phase gazeuse à détection d'ionisation de flamme - GC/FID) qui permettent de suivre les concentrations horaires de COV et ainsi d'étudier l'évolution temporelle fine de ces polluants.

Le premier analyseur suit les COV aromatiques (Benzène, Toluène, Xylènes), le second l'ensemble des COV, non distingués par espèce, à l'exception du Méthane (CH_4) dont le signal peut être isolé.

Le suivi du bon fonctionnement des analyseurs est réalisé périodiquement, lors d'opérations de vérification ou d'étalonnage. Ces opérations sont manuelles, réalisées sur site.

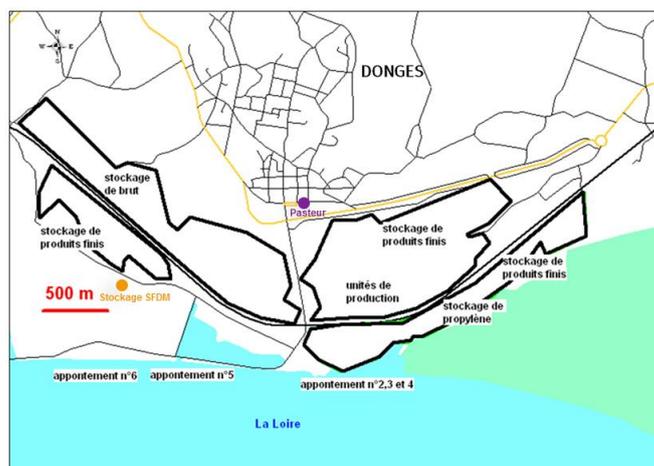


Figure 1 : implantation du site de mesure de la rue Pasteur

un site de mesure

Les analyseurs automatiques ont été installés rue Pasteur dans la station permanente d'Air Pays de la Loire. Ce site est localisé à 250 mètres de la raffinerie au sud du centre-ville de Donges en zone habitée. En fonction de la direction des vents, il est potentiellement impacté par les émissions de la raffinerie.

les périodes de mesure

Localisation	Période de mesure	Taux de validité des mesures	
		BTEX	COV
Pasteur	du 09/12/2016 au 19/01/2017	96%	81% ¹
	du 15/02/2017 au 14/03/2017	95%	91%

Tableau 1 : périodes de mesure et taux de validité des mesures

Ces périodes de mesure couvrent des conditions météorologiques contrastées. En particulier, le début de la première campagne a permis d'exposer les capteurs à un vent de sud-est, donc en provenance des installations de production de la raffinerie, alors que, lors de la deuxième campagne, un vent de sud-ouest a exposé les capteurs aux stockage des produits bruts.

Ces périodes de mesure sont plus longues que les périodes prévues dans le cahier des charges publié par Total. Il s'agit pour Air Pays de la Loire d'assurer une meilleure représentativité des mesures, pour lesquelles un nouvel équipement a été mise en œuvre.

¹ La mesure a été interrompue du 28/12 au 02/01

résultats pour le benzène

Quatre espèces de COV aromatiques ont été suivies dans le cadre de cette campagne : le benzène, le toluène, l'éthyl-benzène et les xylènes. Ce rapport ne présente que les résultats en benzène, s'inscrivant ainsi dans la stratégie de surveillance mise en place par Total et Air Pays de la Loire depuis 2005. Nous ne relevons toutefois aucun fait marquant quant aux concentrations des autres composés.

évolution temporelle des concentrations de benzène

Les graphiques suivants montrent l'évolution temporelle des maxima en concentrations horaires enregistrées sur le site de Pasteur. Une comparaison est faite avec le site de trafic du Boulevard Victor-Hugo à Nantes.



Figure 2 : évolution temporelle du maximum journalier de la concentration horaire en benzène mesurée du 9 décembre 2016 au 19 janvier 2017, puis du 15 février au 14 mars 2017 sur les sites de la rue Pasteur (Donges) et du boulevard Victor-Hugo (Nantes). Le trait bleu en pointillés représente la valeur de $10\mu\text{g}/\text{m}^3$, utilisée comme un indicateur pour les niveaux horaires

Des élévations ponctuelles des niveaux de benzène sont observées et dépassent $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ au cours de 9 journées. Le maximum est enregistré le 14 décembre avec $83\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne sur une heure.

Le reste du temps, les niveaux restent assez faibles (niveaux journaliers inférieurs à $5\mu\text{g}/\text{m}^3$) mais majoritairement supérieurs à ceux enregistrés sur le site de trafic du boulevard Victor-Hugo à Nantes.

On notera des moyennes sur les campagnes de $1,6\mu\text{g}/\text{m}^3$ et $1,1\mu\text{g}/\text{m}^3$, niveaux inférieurs à l'objectif de qualité de $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne annuelle. Les niveaux sur les mêmes périodes à Victor-Hugo sont $1,1\mu\text{g}/\text{m}^3$ et $0,7\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Date	Max horaire (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Nombre d'heures
09/12/2016	14,1	1
10/12/2016	10,9	2
12/12/2016	11,0	1
14/12/2016	83,0	3
20/12/2016	10,9	1
23/12/2016	10,8	1
01/01/2017	11,2	1
04/03/2017	38,3	2
05/03/2017	41,2	2

Tableau 2 : journées pour lesquelles le maximum horaire a dépassé $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ et durée de dépassement de cette valeur

localisation des zones d'émission

La localisation des zones d'émission se base sur l'étude des roses de concentration enregistrées sur le site de mesure de la rue Pasteur.

Ce type de graphique indique les niveaux de benzène en fonction de la direction des vents enregistrés par Météo France à Gron (Montoir de Bretagne). Sur un site donné, il permet de savoir sous quelle direction de vent les niveaux sont les plus élevés et ainsi de localiser les zones d'émissions prépondérantes au sein de la raffinerie.

Les graphiques suivants représentent les roses de concentrations pour les niveaux moyens enregistrés durant les deux phases de mesure. La manière de lire une rose de pollution est la suivante : dans une direction donnée, la longueur de la pale correspond à la moyenne ou au 98^{ème} quantile des valeurs de concentrations relevées lorsque le capteur est exposé à des vents de cette direction.

première séquence de mesure : du 9 décembre 2016 au 19 janvier 2017



Figure 3 : rose de concentration des niveaux moyens de benzène mesurés rue Pasteur à Donges du 9 décembre 2016 au 19 janvier 2017

deuxième séquence de mesure : du 15 février au 14 mars 2017



Figure 4 : rose de concentration des niveaux moyens de benzène mesurés rue Pasteur à Donges du 15 février au 14 mars 2017

Ces roses de pollution indiquent que les niveaux moyens en benzène sont particulièrement impactés par les activités de la raffinerie, notamment par les unités de production (partie centrale et est), et ce malgré une faible représentativité des vents de sud-est dans cette campagne de mesure (particulièrement dans la deuxième période, ce qui peut également expliquer un plus faible niveau moyen).

Cette observation confirme les résultats des études précédentes, dans lesquelles l'exposition du site de la rue Pasteur à un vent de sud-est allait déjà de pair avec une augmentation du niveau de benzène relevé.

Les graphiques ci-dessous reprennent les observations des 11 dernières campagnes, en différenciant les différents régimes de vents et donc les différentes zones d'influence de la raffinerie.

Ces graphiques sont des boîtes à moustaches (aussi appelés boxplot), ils représentent les principales caractéristiques statistiques d'une distribution de données, ici l'ensemble des mesures quart-horaires, telles que les premier et troisième quartiles (la boîte en tant que telle), la médiane (le trait dans la boîte) ou encore la moyenne (le point). Plus une boîte est haute, plus les valeurs enregistrées sont élevées, plus une boîte est étendue, plus les valeurs sont dispersées.

A titre d'information, les valeurs réglementaires pour le benzène ont été ajoutées sur le graphique 5. L'objectif de qualité est fixé à $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et la valeur limite à $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne sur une année civile.

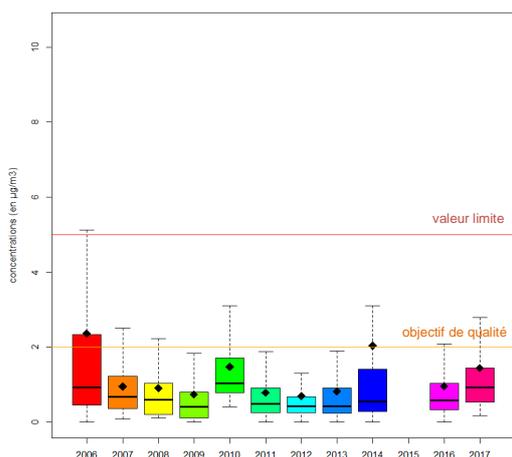


Figure 5 : niveaux horaires en benzène relevés depuis 2006 rue Pasteur, quelle que soit la direction du vent

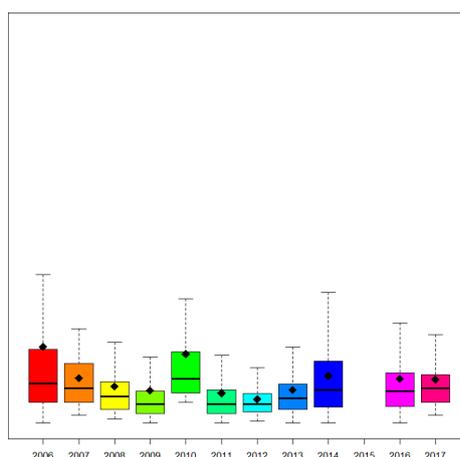


Figure 6 : niveaux horaires en benzène relevés depuis 2006 rue Pasteur, quand le site est sous des vents de sud-ouest

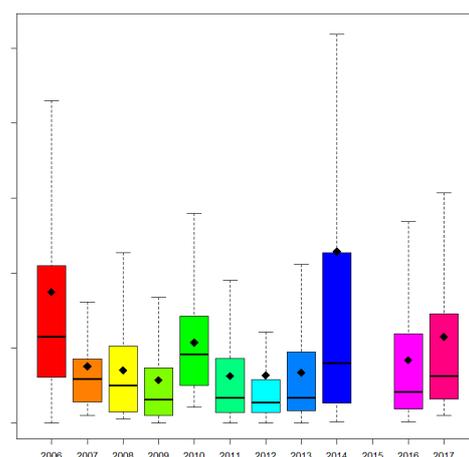


Figure 7 : niveaux horaires en benzène relevés depuis 2006 rue Pasteur, quand le site est sous des vents de sud-est

Le **centre de la raffinerie** (unités de production) et dans une moindre mesure la **zone de stockage ouest**, ont donc bien une influence sur les niveaux en benzène, en particulier quand le site de mesure est sous les vents de ces points d'émissions. On note toutefois, sur la figure 5, que la probabilité de dépasser l'objectif de qualité est faible².

Par ailleurs, les niveaux de pointe sont cohérents avec les valeurs moyennes et confirment ces résultats.

² L'objectif de qualité et la valeur limite étant des valeurs moyennes annuelles et les mesures ne représentant qu'une partie de l'année, on évalue ici la probabilité de dépassement de ces valeurs, sans avoir mesuré stricto sensu ces valeurs.

résultats pour le méthane

évolution temporelle des niveaux en méthane

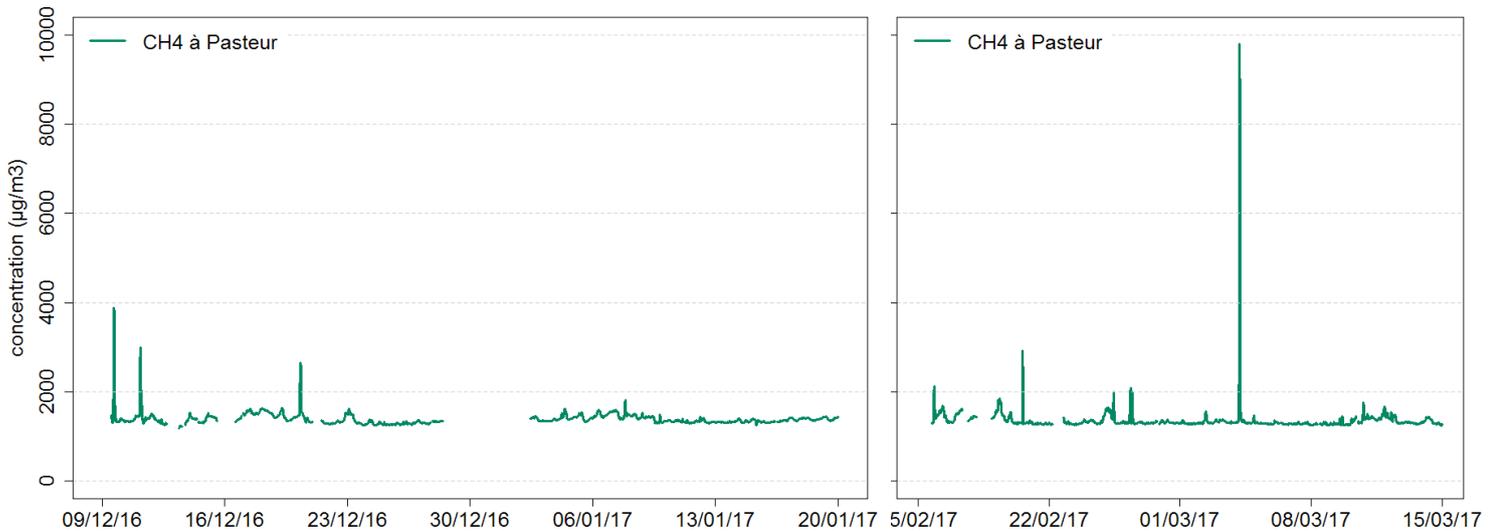


Figure 8 : évolution de la concentration moyenne horaire en méthane du 9 décembre 2016 au 15 mars 2017, rue Louis Pasteur, à Donges

Puissant gaz à effet de serre, le méthane a la particularité d'être présent en quantité non négligeable dans l'atmosphère, et ce partout dans le monde. En effet, son temps de vie étant de plusieurs années, sa concentration est en moyenne homogène quel que soit l'endroit de la planète. On observe, sur les mesures rue Pasteur, un palier autour de 1 300 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ correspondant au niveau « normal » de méthane, c'est-à-dire un niveau qui ne serait pas perturbé localement par les émissions de la raffinerie [11].

On observe également plusieurs pics, dont certains jusqu'à six fois plus élevés que le niveau de fond, vraisemblablement liés à la raffinerie.

localisation des zones d'émission

De la même manière que pour le benzène, on représente les niveaux de méthane en fonction de la direction du vent (roses de pollution) afin d'identifier les principales sources.

On représente ici les niveaux de pointe, le niveau moyen étant homogène dans toutes les directions.



Figure 9 : rose de pollution des niveaux de pointe (P98) en méthane mesurés rue Pasteur, à Donges du 9 décembre 2016 au 19 janvier 2017

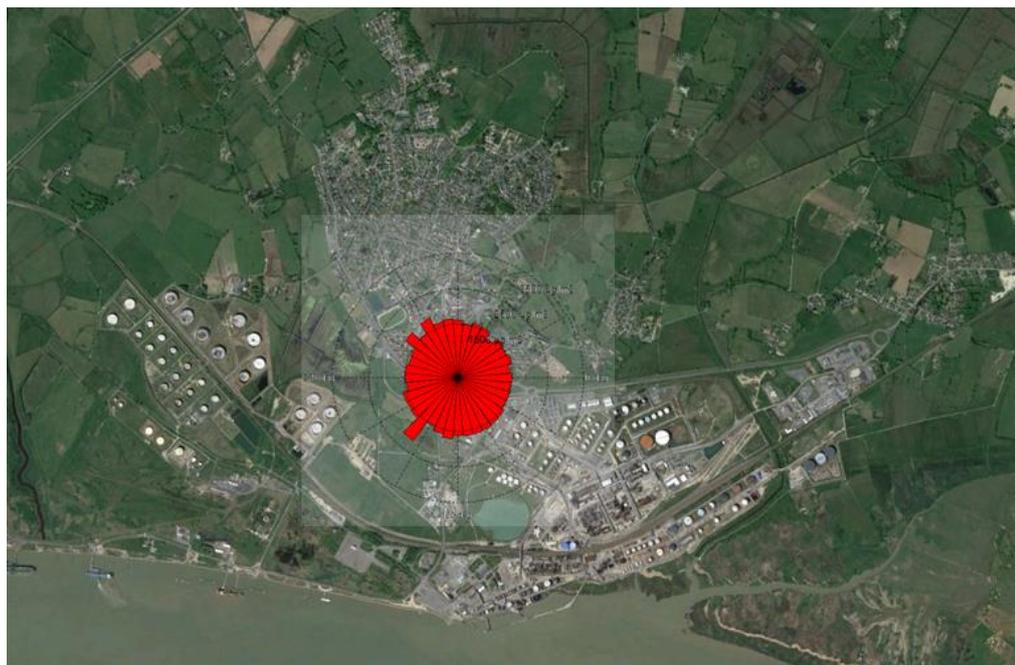


Figure 10 : rose de pollution des niveaux de pointe (P98) en méthane mesurés rue Pasteur, à Donges du 15 février au 14 mars 2017

Les niveaux en méthane relevés autour de la raffinerie sont en moyenne similaires aux niveaux atmosphériques moyens relevés à l'échelle planétaire [11].

Les niveaux de pointe semblent quant à eux être liés à la partie centrale (les appointements) et à la partie ouest de la raffinerie, à savoir les zones de stockage. Si cette influence est bien marquée lors de la première campagne, on ne l'observe que peu lors de la seconde malgré un pic notable à près de $10\,000\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne horaire, observé le 4 mars 2017.

résultats pour les COV non méthaniques

Les composés organiques sont une famille de composants chimiques dont la structure de base repose sur le carbone et l'hydrogène. De nombreuses espèces de cette famille peuvent également comprendre de l'oxygène, de l'azote ou des halogènes. Ils sont dits volatils dès lors qu'ils sont suffisamment légers pour se trouver à l'état gazeux dans des conditions communes de pression et de température. De par leur forte réactivité, ces composés peuvent être particulièrement irritants en cas de contact avec les tissus vivants et ils contribuent à la formation d'ozone troposphérique.

Les hydrocarbures sont, pour l'essentiel, des composés organiques. Beaucoup se trouvent à l'état liquide mais, en raison des importants volumes manipulés par la raffinerie Total, une surveillance des taux de COV de l'air a été demandée.

On s'intéresse ici aux COV non méthaniques, le méthane ayant été traité dans la partie précédente en raison de son taux presque fixe dans l'atmosphère.

évolution temporelle des niveaux en COVNM

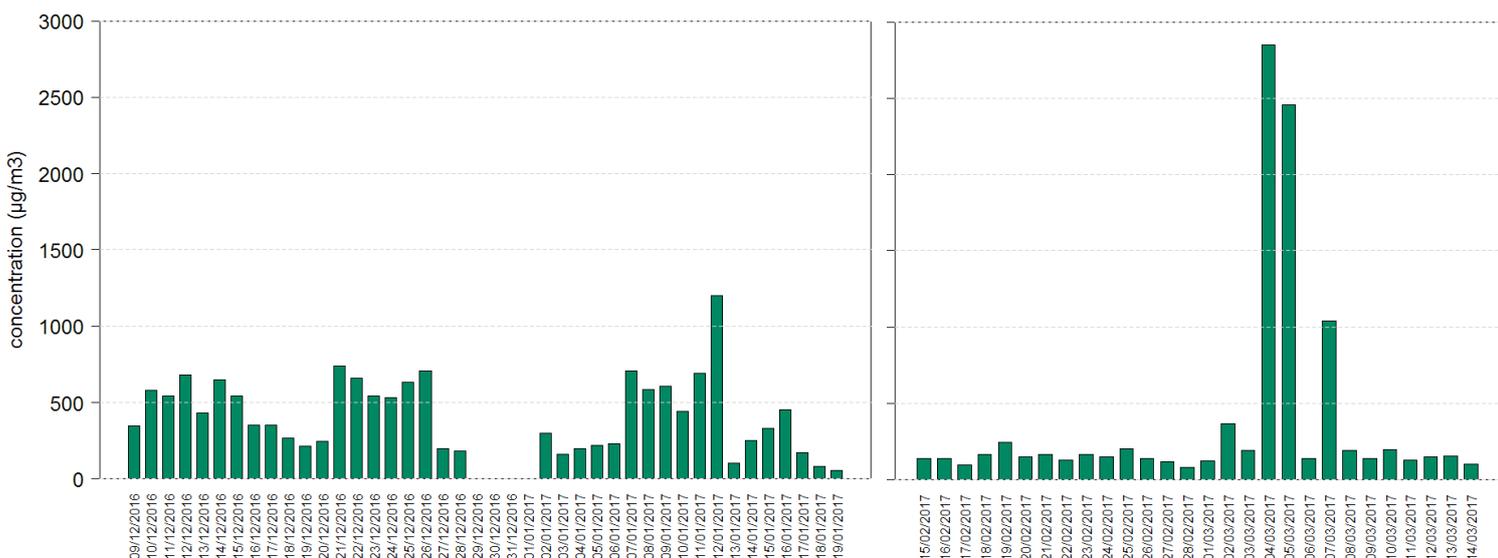


Figure 11 : évolution temporelle du maximum journalier de la concentration horaire en COVNM mesurée du 9 décembre 2016 au 19 janvier 2017, puis du 15 février au 14 mars 2017 sur le site de la rue Pasteur (Donges)

Les niveaux en COVNM dans l'air ambiant ne sont pas réglementés et il est donc difficile de mettre en perspective ces observations.

Nous notons toutefois que, à l'instar du benzène et du méthane, le niveau en COVNM reste stable mais connaît des pointes, notamment lors de la deuxième phase de mesure.

La mise en perspective la plus pertinente dont nous disposons³ est le suivi par Atmo Nouvelle-Aquitaine des niveaux en COVNM autour de dépôts pétroliers sur le port de La Rochelle [1].

L'édition 2016 de ce suivi fait état d'une moyenne de 23 µg/m³ et d'un maximum horaire de 1756 µg/m³. Les valeurs correspondantes pour les mesures rue Pasteur à Donges sont 163 µg/m³ en moyenne et 2849 µg/m³ en maximum horaire. Les niveaux à Donges sont donc sensiblement supérieurs mais une comparaison stricte n'est pas possible, le site de mesure étant plus proche de l'établissement et ce dernier étant bien plus gros que le dépôt Rochelais.

³ La plupart des autres dispositifs de suivi des COVNM, par exemple pour la raffinerie du Feyzin [2], reposent sur des méthodes de quantification d'espèces ciblées et non de mesures des COV totaux.

localisation des zones d'émission

Pour cette partie, nous ne nous intéressons qu'aux roses de pollution de la deuxième séquence de mesure. En effet, les conditions météorologiques de la première séquence de mesure ont entraîné une variabilité plus importante des mesures, rendant peu propice leur présentation sous la forme de roses de pollution.



Figure 12 : rose de pollution des niveaux moyens en COVNM mesurés rue Pasteur, à Donges du 15 février au 14 mars 2017. Le cercle extérieur de la rose est à $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$



Figure 13 : rose de pollution des niveaux de pointe (P98) en COVNM mesurés rue Pasteur, à Donges du 15 février au 14 mars 2017. Le cercle extérieur de la rose est à $900 \mu\text{g}/\text{m}^3$

On observe que les niveaux de pointe comme le niveau moyen sont fortement influencés par les installations de stockage au sud-ouest de la station de mesure alors que le niveau moyen de COVNM est plutôt homogène entre les différentes directions de vent, témoignant d'une pollution de fond.

Toutefois, une singularité est observée par vent de 220° (sud-sud-ouest) pour les COVNM comme pour le Benzène. Cette singularité est observée depuis plusieurs années et pourrait trouver une explication dans l'activité de l'entreprise SFDM située au sud des dépôts de la raffinerie.

analyse spécifique

Des pics importants ont été relevés les 4 et 5 mars pour chacun des composés présentés précédemment, sans que l'exploitation n'ait relevé d'opération particulière. Le but de cette partie est d'analyser spécifiquement ces journées afin d'essayer de trouver une explication à ces fortes hausses.

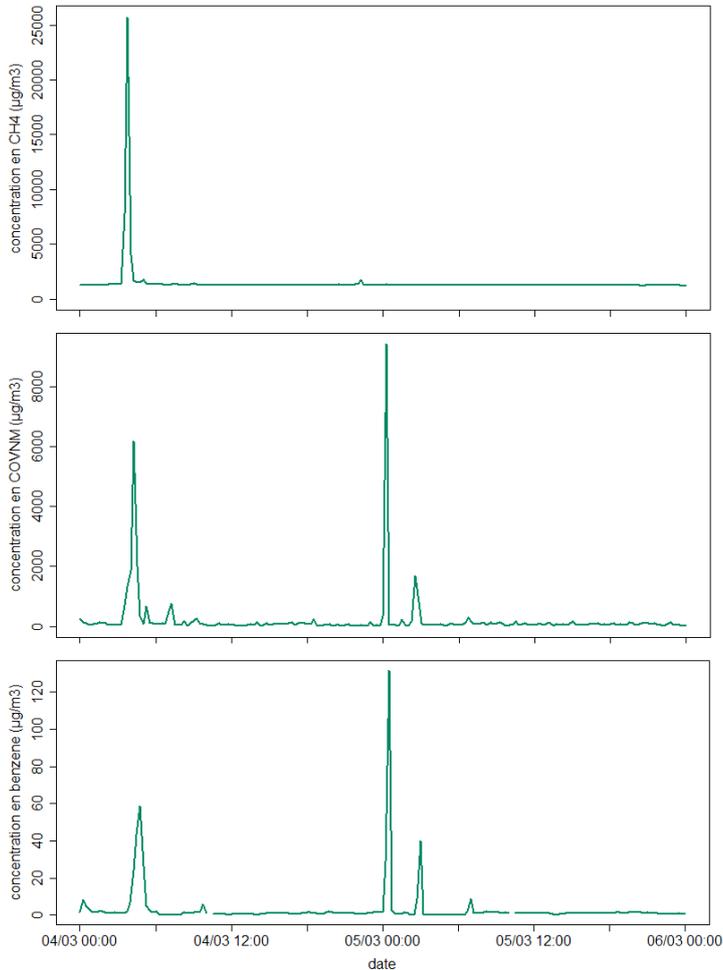


Figure 14 : évolution des niveaux mesurés quart-horaires (données brutes) en méthane, COVNM et benzène les 4 et 5 mars 2017

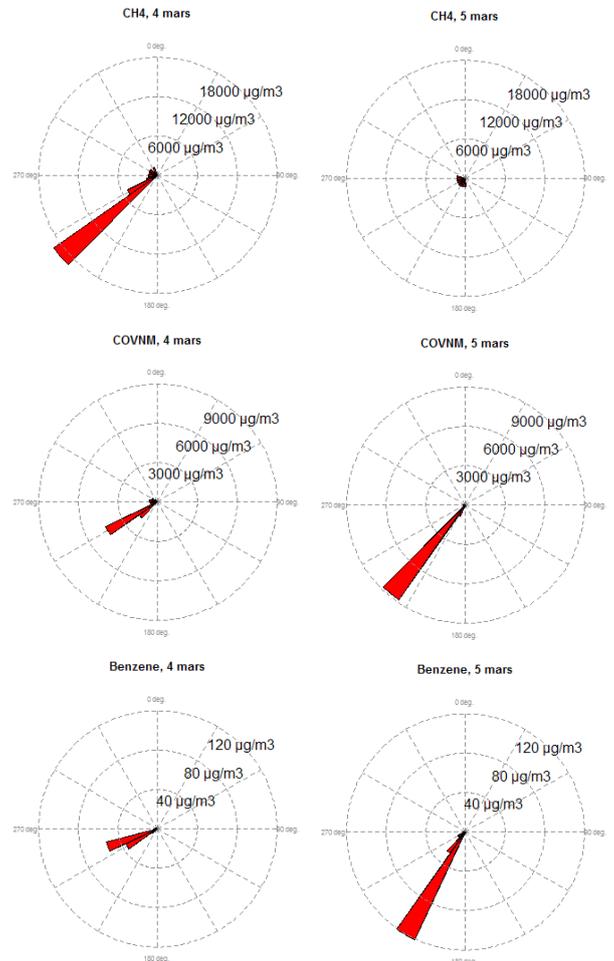


Figure 15 : roses de pollution en niveau de pointe (P98) en méthane, COVNM et benzène les 4 et 5 mars 2017

On constate que les pics des 4 et 5 mars sont très localisés dans le temps, pratiquement sur un quart d'heure à chaque fois. Il est intéressant de constater que le pic du 4 mars correspond à une forte augmentation des trois polluants mesurés alors que les pics du 5 mars ne se produisent que pour les COVNM, benzène compris.

Ce ne sont pas exactement les mêmes directions pointées par les roses de pollution. Le 4 mars, une origine à 240° du site de mesure est mise en avant, le 5 mars, c'est la direction 210° qui est pointée.

Les origines différentes, au sein d'un même site, que les roses de pollution permettent d'identifier (celles du 4 semblent indiquer la zone de stockage alors que celles du 5 sont plus proches des installations de production) ainsi que la distinction selon le polluant émis, permet d'identifier deux sources différentes. Néanmoins l'attribution de ces pics à des zones précises d'activité au sein de la raffinerie ou du site SFDM est difficile a posteriori, elle nécessite une analyse fine, sur le site et en temps réel.

conclusions et perspectives

La concentration de benzène mesurée dans l'air rue Pasteur à Donges est très variable dans le temps :

- en moyenne sur la période de mesure de décembre 2016 à mars 2017, soit 10 semaines, la concentration de benzène est de $1,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$,
- le maximum horaire a atteint $83 \mu\text{g}/\text{m}^3$ le 14 décembre sous l'influence de la zone de production située au sud-est de la station,
- au total, ce sont 9 journées qui voient la moyenne horaire en benzène dépasser $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, soit autant que pour la campagne 2016, qui avait duré moins longtemps,
- bien qu'il ne soit pas possible d'effectuer une comparaison stricte des données aux valeurs réglementaires pour le benzène fixées sur une moyenne annuelle, la probabilité de dépassement de l'objectif de qualité $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et de la valeur limite $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ rue Pasteur à Donges est faible.

En ce qui concerne le méthane (CH_4) et les composés organiques volatils non méthaniques (COVNM), pour lesquels des mesures ont été réalisées pour la première fois par Air Pays de la Loire autour de la raffinerie :

- on observe un niveau moyen en méthane peu influencé mais un niveau de pointe qui marque l'influence de la partie centrale de la raffinerie,
- des niveaux en COVNM pour lesquels il n'existe pas de référence absolue mais qui semble bien influencés par la raffinerie, tant en moyenne qu'en pointe, en particulier par les zones de stockage ouest.

Enfin, l'analyse croisée des concentrations en benzène, méthane et COVNM permet de distinguer des origines différentes, spécifiques aux polluants suivis sans pour autant permettre de cibler les sources.

bibliographie

[1] Atmo Nouvelle Aquitaine, 2017 : Impact de l'activité portuaire sur la qualité de l'air – Bilan 2016, p 33-45.

[2] Air Rhône-Alpes, 2015 : *Concentrations de COV mesurées dans l'air du Sud Lyonnais, 2013 et 2014*, 18 pages.

[3] Air Pays de la Loire, 2016 : *Évaluation des niveaux de benzène dans l'environnement de la raffinerie Total à Donges, campagnes 2015*, 28 pages.

[4] Air Pays de la Loire, 2015 : *Évaluation des niveaux de benzène dans l'environnement de la raffinerie Total à Donges, campagnes 2014*, 38 pages.

[5] Air Pays de la Loire, 2014 : *Évaluation des niveaux de benzène dans l'environnement de la raffinerie Total à Donges, campagnes 2013*, 38 pages.

[6] Air Pays de la Loire, 2013 : *Évaluation des niveaux de benzène dans l'environnement de la raffinerie Total à Donges, campagnes 2012*, 37 pages.

[7] Air Pays de la Loire, 2012 : *Évaluation des niveaux de benzène dans l'environnement de la raffinerie Total à Donges, campagnes 2011*, 35 pages.

[8] Air Pays de la Loire, 2011 : *Évaluation des niveaux de benzène dans l'environnement de la raffinerie Total à Donges, campagnes 2010*, 34 pages.

[9] Air Pays de la Loire, 2010 : *Évaluation des niveaux de benzène dans l'environnement de la raffinerie Total à Donges, campagnes 2009*, 34 pages.

[10] Air Pays de la Loire, 2009 : *Évaluation des niveaux de benzène dans l'environnement de la raffinerie Total à Donges, campagnes de mesure hiver 2008 – été 2008 – automne 2008*, 35 pages.

[11] Saunois, M., et al., 2016 : *The global methane budget 2000–2012*, Earth Syst. Sci. Data, 8, 697-751, <https://doi.org/10.5194/essd-8-697-2016>.

airpays de la Loire

5 rue Édouard-Nignon – CS 70709 – 44307 Nantes cedex 3

Tél + 33 (0)2 28 22 02 02

Fax + 33 (0)2 40 68 95 29

contact@airpl.org

air | pays de
la Loire
www.airpl.org