

Titre: Évaluation du comportement géochimique en conditions normale et froides de différents stériles présents sur le site de la mine Raglan
Title:

Auteur: Marie-Pier Éthier
Author:

Date: 2011

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Éthier, M.-P. (2011). Évaluation du comportement géochimique en conditions normale et froides de différents stériles présents sur le site de la mine Raglan [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.
Citation: <https://publications.polymtl.ca/553/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/553/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: Bruno Bussière, Mostafa Benzaazoua, & Ronald V. Nicholson
Advisors:

Programme: Génie minéral
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉVALUATION DU COMPORTEMENT GÉOCHIMIQUE EN
CONDITIONS NORMALE ET FROIDES DE DIFFÉRENTS STÉRILES
PRÉSENTS SUR LE SITE DE LA MINE RAGLAN

MARIE-PIER ÉTHIER

DÉPARTEMENT DES GÉNIES CIVIL, GÉOLOGIQUE ET DES MINES
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE MINÉRAL)

AVRIL 2011

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC EN ABITIBI-TÉMISCAMINGUE

Ce mémoire intitulé :

ÉVALUATION DU COMPORTEMENT GÉOCHIMIQUE EN CONDITIONS
NORMALE ET FROIDES DE DIFFÉRENTS STÉRILES PRÉSENTS SUR LE SITE
DE LA MINE RAGLAN

présenté par : ÉTHIER Marie-Pier

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

Mme BLESSENT Daniela, Ph.D., présidente

M. BUSSIÈRE Bruno, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. BENZA AZOUA Mostafa, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. NICHOLSON Ronald V., Ph.D., membre et codirecteur de recherche

Mme LAMONTAGNE Ann, Ph.D., membre

DÉDICACE

À ma mère et à mon père

REMERCIEMENTS

Je tiens d'abord à exprimer ma gratitude envers mon directeur Bruno Bussière pour son encadrement, son précieux soutien et sa patience au cours de mon projet de maîtrise. Mes remerciements sont aussi adressés à mes co-directeurs, Mostafa Benzaazoua et Ron V. Nicholson, qui ont aussi contribué à augmenter la qualité de ce mémoire.

Je tiens à remercier aussi Xstrata Nickel – Mine Raglan et la chaire industrielle de recherche CRSNG-Polytechnique-UQAT en environnement et gestion des rejets miniers pour le financement du projet, ainsi que le FQRNT, le CRSNG et Xstrata Nickel – Mine Raglan pour m'avoir attribué une bourse en milieu de pratique BMP Innovation.

Je tiens à remercier chaleureusement mes très sympathiques superviseurs industriels qui m'ont accueillie et encadrée à la mine Raglan, Isabelle Lévesque et Philippe Garneau, ainsi que les autres personnes que j'ai côtoyé « en haut », qui m'ont permis d'en savoir plus sur le fonctionnement à la mine et de qui je garde de chers souvenirs. Je remercie particulièrement Isabelle pour le souper sur le bateau brise-glace avec l'équipage, Mélanie pour les marches santé et la convivialité, Josianne pour les soirées de filles sauna et les fous rires, James pour m'avoir prêté sa canne et ses « gréments » pour pêcher la truite arctique et m'avoir amenée voir une explosion d'une mine à ciel ouvert (même s'il faisait -50°C!), Pauline pour ses histoires et qui est une femme que j'admire, Cécile, France, Denis, Joël, Lucie, Suzie et plusieurs autres qui méritent d'être nommés. Sachez que vous avez été d'une aide précieuse dans mon projet et que vous avez fait de ces séjours une expérience unique remplie d'événements mémorables.

Tout le personnel de l'URSTM est aussi chaleureusement remercié pour son implication dans le projet, en particulier Alain Perreault qui effectuait mes tâches durant mes séjours à Raglan, Mélanie Bélanger et Mathieu Villeneuve pour les nombreuses analyses chimiques, ainsi qu'Yvan, Nil, Janie, Mélinda et Karl. Je tiens à remercier aussi mes collègues, ex collègues étudiants et amis, soit Thomas Genty pour sa patience et sa disponibilité, Virginie Derycke pour sa bonne compagnie, Drissa Ouattara, Hassan Bouzahzah, Bruno Bossé, Sabrina Castelli, Benoît Plante à qui je dois beaucoup (de bières) pour les discussions éclairées et les sages conseils, Noémie Gaignic avec qui il fait toujours bon potiner, Valérie Deschâtelets-Jean pour les sessions de travail hors de mon bureau (je nous en souhaite pour de nombreuses années encore), Cindy Champoux, Véronique Beauvais, Evgeniya Smirnova, Olivier Peyronnard, Véronique Coulombe,

Isabelle Demers, Myriam Paquette, Mélanie Boyer-Gélinas, Gabrielle Dublet, Manon Vitel, Mathilde Rousselle, Thomas Deschamps, Gaëlle Molinier et tous les autres. Vous avez été et êtes très précieux pour moi.

Mes remerciements s'adressent aussi aux professeurs qui m'ont enseigné en concentration environnement au baccalauréat en génie chimique, qui ont su entretenir et raviver ma flamme d'œuvrer dans ce domaine, ainsi que celle de mes camarades de classe.

Je remercie aussi mes parents Luc et Myriam et mes frères et soeurs Émilie, Ariane et Raphaël de m'avoir appuyée dans ce projet et de m'avoir toujours encouragée à foncer dans la vie. Merci aussi à Steve pour sa compréhension et pour avoir toujours cru en moi.

RÉSUMÉ

Les stériles miniers sont des rejets solides produits en grande quantité par l'industrie minière et sont habituellement entreposés en surface sur les sites miniers sur des haldes à stériles. Des minéraux présents dans ces rejets peuvent réagir avec l'eau et l'air et contaminer l'eau de drainage des haldes et, par le fait même, les milieux récepteurs. Ce type de contamination peut produire un drainage acide ou neutre; on parlera alors soit de drainage minier acide (DMA) ou de drainage neutre contaminé (DNC).

À la mine Raglan, propriété d'Xstrata Nickel, les eaux de drainage des haldes à stériles ont parfois des pH et des concentrations en nickel ne respectant pas les normes gouvernementales et nécessitent un traitement avant d'être rejetées à l'environnement. La mine Raglan est située dans la région du Nunavik, Québec (62°N) et exploite un gisement de nickel-cuivre depuis 1998. Les stériles y sont entreposés dans des haldes durant les opérations avant d'être éventuellement enfouis en remblai rocheux dans les anciennes galeries des mines souterraines ou encore servir de matériaux de remblayage des fosses. Le concept de restauration est basé sur l'intégration des stériles au pergélisol, ce qui devrait permettre de limiter l'oxydation des sulfures et la génération de drainage contaminé. À la mine Raglan, la profondeur du pergélisol est de près de 600 mètres et sa température minimale est de -6,9°C. Présentement, à la mine, tous les types de stériles sont regroupés (aucune sélection sur le site) et entreposés nonobstant leur potentiel de contamination. Une étude antérieure nous indique cependant que les stériles éloignés du gisement (roche mère ne contenant pas de minerai, qui lui est réactif) pourraient ne pas avoir de potentiel de contamination (Bussière, Plante, Bouzahzah et Benzaazoua, 2008). Si ces types de roches étaient inertes, la gestion des stériles sur le site pourrait être optimisée pour réduire l'empreinte environnementale des stériles problématiques.

Le but de ce projet est de caractériser le comportement géochimique de stériles dont la minéralogie n'est pas influencée par le gisement, en conditions normale (de laboratoire) et froides. On vise à mieux connaître les phénomènes impliqués dans la génération ou l'atténuation d'une éventuelle contamination et l'effet de la température sur ceux-ci. Pour ce faire, sept échantillons de géologies et de provenances différentes ont été sélectionnés sur le site. Des essais cinétiques et de consommation d'oxygène en colonnes ont été effectués sur les stériles

échantillonnés (70 kg) à température normale afin de déterminer le potentiel de contamination des stériles. D'autres essais à plus petite échelle, soit en mini-cellules d'altération (67 g), ont aussi été réalisés à différentes conditions (22°C, 10°C, -6°C et en alternant des cycles de gel et dégel) pour déterminer l'effet de la température sur leur comportement géochimique. Cet essai est plus agressif que l'essai en colonne et permet ainsi de mieux percevoir les différences géochimiques.

Les essais en colonnes ont montré que six des sept types de stériles ne sont pas potentiellement générateurs d'acidité (PGA). Le PGA de l'olivine-pyroxénite de la mine 3 est quant à lui incertain. L'acidité peut être produite dans les stériles par l'oxydation des sulfures, principalement pour les roches étudiées soient : la pyrrhotite, la pentlandite, la pyrite et la chalcopyrite. Le potentiel de neutralisation des stériles provient principalement des silicates et de la calcite présente en traces dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3. Un seul type de stérile génère du nickel dans les eaux de drainage des colonnes: la péridotite de la mine Kikialik (en moyenne 0,280 mg/kg stérile/an et à des concentrations inférieures à la Directive 019). Celui-ci pourrait être causé par la dissolution de croûtes d'altération présentes sur les surfaces de ce type de roche (présentes en grande quantité pour ce type de stérile seulement), ainsi que par l'oxydation de sulfures de nickel (pentlandite) et de la pyrrhotite qui peut contenir du nickel en impureté. Les autres types de stériles ne libèrent pas de nickel en solution à court terme, bien que la péridotite de la mine 3 et l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 contiennent des teneurs en soufre et en nickel équivalentes ou supérieures à celles de la péridotite de la mine Kikialik. L'absence de nickel dans l'eau de rinçage de ces matériaux peut s'expliquer soit par sa précipitation sous forme d'hydroxyde à des pH supérieurs à 8 ou sa sorption sur les surfaces des stériles. Ainsi, en raison de ces deux phénomènes qui pourraient être présents (et éventuellement s'atténuer), on ne peut pas statuer sur le potentiel de génération de DNC à long terme des stériles. Les chances que le gabbro de la mine 2, l'argilite de la mine 3 et la volcanique produisent du DNC sont toutefois très minces étant donné leurs très faibles teneurs en nickel.

On a pu déterminer avec les mini-cellules d'altération que les taux d'oxydation des sulfures et la lixiviation des silicates diminuent avec la température et peuvent être prédits de façon adéquate avec la loi d'Arrhénius. Une faible lixiviation de sulfates est observée à -6°C pour 5 des 7 types de stériles, suggérant qu'il y ait encore une faible oxydation des sulfures à cette température. Le calcium est libéré en plus grande quantité à faible température (10°C et -6°C) qu'à température

normale en raison d'une augmentation de la réactivité de la calcite (présente en traces) ; cette dissolution serait produite en réponse à la production d'acidité créée par la mise en solution du CO₂ atmosphérique qui est plus grande à faible température. Le comportement du calcium fait en sorte que le rapport des taux de libération des éléments des minéraux neutralisants (surtout Ca et Mg) sur le taux d'oxydation des sulfures est plus élevé à des températures plus froides. L'alternance des cycles de gel et de dégel a, pour sa part, entraîné de façon générale une hausse de l'oxydation des sulfures et de la libération du fer dans le lixiviat. En comparant les différents taux de lixiviation obtenus dans cette étude, on constate qu'il y a des effets d'échelle entre les essais en colonne et les mini-cellules d'altération et qu'il y a un effet de température. Cependant, il est impossible d'utiliser une seule relation pour extrapoler les taux de lixiviation de tous les éléments ou de tous les minéraux à une autre température ou à une échelle différente.

À la lumière des résultats de cette étude, on recommande donc à la mine de gérer les stériles ayant un potentiel de DNC à court terme avec les stériles potentiellement générateurs de DMA et de privilégier ceux-ci pour le remblai souterrain ou le remplissage des fosses afin de faciliter leur intégration au pergélisol et réduire leur réactivité. Les matériaux n'ayant pas de potentiel de génération d'acide et ayant un faible potentiel de génération de DNC (à long terme seulement) pourraient être stockés sur une plus longue période en surface et même être utilisés comme matériaux de base pour la restauration (comme matériaux de recouvrement pour les stériles dans les fosses ou pour le parc à résidus). Ainsi, la production de contamination sur le terrain et les coûts reliés au traitement des eaux et à la restauration pourront être réduits durant les opérations de la mine.

ABSTRACT

Mine wastes are solid wastes produced in large quantity by the mining industry. They are usually stored in piles at the ground surface. Some minerals in the waste rocks can react with water and atmospheric oxygen and contaminate the drainage water of the piles. This type of contamination can produce a neutral or an acidic drainage, which are known as contaminated neutral drainage (CND) or acid mine drainage (AMD).

At the Raglan mine, property of Xstrata Nickel, the pH and nickel concentrations of the drainage water of the waste rock piles sometimes exceed regulation criteria, and the water has to be treated before being released into the environment. The Raglan mine is located in Nunavik, Québec (62°N), and exploits a nickel-copper deposit since 1998. At this site, waste rocks are temporarily stored in piles during the operations before eventually being used as rockfill in underground stopes, or as filling material in open pits. The rehabilitation concept is based on the integration of the waste rocks into the permafrost to limit sulphide oxidation and contamination of the drainage water. At the Raglan mine, the permafrost is approximately 600 meters deep and has a minimum temperature of -6.9°C. Presently, the waste rocks are all grouped (no segregation at the site) and stored without considering their contamination potential. However, a former study indicated that the waste rocks far from the deposit (rock with no reactive ore) could have a low contamination potential (Bussière, Plante, Bouzahzah, and Benzaazoua, 2008). If these waste rock types are inert, the waste rock management on site could be modified to reduce the risk of contaminant generation in the mine water.

The objective of this project is to characterize the geochemical behaviour of different waste rock types, with no mineralogical influence of the deposit, in normal (laboratory) and cold conditions. We aim at improving our knowledge concerning the phenomena involved in the generation or attenuation of an eventual water contamination, and to evaluate the influence of temperature on these phenomena. To do so, seven samples of representative waste rock were selected, each of them representing a different geology. Kinetic and oxygen consumption column tests were performed on the samples (70 kg) at normal temperature to determine the contamination potential of the waste rocks. Other tests at smaller scale, in weathering cells (67 g), were performed to assess the effect of temperature on their geochemical behaviour. This test is more aggressive than the column test and therefore allows better observing geochemical changes.

Column tests showed that six of the seven waste rock types are not potentially acid generating (PAG). The acid generating potential of the olivine-pyroxenite from mine 3 is uncertain. In the waste rocks, the acidity can be produced by sulphide oxidation; the main sulphide minerals present in the waste rocks are pyrrhotite, pentlandite, pyrite, and chalcopyrite. The neutralization potential of the waste rocks is mainly provided by silicates and by calcite that is present in traces in the olivine-pyroxenite from mine 3. Only one waste rock type generates nickel in its drainage water: the peridotite from the Kikialik mine (with an average of 0,280 mg/kg waste rock/year, and with corresponding concentrations below the Directive 019). This contamination could be produced by the dissolution of an alteration crust present on the surfaces of this rock type (not present in significant quantity for the other rock types) and by the oxidation of nickel sulphides (pentlandite) and of pyrrhotite that can contain nickel as impurity. Nickel is not leached from the other waste rock types on a short term, even if the peridotite from mine 3 and the olivine-pyroxenite from mines 2 and 3 have sulphur and nickel contents in the initial solid equivalent or higher than those of the peridotite from the Kikialik mine. The absence of nickel in the drainage water of these rock types can be due to its precipitation on hydroxide formed at pH above 8, or to its sorption on the surfaces of the waste rocks. Due to these two phenomena that could occur (but can eventually disappear), we cannot conclude on the long term CND generation potential of the waste rocks. However, probabilities that the gabbro from mine 2, the argillite from mine 3 and the volcanic generate CND are very low considering their low nickel content.

Alteration cells showed that the oxidation rates of sulphides and silicate dissolution decrease with a temperature reduction, and can be properly predicted by the Arrhenius law. A low sulphate leaching is observed for 5 of the 7 rock types at -6°C , suggesting low sulphide oxidation at this temperature. Calcium is leached in larger quantity at lower temperatures (10°C and -6°C) than at normal temperature because of an increase in calcite reactivity (present in traces) ; this dissolution increase would be in response to the acidity produced by the dissolving atmospheric CO_2 , that is higher at lower temperatures. Calcium leaching increases at cold temperatures as reflected by the ratio of the chemical elements related to the neutralizing minerals (especially Ca+Mg) and the sulphate production related to sulphide oxidation. Freeze/thaw cycles yielded higher sulphide oxidation rates and iron leaching. When comparing the different leaching rates obtained in the study, we note that there are scale-up effects between the columns and the weathering cells, and that there is also a temperature effect. However, it is impossible to use a

single relationship to extrapolate the leaching rates for all the chemical elements from one scale or temperature to another scale or temperature.

Based on the results of this study, we therefore recommend to Raglan mine to manage the waste rocks with a short term CND potential with the potentially acid generating waste rocks, and to prioritize them as underground rockfill, or filling the bottom of open pits to facilitate their integration to the permafrost and reduce their reactivity. The materials with no acid generating potential and only a long term CND potential could be stored at the surface for a longer period and even be used for rehabilitation (for example as cover materials for the waste rock in open pits or tailings stack). Thus, the production of contamination on site and the costs related to water treatment and rehabilitation could be reduced during the mine operations.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	III
REMERCIEMENTS	IV
RÉSUMÉ.....	VI
ABSTRACT	IX
TABLE DES MATIÈRES	XII
LISTE DES TABLEAUX.....	XVI
LISTE DES FIGURES	XX
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	XXV
LISTE DES ANNEXES	XXX
CHAPITRE 1 INTRODUCTION.....	1
1.1 La gestion des stériles miniers	1
1.2 Défis environnementaux en lien avec les haldes à stériles.....	3
1.3 La réactivité des rejets miniers en climat nordique.....	4
1.4 Contexte, objectifs et structure du mémoire.....	6
CHAPITRE 2 LITTÉRATURE PERTINENTE ET DESCRIPTION DU SITE À L'ÉTUDE	9
2.1 Drainage neutre contaminé.....	9
2.1.1 Minéraux impliqués, réactions d'oxydation et de neutralisation	11
2.1.2 Géochimie du nickel en conditions de DNC.....	19
2.2 Effet de la température sur le comportement géochimique des rejets miniers.....	23
2.2.1 Facteurs influençant la qualité de l'eau et la production de contaminants générés par des rejets miniers en conditions froides	23
2.2.2 Évaluation du taux d'oxydation des sulfures à différentes températures.....	34

2.3	Comportement de rejets miniers en région nordique : études de cas	38
2.4	Description du site de la mine Raglan.....	44
2.4.1	Géologie régionale et du gisement	46
2.4.2	Gestion des stériles.....	48
2.5	Études antérieures sur la géochimie des stériles de la mine Raglan	49
2.5.1	Essais en cellules humides (Rinker et al., 2003)	49
2.5.2	Caractérisation et essais statiques de différents types de stériles (Bussière et al., 2008) 50	
2.6	Besoins en recherche pour caractériser les stériles de Raglan	52
CHAPITRE 3 MATÉRIEL, MÉTHODES ET CARACTÉRISATION DES ÉCHANTILLONS.....		54
3.1	Échantillonnage.....	54
3.2	Essais en colonnes.....	55
3.2.1	Préparation des échantillons et mise en place	55
3.2.2	Description de l'essai en colonne.....	57
3.2.3	Consommation d'oxygène par les stériles des colonnes	59
3.3	Essai en mini-cellule d'altération et évaluation de l'effet de la température	60
3.3.1	Préparation des échantillons.....	61
3.3.2	Méthode de l'essai en mini-cellule d'altération	61
3.4	Méthodes de caractérisation des matériaux solides.....	63
3.4.1	Caractérisation physique	63
3.4.2	Caractérisation chimique.....	66
3.4.3	Caractérisation minéralogique.....	66
3.4.4	Essais statiques	69
3.4.5	Évaluation du potentiel de sorption et de la forme du Ni sorbé.....	71

3.5	Méthodes de caractérisation des échantillons liquides.....	74
3.5.1	Analyses électrochimiques	74
3.5.2	Analyses élémentaires	75
3.5.3	Acidité et alcalinité.....	75
3.6	Résultats de la caractérisation des matériaux solides.....	76
3.6.1	Principales caractéristiques physiques	76
3.6.2	Principales caractéristiques chimiques.....	82
3.6.3	Principales caractéristiques minéralogiques.....	84
3.6.4	Essais statiques	94
3.6.5	Évaluation du potentiel de sorption et de la forme du Ni sorbé.....	95
3.6.6	Synthèse de la caractérisation	102
CHAPITRE 4	ESSAIS EN COLONNES : RÉSULTATS, INTERPRÉTATION ET DISCUSSION	107
4.1	Résultats des essais en colonnes.....	107
4.1.1	Lixiviations.....	107
4.1.2	Consommation d'oxygène.....	120
4.2	Interprétation des résultats et discussion.....	128
4.2.1	Comparaison des différents taux	128
4.2.2	Potentiel de génération de DMA et de DNC à long terme.....	135
4.2.3	Discussion sur les phénomènes géochimiques impliqués	141
4.3	Synthèse des essais en colonnes.....	146
CHAPITRE 5	ESSAIS EN MINI-CELLULES D'ALTÉRATION ET ÉVALUATION DE L'EFFET DE LA TEMPÉRATURE.....	149
5.1	Résultats des essais en mini-cellules d'altération	149
5.1.1	Caractéristiques des lixiviats.....	150

5.1.2	Épuisement des éléments	159
5.2	Interprétation et discussion sur les essais en mini-cellules d'altération.....	160
5.2.1	Conditions d'équilibre thermodynamique.....	160
5.2.2	Relation entre les taux de réaction et la température	162
5.2.3	Évaluation de l'effet d'échelle entre les résultats des essais en colonnes et en mini-cellules d'altération	166
5.2.4	Discussion sur le comportement géochimique des stériles lors de l'essai en mini-cellule d'altération.....	170
5.3	Synthèse des essais en mini-cellules d'altération.....	171
CHAPITRE 6 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS.....		174
6.1	Conclusions	174
6.2	Recommandations	177
RÉFÉRENCES.....		182
ANNEXES		198

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1: Coefficients de température Q_{10} de la pyrite et de la pyrrhotite pour différentes températures et différents matériaux utilisés.....	35
Tableau 2.2: Contenu volumétrique moyen en eau non gelée dans chaque colonne à 30, 0, -2 et -10°C (en %) (Meldrum et al., 2001).....	40
Tableau 2.3: Flux d'oxygène moyen pour la durée des tests dans chaque colonne à 30, 0, -2 et -10°C ($\pm 5 \text{ mol O}_2/(\text{m}^2 \cdot \text{an})$) (Meldrum et al., 2001).....	40
Tableau 2.4: Résultats de la caractérisation chimique et des essais statiques sur des stériles de la mine Raglan (Rinker et al., 2003).....	49
Tableau 2.5: Résultats des concentrations de sulfates et de nickel moyennes et maximales en régime permanent lors d'essais en cellules humides (Rinker et al., 2003).....	50
Tableau 2.6: Principaux facteurs et verdict quant au potentiel de génération de DNC et de DMA des échantillons étudiés (Bussière et al., 2008).....	51
Tableau 3.1: Échantillons de stériles et provenance	54
Tableau 3.2: Caractéristiques et propriétés des matériaux en place dans les colonnes.....	57
Tableau 3.3: Étapes des essais en mini-cellules d'altération	63
Tableau 3.4: Exemple de matrice de la composition élémentaire des principales phases minérales pour le calcul minéralogique.....	67
Tableau 3.5: Nombre de minéraux de pyrite, de pyrrhotite et de gangue observés à la MSE pour chaque type de stérile et limite de détection du nickel (LD).....	69
Tableau 3.6: Paramètres obtenus de la distribution granulométrique des matériaux des colonnes.....	77
Tableau 3.7: Paramètres obtenus de la distribution granulométrique des matériaux des mini-cellules d'altération	79
Tableau 3.8: Densité relative des grains des stériles utilisés pour les essais en colonnes et en mini-cellules d'altération.....	80

Tableau 3.9: Surface spécifique des échantillons des colonnes et des mini-cellules d'altération obtenues par l'analyseur et la méthode de White (1995).....	81
Tableau 3.10: Composition chimique des roches stériles utilisées pour les essais en colonnes (%)	82
Tableau 3.11: Composition chimique des roches stériles utilisées pour les essais en mini-cellules d'altération (%)	83
Tableau 3.12: Composition minéralogique des roches stériles utilisées pour les essais en mini-cellules d'altération	88
Tableau 3.13: Composition minéralogique des roches stériles utilisées pour les essais en colonnes	89
Tableau 3.14: Résultats des essais statiques et verdicts de génération d'acidité	95
Tableau 3.15: Paramètres de la cinétique de sorption d'ordre 2 de la sorption du nickel lors de l'essai en bécher	98
Tableau 3.16: Paramètres de la cinétique d'ordre 2 de la sorption du nickel lors de l'essai en flacons agités	100
Tableau 3.17: Résultats des extractions séquentielles sur les stériles avant et après la sorption de nickel (mg Ni/g stérile)	101
Tableau 3.18: Synthèse de la caractérisation physique, chimique et minéralogique des matériaux utilisés pour les essais en colonne et en mini-cellule d'altération.....	105
Tableau 4.1: Paramètres des droites de régressions des relations d'oxydation et de neutralisation	116
Tableau 4.2: Potentiels de neutralisation de minéraux présents dans les stériles (Lawrence et Scheske, 1997; Jambor et al., 2007).....	117
Tableau 4.3: Moyennes des résultats des analyses électrochimiques, des acidités et des alcalinités en régime permanent (lixiviations #3 à 13). Les écarts-types sont affichés entre parenthèses.	119

Tableau 4.4: Taux de lixiviation des principaux éléments en régime permanent (lixiviations excluant les deux premières lixiviations) dans les essais en colonnes (mg/kg stérile/an) ...	119
Tableau 4.5: Paramètres d'entrée des étapes 1 et 2 la simulation 1D dans VADOSE/W.....	125
Tableau 4.6: Paramètres nécessaires au calcul de K_f	127
Tableau 4.7: Statistiques de la loi de Student des paramètres géochimiques des colonnes 1 et 8 (contenant de la péridotite de la mine 3)	130
Tableau 4.8: Statistiques de la loi de Student des paramètres géochimiques des colonnes 3 et 9 (contenant de l'olivine-pyroxénite de la mine 3)	130
Tableau 4.9: Moyennes des résultats électrochimiques, de l'alcalinité et des taux de lixiviation des éléments (en mg/kg stérile/an) pour les colonnes C4, C10, et C10 normalisés.....	132
Tableau 4.10: Statistiques de la loi de Student des paramètres géochimiques des colonnes 4 et 10 contenant de l'olivine-pyroxénite de la mine 2 de granulométries différentes	132
Tableau 4.11: Comparaison des résultats de lixiviation de S et de consommation d'oxygène de la colonne C3.....	134
Tableau 4.12: Épuisements du soufre, du calcium, du magnésium et du manganèse dans les stériles pour la durée totale des essais cinétiques en colonnes (1 an).	137
Tableau 4.13: Données nécessaires au calcul et résultats des temps nécessaires à la lixiviation de toute l'acidité (temps PA) et du potentiel de neutralisation (temps PN) et leur soustraction	138
Tableau 4.14: Évaluation du potentiel de génération d'acidité à long terme selon les trois méthodes.....	139
Tableau 4.15: Estimés de la production de Ni maximale et à partir de l'équation 4.10	141
Tableau 4.16: Propriétés des 7 ^e lixiviats issus des colonnes et minéraux précipités selon la modélisation avec le logiciel PHREEQC.....	143
Tableau 4.17: Points de charge nulle de certains minéraux présents dans les stériles	144

Tableau 4.18: Synthèse des essais en colonnes : caractéristique des stériles utilisés, des essais cinétiques et de consommation d'oxygène ainsi que des phénomènes de rétention du nickel supposés dans ces essais.....	148
Tableau 5.1: Caractéristiques des essais en mini-cellules.....	149
Tableau 5.2: Paramètres des droites de régressions linéaires des relations d'oxydation et de neutralisation des mini-cellules.....	159
Tableau 5.3: Composés précipités dans la modélisation d'équilibre thermodynamique pour les lixiviations #15 et #44.....	162
Tableau 5.4: Paramètres de la loi d'Arrhénius selon les lixiviations de S, de Ni et de Ca+Mg+Mn et coefficient de détermination des données expérimentales par rapport à la régression	164
Tableau 5.5: Comparaison de quelques caractéristiques des essais en colonne et en mini-cellule d'altération	167
Tableau 5.6: Synthèse de l'effet de la température sur la lixiviation des principaux éléments ...	173

LISTE DES FIGURES

- Figure 1-1: a) Parc à résidus de la mine Raglan b) Halde à stériles #2 de la mine Raglan (2008)..2
- Figure 2-1: Solubilité de quelques hydroxydes métalliques à 25°C, où la zone grise est celle du DNC (tirées de Plante, 2010, modifié de Cravotta III, 2008) 10
- Figure 2-2: Taux de génération de S en fonction de la température produit par l'oxydation de la pyrrhotite pure pour une surface spécifique de 1,2 m²/g et d'énergies d'activation de 60 et 52,4 kJ/mol (Nicholson et Scharer, 1994; Belzile et al., 2004)..... 16
- Figure 2-3: Schéma du mécanisme de la dissolution du talc mécanisme qui consiste en (a) l'échange d'atomes de Mg avec 2 protons en surface, suivi de (b) la libération de Si (Saldi et al., 2007)..... 19
- Figure 2-4: Concentration de nickel en solution (Ni²⁺) en fonction du pH, basée sur la précipitation de Ni(OH)₂ d'une solution contenant 100 mg/L de Ni (Nicholson, 2004).20
- Figure 2-5: Diagramme Eh-pH (aussi appelé diagramme de Pourbaix) des espèces de Ni d'une solution contenant 10 mg/L de Ni et de SO₄ à 25°C (Plante, 2010).21
- Figure 2-6: Contenu en eau non gelée dans des résidus de la mine Nanisivik d'une zone oxydée en surface (20 cm) et d'une zone plus profonde (80 cm) obtenus expérimentalement et par une modélisation (Elberling, 2001b)26
- Figure 2-7: Illustration schématique de l'effet de la température sur les taux d'oxydation des sulfures normalisés (INAP, 2009, d'après Robertson et Broughton, 1992)28
- Figure 2-8: Variation des taux d'oxydation biologiques relatifs de la pyrite provenant de climats tempérés (symboles blancs) et arctiques (symboles noirs) (Elberling, 2001a)29
- Figure 2-9: Solubilités théoriques de la calcite et de la dolomite et pH de l'acide carbonique en fonction de la température (pression partielle de CO₂ = 10^{-3,5} atm) (NEDEM, 2006).....30
- Figure 2-10: Pourcentage de nickel sorbé sur de la pyrophyllite (a), du talc (b), de la gibbsite (c), de la silice (d), et un mélange gibbsite/silice (e) à 9, 25 et 35°C à partir d'une concentration initiale en nickel de 3 mM (Scheckel et Sparks, 2001b).....33

Figure 2-11: Graphiques de la loi d'Arrhénius linéarisée de la constante de sorption de nickel à 9, 25 et 35°C à partir d'une concentration initiale en nickel de 3 mM (Scheckel et Sparks, 2001b).....	33
Figure 2-12: Variations annuelles de température et de consommation d'oxygène observées dans les résidus de la mine Nanisivik, basées sur des estimés hebdomadaires (Elberling, 2001b).....	41
Figure 2-13: Consommation d'oxygène par les résidus de la mine Nanisivik au laboratoire en fonction de la température. (Elberling, 2001b)	42
Figure 2-14: Emplacement de la mine Raglan	45
Figure 2-15: Mesures du profil thermique jusqu'à 430 m de profondeur observé dans le trou de forage 718-1797 de la zone 5-8 du plateau Katinniq et extrapolation basée sur le gradient géothermique moyen calculé entre 160 et 430 m d'une valeur moyenne de 0,0136°C/m (Fortier, 2006)	46
Figure 2-16: Les différents gisements de la mine Raglan à l'hiver 2010	47
Figure 3-1: Tamisage des matériaux des colonnes C1 à C9	56
Figure 3-2: Coupe verticale d'une colonne	58
Figure 3-3: Colonnes et remplissage d'une colonne d'eau déionisée à partir d'un réservoir en hauteur (à droite)	59
Figure 3-4: Configuration et photo d'une colonne lors des essais de consommation d'oxygène ..	60
Figure 3-5: Photo des mini-cellules d'altération de cette étude	62
Figure 3-6: Schéma résumant les essais en mini-cellule d'altération (Bussière et al., 2005, adapté de Cruz et al., 2001)	62
Figure 3-7: Photographie des essais de sorption agités.....	72
Figure 3-8: Distribution granulométrique des matériaux utilisés pour les essais en colonnes	76
Figure 3-9: Moyenne des rapports de forme des matériaux utilisés pour les essais en colonnes pour chaque type de stérile.....	78
Figure 3-10: Distribution granulométrique des matériaux utilisés pour les essais en mini-cellules d'altération	78

Figure 3-11: Comparaison des teneurs en soufre et nickel des stériles de cette étude avec les moyennes des stériles du site (Rinker et al., 2003) et les teneurs théoriques de la pentlandite	84
Figure 3-12: Photos prises au microscope optique en réflexion	85
Figure 3-13: Photographies des altérations de la péridotite de la mine Kikialik a) surface des roches, b) coupe transversale par microscope électronique à balayage (où la surface du minéral se trouve à droite).....	91
Figure 3-14: Concentrations élémentaires dans une coupe transversale d'un minéral de gangue de la péridotite de la mine Kikialik montré à la Figure 3-13b, du centre du minéral vers sa surface (points 1 à 20)	92
Figure 3-15: Profil linéaire des concentrations élémentaires dans une coupe transversale d'une roche de gangue de la péridotite de la mine Kikialik (points 1 à 8) et de ses deux couches de dépôts d'altérations (points 9 à 12 et 13 à 20).....	93
Figure 3-16: Résultats des observations de la teneur en nickel dans des grains de pyrite, de pyrrhotite et des minéraux de gangue, tous types de stériles confondus (LD = limite de détection).....	94
Figure 3-17: Évolution des pH, Eh et concentrations ioniques des essais de sorption en béchers	96
Figure 3-18: Linéarisation selon la cinétique de sorption d'ordre 2 de la sorption du nickel lors de l'essai en bécher	98
Figure 3-19: Évolution des pH et des concentrations ioniques des essais de sorption en flacons agités.....	99
Figure 4-1: Résultats des analyses électrochimiques des lixiviats provenant des essais en colonnes (pH, Eh, conductivité)	108
Figure 4-2: Résultats des mesures d'acidité et d'alcalinité des lixiviats provenant des essais en colonnes.....	109
Figure 4-3: Variation des valeurs ponctuelles mesurées pour les concentrations en soufre	110
Figure 4-4: Variation des valeurs ponctuelles mesurées pour les concentrations en fer et en nickel	111

Figure 4-5: Variation des valeurs ponctuelles mesurées pour les concentrations en calcium, magnésium, manganèse, la sommation Ca+Mg+Mn, silicium et aluminium des essais en colonnes.....	113
Figure 4-6: Courbes d'oxydation et de neutralisations de chaque colonne.....	115
Figure 4-7: Variations des concentrations d'oxygène dans les colonnes lors des essais de consommation d'oxygène	120
Figure 4-8: Courbe de rétention d'eau et fonction de perméabilité utilisées dans la modélisation par Vadose/W pour la colonne d'olivine-pyroxénite de la mine 3	124
Figure 4-9: Colonne C3 modélisée avec le logiciel VADOSE/W pour l'interprétation des essais de consommation d'oxygène sur l'olivine-pyroxénite de la mine 3	125
Figure 4-10: Comparaisons des concentrations d'oxygène à la hauteur de la sonde (0,8 m) selon les données prises en laboratoire et la modélisation VADOSE/W pour la colonne C3.....	126
Figure 4-11: Concentrations d'oxygène modélisées avec le logiciel VADOSE/W sur la hauteur de la colonne C3 pour différents temps t (min)	127
Figure 4-12: Extrapolation des relations d'oxydation et de neutralisation des sept types de stériles	136
Figure 4-13: Charge cumulée de nickel des lixiviats des essais en colonnes	140
Figure 5-1: Résultats des analyses électrochimiques dans les eaux issues des essais en mini-cellules d'altération (pH, Eh, conductivité)	150
Figure 5-2: Variation des concentrations ponctuelles en soufre dans les solutions de rinçages issues des tests en mini-cellules d'altération.....	151
Figure 5-3: Moyennes des taux de lixiviation de S mesurés dans les solutions de rinçage issues des tests en mini-cellules d'altération	152
Figure 5-4: Variation des concentrations mesurées en Fe et Ni dans les solutions de rinçages issues des tests en mini-cellules d'altération.....	153
Figure 5-5: Variation des concentrations ponctuelles en Ca, Mg, Mn, Ca+Mg+Mn, Al et Si dans les solutions de rinçages issues des tests en mini-cellules d'altération.....	155

Figure 5-6: Moyennes des taux de lixiviation mesurés pour les éléments Ca, Mg, Ca+Mg+Mn et Si dans les solutions de rinçages issues des tests en mini-cellules d'altération	156
Figure 5-7: Relations d'oxydation et de neutralisations des mini-cellules pour chaque étape des essais en mini-cellule d'altération	158
Figure 5-8: Pourcentages d'épuisement des principaux éléments chimiques	160
Figure 5-9: Valeurs moyennes des taux de lixiviation de S, Ni, Ca+Mg+Mn, Mg et Si à -6, 10 et 22°C et courbes des régressions correspondantes selon la loi d'Arrhénius (rég.)	165
Figure 5-10: Comparaison des taux massiques, volumiques et surfaciques de lixiviation des éléments chimiques lixiviés par chaque type de stérile lors des essais en colonne et en mini-cellule d'altération.....	169
Figure 6-1: Schéma de détermination du potentiel de contamination de la roche mère typique du site de la mine Raglan	180

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

C	Facteur pré-exponentiel ou de fréquence de la loi d'Arrhénius (-)
$C_{\text{Fe}^{3+}}$	Concentration de fer ferrique dans la solution ($\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$)
C_{O_2}	Concentration d'oxygène dans la phase gazeuse ($\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$)
C_u	Coefficient d'uniformité
C_c	Coefficient de courbure
CRE	Courbe de rétention d'eau
D_{10}	Diamètre correspondant à 10% cumulé de la distribution granulométrique (m)
D_{30}	Diamètre correspondant à 30% cumulé de la distribution granulométrique (m)
D_{50}	Diamètre correspondant à 50% cumulé de la distribution granulométrique (m)
D_{60}	Diamètre correspondant à 60% cumulé de la distribution granulométrique (m)
D^*	Coefficient de diffusion apparent de l'oxygène ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)
D_e	Coefficient de diffusion effectif de l'oxygène ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)
d_i	Taille de maille d'un tamis i (m)
d_{i+1}	Taille de maille d'un tamis directement supérieure à d_i (m)
DMA	Drainage minier acide
DNC	Drainage neutre contaminé
dN/dt	Taux d'oxydation de la pyrite
D_r	Densité relative des grains (-)
DRX	Diffraction des rayons X
e	Indice des vides
E_a	Énergie d'activation de la réaction (kJ/mol)
Eh	Potentiel d'oxydo-réduction (mV)
ENH	Électrode normale à l'hydrogène

EDS	Spectroscopie à dispersion d'énergie (« X-ray Energy Dispersive Spectrometry » en anglais)
EPMA	Microsonde électronique (electron probe micro-analyzer)
H	Constante de Henry (-)
HDL	Hydroxydes doubles lamellaires (LDH ou « layered double hydroxides » en anglais)
ICP-AES	Spectrométrie d'émission atomique au plasma à couplage inductif
IS	Indice de saturation (-)
k	Constante de réaction ou taux de réaction spécifique
K	Constante d'adsorption de l'oxygène de la pyrite dans le calcul de son taux de réaction théorique
$k_{\text{abiotique}}$	Constante de réaction abiotique dans le calcul du taux d'oxydation de la pyrite ($\text{g}^{-1} \cdot \text{m} \cdot \text{s}$)
K_i	Facteur d'inhibition dans le calcul du taux d'oxydation de la pyrite ($\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)
km	Facteur d'accélération microbien dans le calcul du taux d'oxydation de la pyrite (-)
K_r	Constante de réaction effective de premier ordre ($\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ ou $\text{g}^3 \cdot \text{g}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$)
K_r^*	Constante de réaction apparente de premier ordre ($\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ ou $\text{g}^3 \cdot \text{g}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$)
k_{S_2}	Constante de sorption d'ordre 2
k_{sat}	Conductivité hydraulique à saturation (m/s)
k_T	Facteur de correction pour la température dans le calcul du taux d'oxydation de la pyrite (-)
LC ₅₀	Concentration létale pour la moitié de la population d'une espèce (ppm)
LD	Limite de détection
M	Masse totale d'un échantillon (g)

m_i	Masse retenue entre les tamis de mailles d_i et d_{i+1} (g)
MEB	Microscopie électronique à balayage
MO	Microscopie optique
n	Porosité (-)
n_{O_2}	Taux de consommation d'oxygène ($\text{mol/m}^2/\text{s}$)
N_{HCl}	Normalité de la solution de HCl (mol/L)
N_{NaOH}	Normalité de la solution de NaOH (mol/L)
PA	Potentiel d'acidification ($\text{kg CaCO}_3/\text{t}$)
PAI	Produit d'activité ionique
PGA	Potentiel de génération d'acidité
PN	Potentiel de neutralisation ($\text{kg CaCO}_3/\text{t}$)
PNN	Potentiel net de neutralisation ($\text{kg CaCO}_3/\text{t}$)
P_{O_2}	Pression partielle d'oxygène dans l'air (atm)
Q_{10}	Coefficient de température (-)
q_e	Quantité de nickel sorbée à l'équilibre (mg/g)
q_t	Quantité de nickel sorbée au temps t (mg/g)
R	Constante des gaz parfaits ($8,314 \text{ J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)
R^2	Coefficient de détermination
R_{Ca}	Taux de production de calcium en régime permanent ($\text{kg CaCO}_3/\text{t/an}$)
RDT	Réflexométrie dans le domaine du temps
REMM	Règlement sur les Effluents des Mines de Métaux
R_{Mg}	Taux de production de magnésium en régime permanent ($\text{kg CaCO}_3/\text{t/an}$)
R_{S}	Taux de production de soufre en régime permanent (mg S/kg/an)
S	Aire exposée (m^2)

S_r	Degré de saturation
S_s	Surface spécifique (m^2/g)
S_{sulfures}	Proportion de soufre sous forme de sulfures contenu dans l'échantillon (%)
t	Temps (s)
T	Température ($^{\circ}C$)
$t^*_{1/2}$	Temps de demi-vie apparent (s)
Temps PA	Temps nécessaire à l'épuisement de la totalité du potentiel de génération d'acidité (s)
Temps PN	Temps nécessaire à l'épuisement de la totalité du potentiel de neutralisation (s)
TPN	Température et pression normale
UQAT	Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue
URSTM	Unité de Recherche en Sciences et Technologie Minérale
V_{HCl}	Volumes de la solution de HCl (mL)
V_{NaOH}	Volume de la solution de NaOH (mL)
w	Coefficient relatif au rapport molaire entre SO_4 et O_2 dans la réaction d'oxydation de la pyrite
WDS	Spectromètre à dispersion de longueur d'onde (« wave length dispersion spectrometer » en anglais)
α	Rapport de forme utilisé dans l'estimation de la surface spécifique des matériaux (épaisseur/longueur) (-)
α_{Po}	Conversion de la pyrrhotite (-)
θ_a	Teneur en air volumique ($m^3 \cdot m^{-3}$)
θ_w	Teneur en eau volumique ($m^3 \cdot m^{-3}$)
θ_{eq}	Teneur en air volumique équivalente ($m^3 \cdot m^{-3}$)

λ	Facteur de rugosité (d'imperfections de surface) dans le calcul des surfaces spécifiques des matériaux (-)
=S	Site de sorption

LISTE DES ANNEXES

Annexe A : Caractérisation des matériaux

A.1 Rapports de forme des particules

A.2 Différences entre les teneurs en éléments chimiques des matériaux fins et grossiers

A.3 Résultats des analyses à la microsonde électronique

Annexe B : Essais en colonne

B.1 Résultats des essais de consommation d'oxygène

B.2 Évaluation de la CRE et de la conductivité hydraulique à saturation des matériaux

Annexe C : Essais en mini-cellule d'altération

C.1 Analyses post-démantèlement

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

L'industrie minière est d'une grande importance économique dans plusieurs pays, dont le Canada, où elle produit annuellement entre 7 et 10 milliards de dollars de PIB depuis 2005, représentant entre 0,6 et 0,8% de la valeur totale du PIB canadien (2010). Un des métaux importants de cette industrie est le nickel. Ce métal est exploité pour servir à plusieurs usages, le plus commun étant son utilisation dans l'acier ou d'autres produits métalliques (Ressources naturelles Canada, 2009). Comme toute industrie d'importance, les activités d'extraction du nickel génèrent une grande quantité de rejets solides et liquides qui doivent être gérés de façon à contrôler la contamination qu'ils peuvent engendrer. Beaucoup de progrès ont été effectués au niveau de la gestion environnementale des rejets miniers au cours des deux dernières décennies (Aubertin, Bussière et Bernier, 2002; Bussière, 2007). Au Canada et au Québec, de nombreux guides, directives, politiques etc. ont vu le jour et ont servi de levier pour sensibiliser l'industrie minière d'adopter de bonnes pratiques de gestion environnementales. Mentionnons notamment le Règlement sur les Effluents de Mines de Métaux (REMM) appliqué à plus d'une centaine de mines au pays depuis 1977, le Code de pratiques écologiques pour les mines de métaux d'Environnement Canada, la Directive 019 sur l'industrie minière du Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs, le « Guide est modalités de préparation du plan et exigences générales en matière de restauration des sites miniers au Québec » du MRNF, pour ne nommer que ceux-ci.

1.1 La gestion des stériles miniers

Les rejets de concentrateur et les roches stériles sont des rejets solides produits en grande quantité par l'industrie minière et dont la gestion doit être effectuée stratégiquement, de manière à minimiser les coûts tout en assurant un maximum de protection pour l'environnement. Les rejets de concentrateur (ou résidus miniers) sont la fraction du minerai broyé finement et dépouillé de ses minéraux ou métaux à valeur économique. Ils sont entreposés dans un parc à rejets de concentrateurs, le plus souvent sous forme de pulpe (donc à très forte teneur en eau) et entourés de digues de retenue. De nouvelles approches développées récemment consistent à les épaisir et les filtrer avant leur déposition de façon à améliorer leurs propriétés hydrogéotechniques en place (Bussière, 2007). À titre d'exemple, à la mine Raglan, les résidus sont filtrés et amenés à un

pourcentage de solides de 85%. Ils sont donc amenés au parc par camion et mis en place sans avoir recourt à des digues. La Figure 1-1a montre une vue du parc à résidus de la mine Raglan.

Les stériles sont des roches qui ne contiennent pas ou trop peu de minéraux ou métaux à valeur économique pour être exploitées et qui sont extraites des galeries souterraines et des fosses à ciel ouvert dans le but d'avoir accès au gisement. Ces rejets sont habituellement entreposés en surface dans des empilements appelés haldes à stériles (voir Figure 1-1b). Ces ouvrages peuvent parfois atteindre des dimensions impressionnantes avec des hauteurs de plusieurs centaines de mètres et contenir des centaines de millions de mètres cubes de roches (Fala, Molson, Aubertin et BussiÃre, 2005). Par exemple, la mine étatsunienne Goldstrike de Barrick Gold aura à sa fermeture des haldes contenant 1,75 milliards de tonnes de stériles, atteignant 200 mètres de hauteur et couvrant une superficie d'environ 1000 hectares (Martin, 2003; Schafer, Zhan, Myers, Milczarek et Espell, 2005).

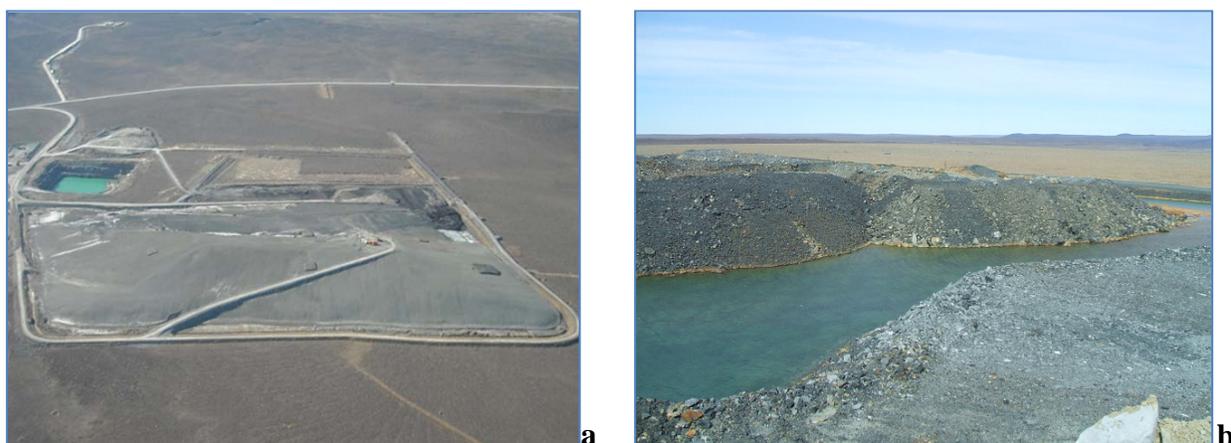


Figure 1-1: a) Parc à résidus de la mine Raglan b) Halde à stériles #2 de la mine Raglan (2008)

La granulométrie des stériles est très étalée (de dimensions allant du micromètre à plus d'un mètre) et en raison des méthodes de minage, celle-ci est normalement un peu plus fine si elle est extraite d'une galerie souterraine que d'une fosse. Les haldes à stériles sont construites selon des méthodes qui favorisent l'hétérogénéité à l'intérieur de la pile, comme le déversement à la benne (end-dumping) et l'épandage au butoir (push-dumping) pour les mines de roches dures (voir Fala, 2008 pour plus de détails). Des couches de distributions granulométriques et de densités variables sont alors formées et le passage des machineries lourdes en surface crée des zones plus

denses qui persistent avec le rehaussement de la halde (Martin, 2003; Martin, Aubertin, Zhan, Bussière et Chapuis, 2005; Azam, Wilson, Herasymuik, Nichol et Barbour, 2007). De par leur méthode de construction et la nature même des roches, les haldes subiront du tassement au fur et à mesure de leur construction. La structure hétérogène des haldes de stériles aura un impact sur les mouvements d'eau et des gaz au sein même de la halde et des comportements géochimiques et géotechniques hétérogènes (Aubertin et al., 2002; Aubertin, Fala, Molson, Gamache-Rochette, Lahmira et al., 2005).

1.2 Défis environnementaux en lien avec les haldes à stériles

Les eaux de drainage des haldes à stériles doivent respecter des normes environnementales de plus en plus sévères, ce qui constitue un défi important pour l'industrie minière. Cette eau peut provenir de précipitations, de la fonte des neiges ou pouvait déjà être présente dans la halde au moment de sa construction. On reconnaît qu'en général, en raison de leurs propriétés *in situ* (granulométrie étalée et variable, propriétés hydrogéotechniques variables, porosité élevée, angularité élevée des particules, etc.), les stériles peuvent être plus problématiques que les rejets de concentrateur d'un point de vue environnemental (Herasymuik, 1996; Aubertin et al., 2002).

Un problème bien connu dans l'industrie minière pouvant survenir dans les parcs à résidus et les haldes à stériles est le drainage minier acide (DMA). Celui-ci consiste en la contamination de l'eau lorsque celle-ci entre en contact avec certains types de minéraux (c.-à-d. les sulfures) présents dans les rejets. En s'oxydant naturellement au contact de l'eau et de l'air environnant, ces minéraux libèrent de l'acidité, des métaux et des sulfates qui sont potentiellement toxiques pour l'environnement (Aubertin et al., 2002). Par ailleurs, l'eau de drainage en contact avec les rejets miniers peut entraîner à des pH près de la neutralité la mise en solution d'éléments solubles dont les concentrations peuvent dépasser les normes environnementales, formant ce que l'on appelle un drainage neutre contaminé (DNC) (Stantec, 2004; Bussière, 2005). Parmi les contaminants pouvant être retrouvés dans le DNC, on retrouve l'arsenic (As), l'antimoine (Sb), le cadmium (Cd), le cobalt (Co), le manganèse (Mn), le molybdène (Mo), le nickel (Ni), le plomb (Pb) et le zinc (Zn). Ces éléments peuvent provenir de minéraux les intégrant dans leur formule chimique respective ou se retrouver en impuretés dans d'autres minéraux tels la pyrite (Abratis, Patrick et Vaughan, 2004), la pyrrhotite et l'arsénopyrite. Même si le problème du DNC peut sembler avoir une ampleur moindre que celui du drainage minier acide, il peut néanmoins

contenir des concentrations en éléments supérieures aux limites exigées par la réglementation et ainsi avoir un impact significatif sur l'environnement si aucune mesure n'est prise pour son atténuation. Plusieurs mines au Canada extraient des rejets ayant le potentiel de produire du DNC, par exemple : les rejets de concentrateur et de stériles envoyés au site Voisey's Bay (Beak, 1997), les rejets de concentrateur et les stériles de la mine Sä Dena Hes (Day et Howell, 2005); les stériles de la mine Tio (Pépin, 2009; Plante, 2010); les rejets de concentrateur de la mine Casa Berardi (Ancil, 2011); les rejets de concentrateur du site abandonné Wood Cadillac (Tassé, Isabel et Fontaine, 2003) et les stériles de la mine Raglan (Nicholson, Rinker, Venhuis, Williams et Swabrick, 2003; Rinker, Nicholson, Venhuis et Swabrick, 2003).

Sur chaque site minier en opération, il est requis de caractériser les rejets pour déterminer s'ils peuvent potentiellement générer du DMA ou du DNC. Une prédiction fiable servira, par exemple, à développer des techniques pour l'entreposage lors des opérations puis pour assurer une restauration appropriée pour empêcher ou limiter la production de la contamination. Un exemple de méthode de restauration pour les haldes à stériles est la construction de couvertures avec effets de barrière capillaire pour empêcher soit l'infiltration d'eau (en climat aride et semi-aride; aussi appelée «Store-and-Release cover» en anglais) (Zhan, Aubertin, Mayer, Burke et McMullen, 2001), soit la migration de l'oxygène en climat tempérée (Aubertin, Chapuis, Aachib, Bussière, Ricard et al., 1995). L'envoi des stériles est une autre approche permettant de contrôler la disponibilité de l'oxygène (Amyot et Vézina, 1997; Peacey, Yanful, Li et Patterson, 2002). Si les stériles ne sont pas potentiellement générateurs de contamination (DMA ou DNC), ils pourront servir de matériaux de construction au lieu d'être entreposés dans un aménagement contrôlé (Rinker et al., 2003). De plus, si leur pouvoir neutralisant est considérable, ils peuvent aussi être disposés de manière à neutraliser le drainage minier acide généré par d'autres rejets (Morin et Hutt, 2000). Par exemple, des stériles non générateurs d'acidité peuvent être disposés à la base et sur les côtés de haldes génératrices de DMA pour agir comme tampon et restreindre l'ampleur de la contamination (Martin, 2003).

1.3 La réactivité des rejets miniers en climat nordique

Les caractéristiques climatiques locales doivent être considérées dans la gestion d'un parc à résidus miniers ou d'une halde à stériles. En effet, les précipitations, les températures et d'autres facteurs météorologiques influencent la réactivité des rejets, l'efficacité de scénarios de

restauration et, en bout de ligne, l'ampleur de la contamination produite. Tel est d'ailleurs le cas des exploitations minières situées dans les régions nordiques. Les basses températures ralentissent la plupart des réactions chimiques et biologiques qui régissent les processus de génération de contaminants, tandis que le gel réduit leur vitesse de migration. L'intégration au pergélisol est d'ailleurs souvent employée comme méthode de contrôle de l'oxydation des rejets miniers et de la production de DMA. L'objectif de cette approche étant de geler les résidus ou les maintenir à des températures près du gel pendant la majeure partie de l'année (Gilichinsky et Wagener, 1994; Dawson et Morin, 1996). Du drainage minier acide et la lixiviation de métaux lourds ont cependant été observés sur certains sites miniers localisés dans des régions nordiques (McKnight et Bencala, 1990; NEDEM, 1996; Godwaltdt, 2001).

Plusieurs chercheurs ont tenté de déterminer avec plus de précision les conditions froides limites auxquelles doivent être soumis les rejets miniers potentiellement problématiques afin qu'ils ne génèrent pas de contamination. Les résultats de ces études montrent d'une part que la présence de contamination en région pergélisolée peut en partie être attribuée à la zone active (couche de sol subissant le dégel à la surface du sol) qui permet la production de contamination, la lixiviation et le transport des contaminants dans les bassins de drainage locaux et les environnements marins (McKnight et Bencala, 1990; Godwaltdt, 2001; Kyhn et Elberling, 2001). L'épaisseur de la zone active dépend principalement des propriétés thermiques du sol et des conditions météorologiques locales. D'autre part, Elberling (2005) a mesuré l'oxydation de sulfures dans des résidus miniers jusqu'à une température de -11°C et a montré que le gel limite, mais n'empêche pas totalement ce phénomène. Il suggère donc que les rejets doivent être maintenus à des températures en-dessous du point de congélation pour empêcher la contamination des eaux de drainage. Dans certains cas, les faibles températures ne feraient que ralentir ou retarder la production de DMA (Davé et Clulow, 1996). Plusieurs auteurs ont tenté d'établir une température maximale d'entreposage des rejets, sous laquelle ceux-ci seraient pratiquement inertes (Ahonen et Tuovinen, 1992; Godwaltdt, 2001; Kyhn et Elberling, 2001; Meldrum, Jamieson et Dyke, 2001). À partir des observations faites sur le terrain et en laboratoire, il a été remarqué qu'en règle générale, cette technique peut être viable pour les sites miniers situés dans un climat où la température du pergélisol est inférieure à -2°C et où la température moyenne annuelle de l'air se situe sous -8°C (Holubec, 2004). La relation entre la température de l'air et du sol est toutefois complexe et chaque site doit être analysé de façon spécifique (Kyhn et Elberling, 2001; NEDEM, 2009).

En plus de considérer les caractéristiques climatiques particulières de chaque site pour assurer une gestion adéquate des résidus et des stériles miniers, il devient de plus en plus pertinent de considérer l'impact des changements climatiques, particulièrement en conditions nordiques où l'on retrouve de plus en plus d'activités minières et ce, autant au Québec qu'au Canada (NEDEM, 2006; Bussière et Hayley, 2010). Les prédictions indiquent que les régions arctiques pourraient être les régions les plus affectées de la planète par le réchauffement climatique (Pachauri et Reisinger, 2007).

1.4 Contexte, objectifs et structure du mémoire

La compréhension du comportement géochimique des rejets miniers et de l'effet de la température sur leur potentiel de contamination sont primordiaux afin d'optimiser leur gestion en climat nordique. Ce projet vise à approfondir la compréhension des phénomènes géochimiques de différents stériles potentiellement générateurs de contamination en provenance du site de la mine Raglan de la compagnie Xstrata Nickel (Nunavik, Québec). On sait que le minerai de cette mine est sulfureux avec un contenu en pyrrhothite dans les rejets de concentrateur de l'ordre de 15 à 20% (SNC Lavalin, 2009); les stériles extraits à proximité des gisements sont donc plus susceptibles d'être problématiques pour l'environnement. Cependant, on ne connaît pas le potentiel de contamination des stériles situés plus loin des gisements et qui ne subissent pas leur influence. Présentement, tous les stériles extraits à la mine Raglan sont gérés de la même façon, sans considérer leur potentiel de génération de contamination. Si une partie des stériles ne présente aucun potentiel de contamination, celle-ci pourrait être gérée différemment de celle qui en possède un et ainsi réduire les coûts de restauration. Par exemple, on pourrait décider d'utiliser de façon prioritaire les stériles ayant un potentiel de contamination comme remblai rocheux dans les mines souterraines ou comme matériaux de remblayage des fosses. Les autres stériles non problématiques pourraient être entreposés de façon traditionnelle dans des haldes à stériles qui ne génèreraient pas de contaminants. Ces stériles pourraient aussi être valorisés et utilisés comme matériau de construction, notamment pour la mise en place du recouvrement sur le parc à résidus, pour la construction des routes d'accès ou des aires d'entreposage. En procédant ainsi, on optimiserait la gestion des eaux de drainage et les coûts associés à son traitement.

Ce projet vise donc à caractériser les différents types de roche dont la minéralogie n'est pas influencée par le gisement et à identifier ceux qui ont un potentiel de contamination des eaux. Les objectifs spécifiques de cette étude sont les suivants :

1. Raffiner la caractérisation chimique et minéralogique de différents types de stériles représentatifs de la mine Raglan entreprise dans une étude précédente (Bussière et al., 2008).
2. Évaluer le potentiel de génération d'acidité et de drainage neutre contaminé de 7 différents types de roches stériles de la mine Raglan, typique de celles retrouvées en périphérie du gisement, à l'aide d'essais cinétiques en colonne.
3. Évaluer l'effet de la température sur les phénomènes géochimiques se produisant dans les différents types de stériles de la mine Raglan à l'aide d'un essai cinétique à plus petite échelle (mini-cellule d'altération) et comparer les résultats à ceux de l'essai en colonne.

Les travaux de ce mémoire ont été effectués afin d'atteindre ces objectifs. Le chapitre 2 présente d'abord une revue de littérature sur les processus de formation du DNC en mettant une emphase particulière sur la contamination par le nickel à pH neutre. L'effet de la température sur le comportement géochimique des rejets miniers est ensuite présenté, avec une application aux rejets situés dans des régions nordiques. L'objectif de cette partie de la revue de littérature est de mieux cerner les phénomènes présents sur le site à l'étude, soit la mine Raglan, qui se trouve dans une zone de pergélisol continu. Une description du site est ensuite présentée (géologie régionale et du gisement, gestion des stériles), suivie d'un bref résumé des études antérieures ayant été effectuées sur les stériles miniers du site Raglan.

Au chapitre 3, le matériel (incluant la description des échantillons utilisés) ainsi que les méthodes de l'étude sont présentés. La sélection de sept types de stériles, les principales méthodes expérimentales utilisées pour leur caractérisation ainsi que les principaux résultats de caractérisations sont décrits. Les matériaux ont été caractérisés pour leurs propriétés physiques (granulométrie et densité relative des grains), chimiques (analyse élémentaire), minéralogiques (analyses par diffraction des rayons X, microscopie optique et électronique, ainsi que microsonde électronique), environnementales (essais statiques de caractérisation du potentiel de DMA) ainsi que pour leur capacité de sorption, qui visent à évaluer la capacité des stériles à retenir le nickel. Le chapitre 3 se poursuit avec la description des essais cinétiques en colonnes utilisés pour

évaluer le comportement géochimique des stériles et des essais en mini-cellules d'altération soumises à des conditions contrôlées pour l'évaluation de l'effet de la température sur le comportement géochimique des stériles.

Le chapitre 4 contient les principaux résultats des essais en colonnes (l'analyse des lixiviats et la consommation d'oxygène par les stériles). Une modélisation numérique a été effectuée afin de déterminer la consommation d'oxygène par les stériles à partir des mesures obtenues durant l'essai. Une interprétation et une discussion sont aussi présentées dans ce chapitre, avec entre autres une comparaison des différents taux de lixiviation et l'évaluation du potentiel de génération de DMA et de DNC.

Dans le chapitre 5, les résultats des caractéristiques des lixiviats et l'épuisement des éléments chimiques des stériles au cours de l'essai en mini-cellule d'altération sont d'abord présentés. Cet essai est effectué en quatre étapes : à 22°C, 10°C, -6°C (qui est près de la température minimale du pergélisol à la mine Raglan) et avec alternance de cycles gelés et dégelés. La présentation des résultats est suivie d'une interprétation à l'aide de modèles d'équilibre thermodynamique, de l'évaluation de la relation entre les taux de réaction observés et la température, de l'évaluation de l'effet d'échelle entre les essais en mini-cellule d'altération et en colonne.

Les résultats obtenus dans ce mémoire permettront d'avancer les connaissances liées aux phénomènes géochimiques menant à la génération de DNC dans les stériles miniers. De plus, des avancées sur la prédiction du DNC seront aussi effectuées avec les méthodes utilisées dans cette étude. La prédiction du DNC peut être plus complexe que la prédiction du DMA, car ce type de drainage peut comporter des taux de réaction plus faibles, sans compter que certains phénomènes géochimiques y ont plus d'importance, telles la sorption et la précipitation de minéraux secondaires. Les connaissances acquises concernant le comportement géochimique des 7 types de roches stériles provenant du site de la mine Raglan pourront être utilisées afin d'en améliorer leur gestion. Ces connaissances pourraient aussi être appliquées à d'autres sites miniers. De plus, cette étude permettra une meilleure compréhension de l'effet de la température sur les phénomènes géochimiques se produisant dans les stériles de la mine Raglan, dans la gamme de températures à laquelle ils peuvent être exposés sur le site.

CHAPITRE 2 LITTÉRATURE PERTINENTE ET DESCRIPTION DU SITE À L'ÉTUDE

Dans ce projet, on vise à évaluer le comportement géochimique de stériles ayant un potentiel de générer du DNC et qui sont produits dans un climat nordique. Afin de mieux comprendre les phénomènes géochimiques pouvant survenir dans ce type de rejet, la problématique du DNC est d'abord présentée dans ce chapitre, incluant la description de minéraux associés au phénomène et une explication de la géochimie du nickel en conditions neutres. Ensuite, l'effet de la température sur le comportement géochimique des rejets miniers est présenté, où l'emphase est mise sur les faibles températures et les sites miniers situés en climat nordique. Des facteurs pouvant influencer la production de contaminants et la qualité de l'eau à faible température sont décrits, et des méthodes d'extrapolations du taux d'oxydation des sulfures à différentes températures sont présentées. On poursuit ensuite avec une description du site à l'étude, soit la mine Raglan. Enfin, les études environnementales antérieures ayant été effectuées sur les stériles de la mine Raglan sont résumées, en mettant l'emphase sur les aspects qui méritent d'être étudiés davantage.

2.1 Drainage neutre contaminé

Le drainage neutre contaminé (DNC) peut être défini comme un drainage contaminé par la circulation de l'eau dans des rejets miniers et ce, malgré que le pH des eaux de drainage soit dans la zone de neutralité (6 à 9,5). Pour être considérées comme du DNC, ces eaux doivent contenir des éléments à des concentrations plus élevées que celles imposées par les normes environnementales. Les contaminants retrouvés dans le DNC sont généralement les métaux et métalloïdes solubles à des pH près de la neutralité (voir la section 1.2). La Figure 2-1 montre l'activité chimique des ions métalliques (correspondant à leur concentration active, donc leur solubilité) selon le pH et où la zone ombrée correspond au pH du DNC. On remarque notamment que le $\text{Ni}(\text{OH})_2$ est l'hydroxyde répertorié le plus soluble à pH neutre.

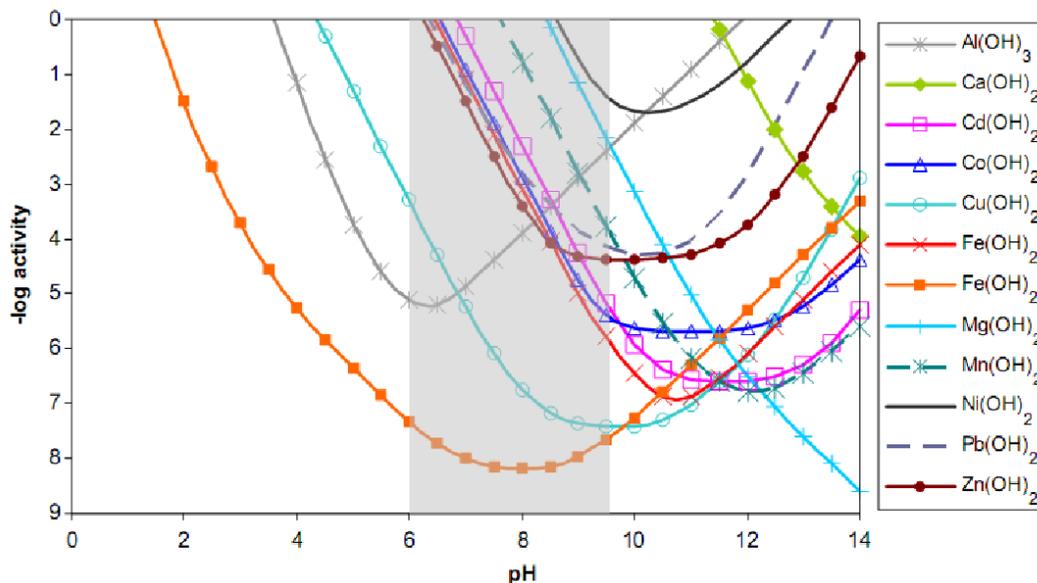


Figure 2-1: Solubilité de quelques hydroxydes métalliques à 25°C, où la zone grise est celle du DNC (tirées de Plante, 2010, modifié de Cravotta III, 2008)

Le DNC provenant de rejets miniers peut provenir de différentes sources (Stantec, 2004). Il peut d'abord être issu de l'oxydation de minéraux sulfureux en présence d'eau et d'air, pouvant mettre en solution des contaminants solubles à pH neutre dans l'eau de lixiviation. La libération de contaminants est alors fonction de la vitesse d'oxydation (Pépin, 2009; Plante, 2010). L'oxydation des sulfures est souvent accompagnée de génération d'acidité, mais dans le cas du DNC, soit elle n'est pas assez importante pour abaisser le pH sous la zone de neutralité, soit elle est neutralisée par des minéraux acidivores ou neutralisants (Scharer, Pettit, Kirkaldy, Bolduc, Halbert et al., 2000; Benzaazoua, Bussière, Dagenais et Archambault, 2004; Percival, Kwong, Dumaresq et Michel, 2004; Xu, Yu et Hiroshiro, 2010). Ceux-ci sont le plus souvent des carbonates et des silicates qui neutralisent l'acidité en se dissolvant et en libérant des ions contenant du calcium (Ca), du magnésium (Mg), du manganèse (Mn), de l'aluminium (Al), du sodium (Na), du silicium (Si) et/ou du potassium (K). Certains sulfures peuvent aussi s'oxyder sans produire d'acidité, comme la sphalérite, qui libère du zinc qui est soluble à pH neutre (Villeneuve, 2004). À des pH près de la neutralité, certains minéraux, comme la pentlandite et la galène, peuvent aussi libérer des métaux sans générer d'acidité (Aubertin et al., 2002). L'oxydation indirecte de ces minéraux à des pH plus faibles génère toutefois de l'acidité. La dissolution de minéraux d'altération contenant des métaux solubles à pH neutre peut aussi générer du DNC.

À ce jour, du DNC a été remarqué sur plusieurs sites miniers. Par exemple, du nickel est lixivié à pH neutre par les rejets de concentrateur et les stériles du site Voisey's Bay situé au Labrador (Beak, 1997; Nicholson, Rinker, Williams et Napier, 1999) et les stériles de la mine Tio sur la Côte-Nord (Pépin, 2009; Plante, 2010). Un problème de concentrations élevées en arsenic produites par des résidus miniers est aussi observé sur le site Wood Cadillac en Abitibi (Germain et Cyr, 2003). Du drainage neutre contaminé par le zinc, le cadmium et le manganèse est produit par les stériles et les résidus de la mine Sä Dena Hes, Yukon (Day et Howell, 2005; NEDEM, 2006).

Par ailleurs, le DNC peut aussi être produit par des rejets sur lesquels sont appliqués des méthodes de contrôle du DMA. En fait, les mécanismes associés à la présence des métaux solubles dans les eaux de drainage d'un résidu acidogène ne sont pas nécessairement les mêmes que ceux associés à la présence de métaux dans un drainage neutre. Un résidu peut être lixiviable et produire un drainage contaminé même en absence d'oxydation. Par conséquent, les méthodes de contrôle du DMA ne s'appliquent pas nécessairement à un site où l'on observe des résidus lixiviables. Ces méthodes servent généralement à empêcher l'eau ou l'oxygène (qui sont des réactifs de la réaction d'oxydation) d'atteindre les rejets et limitent ainsi la réactivité. Par exemple, des recouvrements en eau sont fréquemment utilisés pour freiner l'apport en oxygène. La lixiviation de zinc par des rejets ennoyés a déjà été observée (Arnesen, Bjerkgeng et Iversen, 1997). L'ennoiement des rejets présente aussi des dangers de contamination par d'autres métaux selon des essais en laboratoire (Doepker et Drake, 1991; Doepker, 1991; Stantec, 2004). De plus, sur le site minier abandonné Manitou situé en Abitibi, du zinc a été observé dans l'eau de percolation d'essais *in situ* (cellules expérimentales d'environ 10m x 10m) de résidus restaurés avec une couverture à effet de barrière capillaire (Aubertin, Bussière, Joanes, Monzon, Gagnon et al., 1999; Bussière et Aubertin, 1999; Molson, Aubertin, Bussière et Benzaazoua, 2008).

2.1.1 Minéraux impliqués, réactions d'oxydation et de neutralisation

Tel que mentionné précédemment, les réactions d'oxydation des sulfures peuvent produire du drainage minier acide, mais aussi du drainage neutre contaminé. Plusieurs facteurs influencent la réactivité des sulfures et le transport de métaux dans les rejets miniers sulfureux notamment : la disponibilité de l'oxygène, les concentrations d'oxygène et de Fe^{3+} , la température, la présence ou l'absence de microorganismes, le pH, le potentiel d'oxydoréduction (Eh), la force ionique et

les activités des ions présents, le temps de résidence, le degré de saturation, la précipitation de sulfates de fer sur les surfaces et la surface spécifique (Lowson, 1982; Doepker, 1991; Blowes, Ptacek, Jambor et Weisener, 2007). Les processus régissant les réactions sont complexes et peuvent impliquer des réactions chimiques, biologiques et électrochimiques selon plusieurs voies (Singer et Stumm, 1970; Lowson, 1982; Evangelou et Zhang, 1995). Les effets galvaniques peuvent aussi influencer les taux d'oxydation des sulfures, même à pH neutre (Moses et Herman, 1991).

Les facteurs énumérés ont donc un impact sur les processus d'oxydation des sulfures et leurs taux de réaction, ainsi que sur les réactions de neutralisation. Les processus d'oxydation de certains sulfures (pyrite, pyrrhotite, chalcopyrite, pentlandite, violarite) sont résumés dans les prochains paragraphes. Les processus d'oxydation de matériaux provenant d'une formation géologique semblable à celle de Raglan (Voisey's Bay) sont aussi présentés, suivi d'une description des processus de dissolution de certains minéraux neutralisants.

Pyrite et généralités

La pyrite (FeS_2) est un minéral de la famille des sulfures très connu pour être impliqué dans la production de drainage minier acide. Son oxydation chimique peut s'effectuer par une variété de voies impliquant des interactions de surface avec de l'oxygène dissous, du fer ferrique (Fe^{3+}) et d'autres minéraux catalyseurs (ex. MnO_2). Les principales réactions décrivant l'oxydation de la pyrite sont présentées aux équations 2.1 à 2.4. Son oxydation directe consiste à l'interaction du minéral avec l'eau et l'oxygène, libérant deux protons et produisant du fer ferreux (Fe^{2+}) et des sulfates en solution (Blowes et al., 2007). Le Fe^{2+} libéré peut ensuite être oxydé en Fe^{3+} par la réaction 2.2, qui peut aussi être catalysée par des bactéries. À pH neutre, cette réaction est peu significative, car le Fe^{2+} s'adsorbe sur la pyrite et empêche l'oxygène dissous et le Fe^{3+} d'accéder à sa surface (Moses et Herman, 1991). À un pH supérieur à 4,5 et selon le Eh, le Fe^{3+} peut aussi précipiter sous forme d'hydroxyde en libérant davantage d'acidité. À un pH inférieur à 3, le fer ferrique ne précipite plus et demeure en solution. Il peut ainsi oxyder directement la pyrite, même en absence d'oxygène (équation 2.4). Les équations 2.1 à 2.4 montrent une vision simplifiée du processus de formation de DMA par l'oxydation de la pyrite. Celui-ci peut inclure des étapes plus complexes, telles la production de thiosels, de dioxyde de soufre ou de soufre

élémentaire comme intermédiaires de réaction avant leur transformation en sulfates (Descostes, Vitorge et Beaucaire, 2004).



Les processus biologiques peuvent accélérer les taux de réaction d'oxydation des sulfures en agissant comme agent catalyseur et accélérer la réaction de l'équation 2.2 (Aubertin et al., 2002). Leur rôle peut être d'une grande importance dans les processus de contamination des eaux en contact avec des rejets miniers. Différents types de bactéries sont présents selon le pH (acidophiles, neutrophiles) et la température (thermophiles, mésophiles, psychrophiles). La principale espèce bactérienne acidophile retrouvée dans les rejets miniers est *Thiobacillus ferrooxidans* (Leduc, Leduc et Ferroni, 2002).

De plus, une réaction galvanique peut se produire entre deux minéraux sulfureux et dissoudre préférentiellement un de ceux-ci indépendamment de la présence d'un oxydant extérieur. Une cellule galvanique est produite par la différence de potentiel entre les deux minéraux mis en contact par une solution aqueuse ayant une bonne conductivité. Le minéral ayant le potentiel électrique au repos le plus faible, ou l'anode, sera dissous, tandis que celui ayant le potentiel le plus élevé, ou la cathode, restera intact (Evangelou et Zhang, 1995). Par exemple, lorsqu'ils forment une cellule galvanique, la pyrite se dissout tandis que la pyrrhotite est protégée (Perkins, Nesbitt, Gunter, St-Arnaud et Mycroft, 1995).

Les réactions chimiques présentées dans les équations 2.1 à 2.4 peuvent produire du DMA, généralement selon une séquence en trois phases (Kleinmann, Crerar et Pacellil, 1981). Dans la première phase, le pH est relativement stable et près de la neutralité parce que tamponné par les carbonates. Celui-ci chute ensuite dans la seconde phase. Ces deux phases se produisent à pH relativement élevé, où l'oxydation de la pyrite s'effectue principalement avec l'oxygène. La troisième phase se produit si un pH plus bas est atteint, favorisant la mise en solution du fer ferrique, ce qui augmente considérablement sa contribution comme réactif dans l'oxydation de la

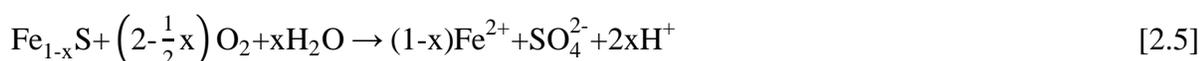
pyrite. Au cours des phases 1 et 2, les réactions génèrent globalement 4 moles d'ions H^+ par mole de pyrite oxydée. Dans la phase 3, 16 moles d'ions H^+ par mole de pyrite oxydée sont générées, accélérant le processus d'acidification. La production de DMA est donc un phénomène qui s'amplifie par lui-même. Cependant, l'oxydation de la pyrite n'implique pas nécessairement l'aboutissement à la phase 3 et à la production de DMA. Des conditions peuvent faire en sorte qu'un pH près de la neutralité et des taux de réaction plus lents soient maintenus, sans jamais atteindre des pH acides (Moses et Herman, 1991; Pettit, Scharer, Chambers, Halbert, Kirkaldy et al., 1999).

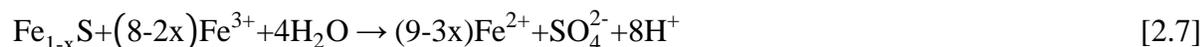
Des taux d'oxydation de la pyrite pure ont été répertoriés entre $6 \cdot 10^{-4}$ et $3 \cdot 10^{-2}$ mol/m²/an (McKibben et Barnes, 1986; Nicholson, Gillham et Reardon, 1988; Moses et Herman, 1991; Williamson et Rimstidt, 1994; Salmon et Malström, 2006). Les énergies d'activation de cette réaction ont aussi été évaluées par quelques auteurs. Selon certains, ils varient autour de 50 kJ/mol à pH 2 et de 4 à 92 kJ/mol à pH 6, indépendamment de l'agent oxydant (Nicholson et al., 1988; Nicholson et Scharer, 1994; Williamson et Rimstidt, 1994). D'autres ont rapporté des valeurs de 50-80 kJ/mol (Williamson et Rimstidt, 1994) et de 88 kJ/mol (Nicholson et al., 1988). La réaction d'oxydation de la pyrite est exothermique et libère $2,25 \cdot 10^7$ J/kg (Meldrum, 1998).

Pyrrhotite

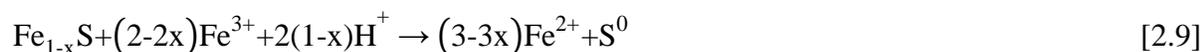
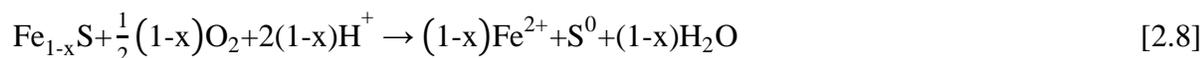
La pyrrhotite ($Fe_{1-x}S$, où $0 < x < 0,125$ selon la forme cristalline) est un sulfure qui, selon des observations sur le terrain, s'oxyderait de 1 à 100 fois plus rapidement que la pyrite. La variation du rapport Fe:S pour les différentes formes cristallines existe en raison de vides localisés de manière ordonnée dans le réseau moléculaire du fer (Belzile, Chen, Cai et Li, 2004). Le fer est présent dans ce minéral sous deux états de valence différents (Fe^{2+} et Fe^{3+}) (Nicholson et Scharer, 1994; Elberling et Nicholson, 1996). La forme cristalline du minéral peut aussi avoir un effet sur les taux d'oxydation (Nicholson et Scharer, 1994).

L'oxydation de la pyrrhotite qui réagit avec l'oxygène est présentée sous forme générale à l'équation 2.5 et pour la forme monoclinique du minéral (où $x = 0,125$) à l'équation 2.6. Le Fe^{2+} produit par ces réactions peut ensuite réagir selon des mécanismes présentés précédemment à l'équation 2.2 et se transformer en Fe^{3+} qui peut oxyder la pyrrhotite (équation 2.7).





L'oxydation avec l'oxygène et le Fe^{3+} peut parfois être incomplète et générer du soufre élémentaire, comme présenté dans les équations 2.8 et 2.9. Dans ce cas, le soufre natif produit peut être oxydé par des bactéries et produire de l'acide sulfurique tel que montré à l'équation 2.10.



D'autres réactions impliquant la pyrrhotite sont aussi retrouvées dans la littérature pour différents types d'oxydants et différentes conditions, telles la réactivité rapide à pH acide produisant du Fe^{2+} et du H_2S , la réaction plus lente de dissolution oxydative, l'oxydation biologique (Belzile et al., 2004) et l'oxydation électrochimique (Mikhlin, 2000).

Belzile (2004) a répertorié des taux d'oxydation de la pyrrhotite de $6 \cdot 10^{-3}$ à $2,2 \text{ mol/m}^2/\text{an}$. Des taux de $0,19$ à $0,44 \text{ mol/m}^2/\text{an}$ (6 à $14 \cdot 10^{-9} \text{ mol/m}^2/\text{s}$) ont été répertoriés à des pH entre 2 et 6 à 22°C par Nicholson et Scharer (1994). Plusieurs auteurs ont aussi étudié l'énergie d'activation de la réaction d'oxydation de la pyrrhotite. Nicholson et Scharer (1994) ont montré que celle-ci est dépendante du pH, qu'elle se situe pour des réactions abiotiques (chimiques, effectuées sans la contribution de microorganismes) entre 52 et 58 kJ/mol pour un pH 2 à 4 et que cette valeur est presque doublée à un pH de 6 ($\sim 100 \text{ kJ/mol}$). L'énergie d'activation de la réaction biotique (générée avec l'aide de microorganismes) a aussi été étudiée et se situe à environ 13 kJ/mol (Kwong, 1995; Blowes et al., 2007). À pH 2,75, basée sur la lixiviation du fer, l'énergie d'activation se situerait entre 48 et 63 kJ/mol, mais elle se tiendrait entre 79 et 124 kJ/mol si l'on se base sur la lixiviation de sulfates (Janzen, 1996; Janzen, Nicholson et Scharer, 2000). L'oxydation de la pyrrhotite libère $8,9 \cdot 10^6 \text{ J/kg}$, soit environ deux fois moins de chaleur que la pyrite par unité de masse (Meldrum, 1998).

L'influence de la température sur les valeurs des taux de production de S par de la pyrrhotite pure ayant une surface spécifique de $1,2 \text{ m}^2/\text{g}$, soit semblable à celle des matériaux des mini-cellules d'altération, et d'une énergie d'activation de $52,4 \text{ kJ/mol}$ est illustrée à la Figure 2-2. Les taux correspondants pour une énergie d'activation de 60 kJ/mol sont aussi illustrés à des fins de comparaison.

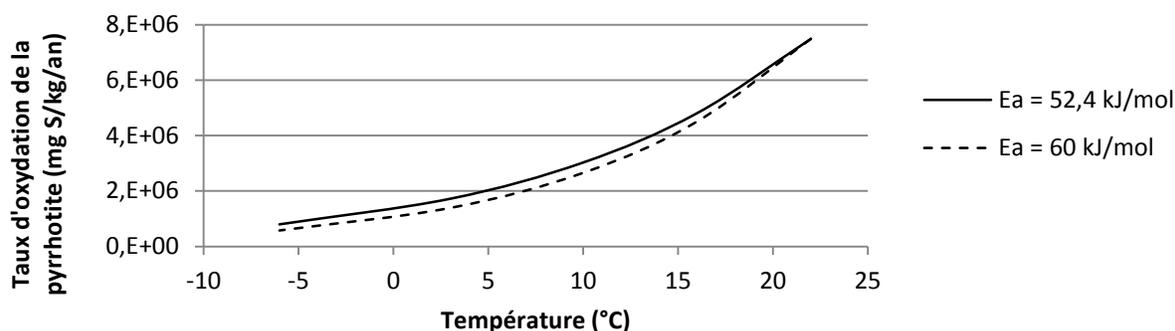


Figure 2-2: Taux de génération de S en fonction de la température produit par l'oxydation de la pyrrhotite pure pour une surface spécifique de $1,2 \text{ m}^2/\text{g}$ et d'énergies d'activation de 60 et $52,4 \text{ kJ/mol}$ (Nicholson et Scharer, 1994; Belzile et al., 2004)

Chalcopyrite

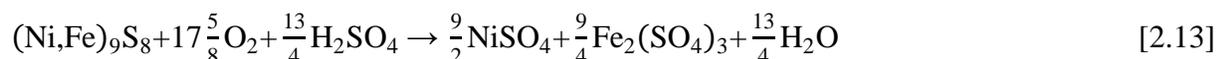
La chalcopyrite (CuFeS_2) peut être oxydée par l'oxygène et par le fer ferrique selon les équations 2.11 et 2.12.



La réactivité de la chalcopyrite peut aussi être fortement influencée par les effets galvaniques créés par le contact avec un autre minéral. La présence de pyrite et de molybdénite peut accélérer son taux d'oxydation, tandis que la galène et la sphalérite le font diminuer (Blowes et al., 2007). Une énergie d'activation de 73 kJ/mol a été mesurée entre 4 et 37 °C pour ce minéral présent dans un minerai polymétallique (Ahonen et Tuovinen, 1992).

Pentlandite

L'oxydation de la pentlandite $(\text{Ni, Fe})_9\text{S}_8$ peut s'effectuer selon l'équation 2.13 où l'oxygène est l'oxydant (Aubertin et al., 2002; Kodali, Rao M, Narasu M et Pogaku, 2004). On remarque qu'il n'y a pas production d'acidité dans cette équation.



En réagissant avec un sulfate de fer, la pentlandite peut aussi former du soufre natif selon l'équation 2.14, qui pourra réagir à son tour et produire de l'acidité (voir équation 2.10). Peu de données sont disponibles quant aux taux de réaction et à l'énergie d'activation de ce minéral.



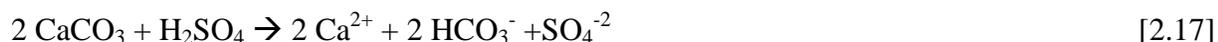
Violarite

La violarite $(\text{FeNi}_2\text{S}_4)$ est un minéral pouvant, dans la formation de Raglan, être une phase supergène (située près de la surface du sol et influencée par les eaux souterraines descendantes). Il peut s'oxyder avec l'oxygène selon l'équation 2.15 ou avec le fer selon l'équation 2.16 en produisant de l'acidité (Watling, 2008). Peu de données sont disponibles sur les taux de réaction et l'énergie d'activation de la violarite.



Processus de dissolution de certains minéraux neutralisants

Certains minéraux possèdent un potentiel à neutraliser l'acidité produit dans leur milieu environnant. Les principaux minéraux neutralisants sont les carbonates, tel que la calcite dont la réaction de neutralisation est présentée à l'équation 2.17 (Hedin, Nairn et Kleinmann, 1994).



Comme les stériles à l'étude contiennent peu de carbonates (voir le Chapitre 3), les réactions de neutralisation reliées à cette famille de minéraux ne seront pas décrites davantage ici. Le lecteur intéressé à ce sujet est invité à consulter les références suivantes (Sjöberg, 1976; Blowes et Ptacek, 1994; Liu, Yuan et Dreybrodt, 2005; Pokrovsky, Golubev et Schott, 2005).

Outre les carbonates, il existe d'autres minéraux dits acidivores parce qu'ils peuvent neutraliser l'acidité. Ces derniers ont un potentiel de neutralisation moindre que celui des carbonates. On retrouve entre autres les oxydes, oxyhydroxydes et hydroxydes de Fe et Al et les silicates (Lawrence et Scheske, 1997; Jambor, Dutrizac et Raudsepp, 2007). Dans cette dernière famille, on retrouve notamment la chlorite, la serpentine et le talc (minéraux que l'on retrouve dans des proportions significatives dans les stériles à l'étude). La dissolution du clinochlore, qui est une chlorite commune, est présentée à l'équation 2.18 où l'on remarque qu'une mole de clinochlore neutralise 8 moles d'acide sulfurique.



Les premiers stades de la dissolution du clinochlore peuvent cependant s'effectuer de manière non stœchiométrique, via la formation et l'épaississement d'une couche riche en silicium à sa surface en raison de la plus faible lixiviation de celui-ci par rapport au magnésium. Le développement d'une zone amorphe d'une épaisseur de 20 à 50 nm ayant une concentration en magnésium de plus en plus faible et un enrichissement en silicium vers l'extérieur du grain a d'ailleurs déjà été observé à pH 3 sur la surface de chlorite altérée (Kameda, Sugimori et Murakami, 2009). Les processus de dissolution de la lizardite ($\text{Mg}_3\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$), de la famille de la serpentine, débutent avec un transfert de Mg^{2+} de la surface du minéral avec des ions H^+ ; cette réaction peut ne pas être stœchiométrique dans les premiers stades. Subséquemment, l'extraction de Mg et de Si du réseau cristallin se produit en même temps que se poursuit l'échange avec les ions H^+ (Luce, Bartlett et Parks, 1972; Heikkinen et Räsänen, 2008). Des observations de la neutralisation de l'acidité par le talc ($\text{Mg}_3\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$) de manière stœchiométrique ou près de la stœchiométrie ont déjà été effectuées à des pH entre 1 et 10,6. Un schéma simple de son mécanisme principal de dissolution est montré à la Figure 2-3 (Saldi, Köhler, Marty et Oelkers, 2007), où sont illustrés les liens Mg-O octaédriques et les liens Si-O tétraédriques. Deux protons sont d'abord échangés contre un atome de Mg à la surface du minéral, suivi de la libération d'un atome de Si.

On retient donc que la dissolution des silicates peut parfois s'effectuer de manière non stœchiométrique avec leur formule chimique et que les potentiels de neutralisation et les taux de réaction des minéraux de cette famille sont plus faibles que ceux des carbonates.

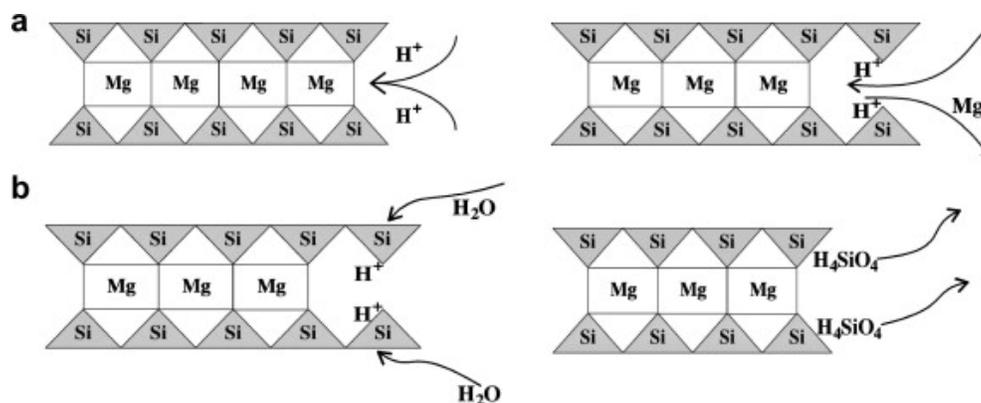


Figure 2-3: Schéma du mécanisme de la dissolution du talc mécanisme qui consiste en (a) l'échange d'atomes de Mg avec 2 protons en surface, suivi de (b) la libération de Si (Saldi et al., 2007)

2.1.2 Géochimie du nickel en conditions de DNC

Ce projet de maîtrise porte sur le cas particulier d'une contamination potentielle à pH neutre par le nickel. Les paragraphes suivants présentent certaines caractéristiques de cet élément qui pourront être prises en considération dans l'évaluation du comportement géochimique des stériles de la mine Raglan.

Le nickel est un métal de transition dont la forme ionique et ses complexes les plus stables sont sous la forme Ni^{2+} et qui est généralement présent dans l'environnement en très faible concentration. Le rejet de nickel dans l'environnement est contrôlé par la réglementation pour différentes raisons. Entre autres, les composés du nickel (n'incluant pas le nickel sous forme métallique et en alliage) sont considérés cancérigènes pour l'être humain par le Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC, 2010). Sa présence peut aussi être toxique pour les plantes et les animaux : la concentration létale pour la moitié de la population de six espèces de poissons (LC_{50}) sur une durée de 96 heures varie de 6,2 à 46,2 mg/L; pour les daphnies magna, elle est de 0,32 mg/L sur une durée de 64 heures (Gangolli, 2005).

Le nickel est présent dans l'environnement sous forme de sulfures, d'arséniures, d'oxydes et de silicates. Celui-ci peut atteindre les eaux de surface de différentes manières : sous forme particulière transportée par les eaux de pluie, par la dissolution de minéraux de la roche primaire ou de phases secondaires du sol (Gangolli, 2005). La contamination de l'eau en nickel par des rejets miniers peut provenir de sa solubilisation suite à l'oxydation de sulfures de nickel, par

exemple la pentlandite ((Ni,Fe)₈S₉), la millérite (NiS) et la violarite (FeNi₂S₄) (Aubertin et al., 2002)) ainsi que de sulfures tels la pyrite et la pyrrhotite qui peuvent contenir du nickel en impureté (Rinker et al., 2003; Abraitis et al., 2004; Pépin, 2009). Selon Rinker (2003), la pyrrhotite peut contenir un pourcentage massique maximal de nickel d'environ 1%.

Les eaux rejetées à l'environnement par les compagnies minières sont soumises à des normes de rejet environnementales. Parmi celles-ci, les concentrations en nickel sont régulées par le Règlement sur les Effluents de Mines de Métaux (REMM) au Canada (Ministère de la Justice, 2010) et la Directive 019 de la Loi sur la Qualité de l'Environnement au Québec (MDDEP, 2005). Les concentrations maximales légales de nickel dans les eaux rejetées à l'environnement par les industries minières sont de 0,5 mg/L pour un échantillon instantané et de 1 mg/L pour la moyenne mensuelle des échantillons.

Dans l'environnement, les concentrations en nickel dissous dans l'eau peuvent être réduites naturellement par deux phénomènes principaux qui sont fonction du pH. D'abord, des pH supérieurs à 8 entraînent une précipitation importante d'hydroxydes de nickel (Ni(OH)₂). Celle-ci devient cependant négligeable à des pH inférieurs à 7,5 (Rinker et al., 2003). Cette réaction est représentée par l'équation 2.19 et présente une constante de solubilité de $1,58 \cdot 10^{-11}$ (Allison, Brown et Novo-Grada, 1991).

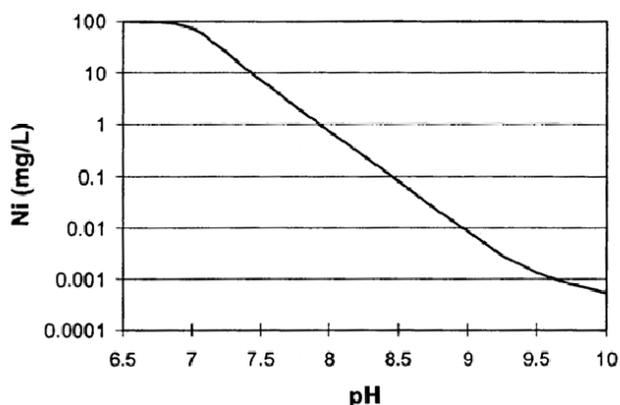
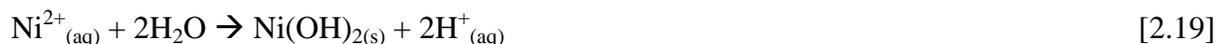


Figure 2-4: Concentration de nickel en solution (Ni²⁺) en fonction du pH, basée sur la précipitation de Ni(OH)₂ d'une solution contenant 100 mg/L de Ni (Nicholson, 2004).

La variation de la solubilité du nickel selon la précipitation du $\text{Ni}(\text{OH})_2$ est représentée graphiquement à la Figure 2-4; dans cet exemple, la concentration initiale est de 100 mg Ni/L. On remarque qu'à un pH de 8, la concentration de Ni^{2+} est de 0,3 mg/L, tandis qu'elle se trouve sous 0,03 mg/L à un pH de 8,5.

La stabilité du nickel est montrée d'une autre façon à la Figure 2-5 où l'on observe les phases à l'équilibre du nickel d'une solution de DNC comprenant 10 mg/L de Ni et de SO_4^{2-} . On remarque que la phase dominante à un pH inférieur à 8,1 est le Ni^{2+} , tandis qu'un oxyde de nickel (la bunsénite, de formule NiO) domine à des pH supérieurs à 8,1.

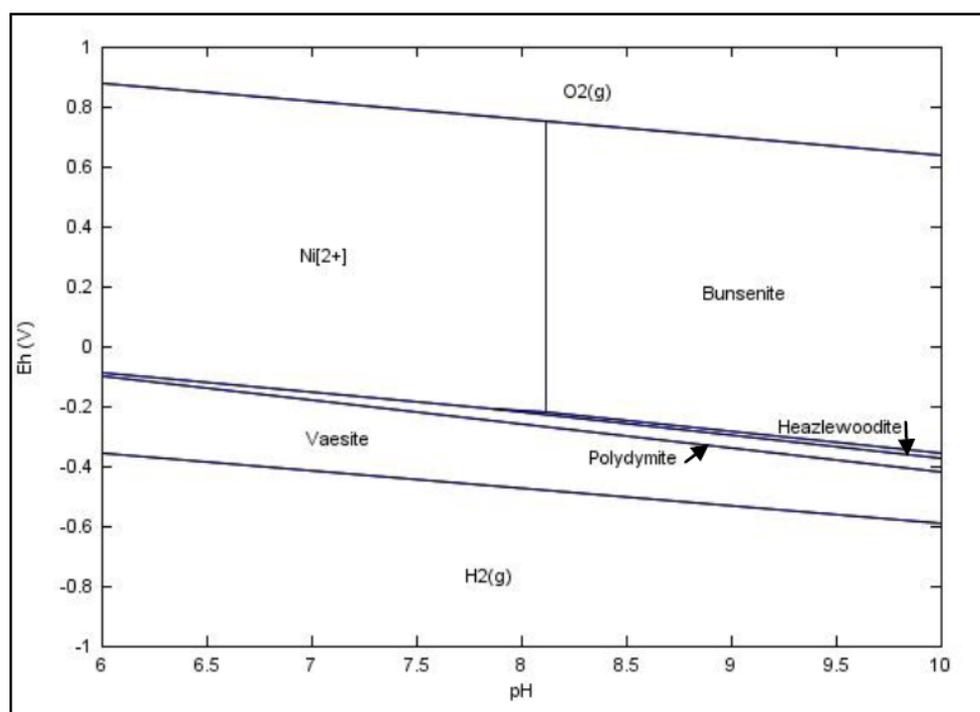


Figure 2-5: Diagramme Eh-pH (aussi appelé diagramme de Pourbaix) des espèces de Ni d'une solution contenant 10 mg/L de Ni et de SO_4 à 25°C (Plante, 2010).

La sorption est un autre phénomène pouvant contribuer à une diminution de la concentration de nickel dans l'eau, particulièrement à des pH inférieurs à ceux qui contrôlent sa solubilité, soit inférieurs à 8 (Langmuir, Mahoney, MacDonald et Rowson, 1999; Rinker et al., 2003; Gupta et Bhattacharyya, 2006; Plante, 2010). Le nickel sous forme ionique (Ni^{2+} ou sous toute autre forme de complexe chargé positivement) peut s'adsorber aux surfaces chargées négativement, c'est-à-dire pour lesquelles le pH sera supérieur au pH de point de charge nulle (Stantec, 2004). Au pH de point de charge nulle, les conditions sont telles que les densités d'adsorption des ions

déterminant le potentiel électrique de la surface (H^+ et OH^-) sont égales. Il est à noter que plusieurs facteurs influencent le potentiel de sorption d'un ion sur une surface, tels le pH (où à pH trop acide les ions H_3O^+ peuvent occuper les sites de sorption), la nature et la concentration du minéral sur lequel l'ion métallique est adsorbé, la température, la concentration de l'ion sorbé, le temps de contact, la présence d'ions ou de ligands compétiteurs ou complexant, la force ionique, etc. (Tewari et Campbell, 1976; Angove, Johnson et Wells, 1998; Atanassova, 1999). Il a d'ailleurs déjà été déterminé que la sorption du nickel augmente avec le pH.

La sorption du nickel sur différents minéraux a été approfondie par plusieurs auteurs. Sa sorption sous la forme de $Ni(OH)_2$ a notamment été observée et différents mécanismes ont été proposés pour l'expliquer (Ford, Scheinost, Scheckel et Sparks, 1999; Plante, 2010). Les équations 2.20 à 2.22 montrent les différentes étapes du mécanisme de sorption du Ni^{2+} menant à la sorption du $Ni(OH)_2$, où $=S$ représente un site de sorption (James et MacNaughton, 1977). Celui-ci se rattache au site de sorption et est ensuite rejoint par deux ions hydroxydes qui libèrent deux protons.



Des mécanismes différents impliquant la formation d'hydroxydes de nickel sont aussi suggérés par Echeverria et al. (2003), Sharma et al. (2009) et Bradbury et Baeyens (2009). Avec le temps et la présence d'Al en solution, la forme sorbée $Ni(OH)_2$ tend à se transformer en hydroxydes doubles lamellaires (HDL) de Ni-Al, qui se transformeraient par la suite sous forme plus stable de Ni-phyllosilicate (Ford et al., 1999; Scheckel, Scheinost, Ford et Sparks, 2000; Scheckel et Sparks, 2001a, b; Plante, 2010). Il a été démontré que les hydroxydes doubles lamellaires de Ni-Al sont d'ailleurs favorisées à la formation d'hydroxydes de Ni avec la présence d'un sorbant générant de l'Al en solution à des pH près de la neutralité (Scheinost, Ford et Sparks, 1999; Peltier, Allada, Navrotsky et Sparks, 2006). Une étude a aussi montré la rétention sur un sable de 99% du Ni d'une eau contenant 2 ppm de Ni à pH 7,5, dont 66% par la formation d'HDL de type Ni-Al et 34% par une sorption autre. Ce sable a par la suite été soumis à un pH de 6,5 où le nickel lixivié proviendrait en majeure partie de ce dernier phénomène (Regelink et Temminghoff, 2011).

Le nickel peut aussi se sorber sur les hydroxydes de fer qui recouvrent les surfaces des roches lorsqu'une oxydation des sulfures de fer se produit et forme du $\text{Fe}(\text{OH})_3$ dont la solubilité est faible (ce composé précipite à des pH supérieurs à 3,5) (Langmuir, 1997; Nicholson et Rinker, 2000). La sorption s'effectue selon l'équation 2.23 qui est dépendante du pH et produit une mole d' H^+ par mole de nickel (Me^{2+} y représente le métal adsorbé).



2.2 Effet de la température sur le comportement géochimique des rejets miniers

Dans les régions nordiques, l'oxydation des sulfures est souvent considérée limitée par les basses températures qui règnent la plupart des mois de l'année. Ainsi, la contamination est principalement générée durant l'été (Elberling, Søndergaard, Jensen, Schmidt, Hansen et al., 2007). Comme les matériaux étudiés dans ce mémoire proviennent de la mine Raglan qui est située en région de pergélisol continu (Fortier, 2006), la connaissance de l'impact de la température sur les phénomènes géochimiques se produisant dans les stériles miniers est importante. Les prochains paragraphes présentent une revue des facteurs influençant la qualité de l'eau contaminée par l'oxydation des sulfures en fonction de la température. Des méthodes servant à estimer et à extrapoler les taux d'oxydation des sulfures à différentes températures sont aussi présentées.

2.2.1 Facteurs influençant la qualité de l'eau et la production de contaminants générés par des rejets miniers en conditions froides

Dans les rejets miniers entreposés sur les sites nordiques, plusieurs phénomènes peuvent être influencés par les basses températures, que ce soit de manière directe ou indirecte. Ces modifications de comportement peuvent modifier la qualité de l'eau qui s'écoule dans les rejets (NEDEM, 2006). Les taux de réaction des minéraux libérant des contaminants sont fonction de la température et de la disponibilité des réactifs. Les solutés présents dans l'eau peuvent faire diminuer son point de congélation et favoriser la réactivité à des températures inférieures à 0°C . De plus, une concentration des contaminants de l'eau peut aussi survenir lorsque le point de congélation est atteint. La température influence l'activité bactérienne qui peut à son tour influencer les taux d'oxydation de manière significative. Enfin, la solubilité des espèces en

solution, les taux de sorption des contaminants et les changements physiques peuvent également être dépendants de la température.

Taux de réactivité et disponibilité des réactifs

Le facteur d'influence lié à la température le plus évident et souvent le plus direct est la baisse du taux d'oxydation des sulfures avec celle-ci, comme il sera montré quantitativement dans la section 2.2.2. Les différences du taux d'oxydation d'un sulfure peuvent toutefois être difficiles à mesurer à différentes températures en raison d'autres facteurs aussi influencés par celles-ci. Par exemple, la baisse de température sur des rejets miniers générateurs d'acidité ralentit leur taux d'oxydation et peut aussi se traduire par une baisse du pH moins sévère de l'eau interstitielle. Ce pH plus élevé engendre dans certains cas une plus faible solubilité du fer ferrique ce qui empêche son action comme réactif de la réaction d'oxydation (NEDEM, 2006). La diffusion de l'oxygène dans l'eau peut aussi être un phénomène important pour assurer sa disponibilité pour l'oxydation des sulfures. D'une part, une augmentation de la diffusion de l'oxygène dans l'eau est remarquée avec la température, quoique d'une manière moins prononcée que pour la cinétique de la réaction d'oxydation (Nicholson et al., 1988). D'une autre part, la solubilité de l'oxygène dans l'eau est plus grande à faible température. Elle augmente d'un facteur de 1,4 entre 15 et 0°C, tandis que la diffusion de l'oxygène dans l'eau augmente d'un facteur de 1,6 de 0 à 15°C. La baisse de diffusivité de l'oxygène dans l'eau a alors un plus grand impact que l'augmentation de la solubilité à plus faibles températures. De plus, une réduction de 90% du flux d'oxygène a été mesurée dans un sable saturé lorsque la température passe de 15 à 2°C, ce qui suggère qu'une déposition subaquatique de rejets miniers serait plus efficace à basse température (Elberling, 2001b).

Le gel est un autre phénomène qui contribue aussi largement à la baisse de la réactivité des sulfures sur les sites miniers situés en climat nordique. Celui-ci peut limiter le transport et l'apport d'oxygène et d'eau aux rejets miniers, surtout s'ils sont intégrés au pergélisol. Dans les régions pergélisolées, une certaine couche en surface du sol dégèle chaque été : la zone active. Celle-ci permet l'infiltration d'eau et d'oxygène atmosphérique dans le sol en surface, initiant l'oxydation des sulfures dans cette zone dégélée des rejets miniers. L'oxydation des sulfures dans la zone active peut être la cause de la présence de drainage minier acide sur certains sites situés dans l'Arctique (Dawson et Morin, 1996). Le dégel en surface dans la zone active permet

alors la fonte de la glace, la libération des métaux et leur transport dans les bassins versants jusqu'aux environnements marins (Elberling, 2001b).

Peu d'information peut être trouvée au sujet de la réactivité relative des minéraux neutralisants (NEDEM, 2006), quoique leurs taux de réaction seraient affectés par la température similairement à ceux des sulfures (Langmuir, 1997). La dissolution des silicates respecte la loi d'Arrhénius (voir section 2.2.2) et leur énergie d'activation se trouve généralement entre 50 et 120 kJ/mol (Casey et Sposito, 1992; White, Blum, Bullen, Vivit, Schulz et al., 1999). Des effets sur leur réactivité liés à des facteurs indirects sont discutés dans les points suivants.

Baisse du point de congélation de l'eau et cryoconcentration

Le gel de l'eau dans les sites miniers peut limiter la production et le transport des contaminants. On croit généralement que celui-ci se produit à 0°C, ce qui n'est pas toujours le cas. En effet, la température de congélation de l'eau interstitielle dans les rejets miniers peut être diminuée si elle contient une quantité considérable de solutés, facilitant les processus biogéochimiques. La présence d'eau non gelée à des températures inférieures à 0°C peut avoir un impact significatif sur la contamination dans les rejets miniers; plusieurs études montrent que les mécanismes d'oxydation des sulfures sont encore actifs à des températures sous 0°C, lorsque les rejets sulfureux sont en présence d'eau non gelée et d'oxygène (Elberling, 2001b; Godwaldt, 2001). Cette diminution contribue aussi à augmenter le transport de la contamination qui se trouve dans le cas idéal limité par le gel et la formation de glace (Elberling, 2001b).

Un exemple de la baisse du point de congélation dans des résidus miniers est celui des résidus de la mine Nanisivik (73°N, Nunavut, Canada). Leur pourcentage d'eau interstitielle non gelée est présenté à la Figure 2-6. Les données sont montrées entre 0 et -10°C pour deux profondeurs de sols selon des mesures de réflectométrie dans le domaine du temps (RDT) et une simulation à partir du modèle FREZCHEM (Mironenko, Grant, Marion et Farren, 1997). On remarque qu'à 20 cm de profondeur, environ 20% du contenu en eau est non gelé à -2°C. Le gel total n'est atteint qu'à -10°C selon la simulation, tandis que les mesures montrent quant à elles encore quelques pourcentages d'eau encore non gelée à cette température.

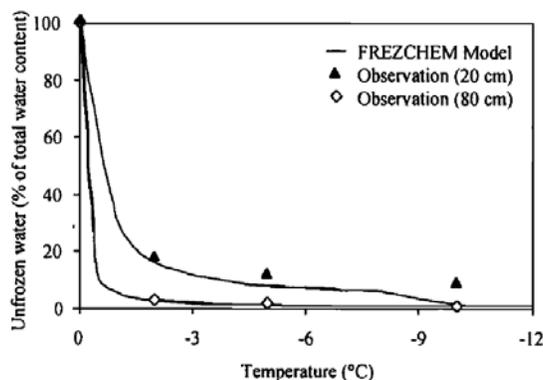


Figure 2-6: Contenu en eau non gelée dans des résidus de la mine Nanisivik d'une zone oxydée en surface (20 cm) et d'une zone plus profonde (80 cm) obtenus expérimentalement et par une modélisation (Elberling, 2001b)

La baisse du point de congélation de l'eau interstitielle dans les résidus de la mine Raglan a aussi été évaluée (Biglari et Nicholson, 2008). Dans les résidus frais, cette eau contient 28 g/L en salinité ou en solides dissous totaux. Des sondes RDT ont été utilisées pour mesurer la teneur en eau non gelée selon une baisse de la température jusqu'à un contenu inférieur à 15% en eau non gelée. Ce faible contenu est ciblé *in situ* afin de réduire la perméabilité des résidus et ainsi maintenir immobilisée la fraction d'eau interstitielle persistante sous forme liquide afin d'éviter son drainage hors des résidus. Le point de congélation de l'eau de procédé en l'absence des résidus est de $-0,7^{\circ}\text{C}$, et des températures entre $-1,3$ et $-3,4^{\circ}\text{C}$ sont nécessaires pour amener le pourcentage d'eau interstitielle des résidus sous forme liquide entre 10 et 15%. Toutefois, si la salinité de l'eau interstitielle augmente en raison de variations dans le procédé ou de l'oxydation des sulfures, des températures plus basses pourraient être requises pour atteindre le même contenu en eau non gelée. Par exemple, si la salinité augmente à 80 g/L, la température à atteindre varierait entre -5 et $-7,6^{\circ}\text{C}$.

En plus de la baisse du point de congélation, un autre phénomène peut apparaître près du point de congélation lorsque la concentration en solutés dans l'eau est significative. Lorsque la glace commence à se former, celle-ci a tendance à contenir une concentration d'ions moindre que celle de l'eau en présence. Ce phénomène s'appelle la cryoconcentration et peut avoir un impact significatif sur la qualité de l'eau en augmentant la concentration des contaminants dissous dans l'eau non gelée. La concentration des ions augmente ainsi dans l'eau encore présente sous phase liquide, augmentant la nature acide ou alcaline et les concentrations en métaux et en sulfates des

effluents (INAP, 2009). Toutefois, lors du refroidissement, la limite de saturation (donc la concentration maximale en solution) de certaines espèces peut être atteinte dans la phase liquide, stoppant la cryoconcentration de ces espèces. Par exemple, la formation de gypse peut limiter les concentrations de calcium et de sulfates dans l'eau. Ainsi, au point de saturation, la cryoconcentration ne peut plus survenir et abaisser davantage la température de congélation de l'eau. C'est aussi le cas pour les eaux riches en carbonates de calcium, de magnésium et de plusieurs métaux lourds. Par contre, les limites de saturation des chlorures, du magnésium, du potassium, du sodium, du fer, du cadmium, du zinc et du nickel sont relativement élevées (NEDEM, 2006). Godwaldt et al. (1999) et Elberling (2001b) ont évalué que la concentration des solutés au front de congélation pourrait atteindre jusqu'à 80 fois leur concentration d'origine, selon la vitesse de diminution de la température. Pour une baisse de la température inférieure à 0,1°C/j, plus de 90% des solutés peuvent être rejetés des pores de la glace (Godwaldt et al., 1999).

Activité bactérienne

Plus d'une douzaine d'espèces de bactéries sont impliquées dans la catalyse des réactions d'oxydation des sulfures et leur présence varie notamment selon le pH et l'humidité en présence. Il est aussi reconnu que l'activité des bactéries impliquées dans ces processus diminue avec la température (Ahonen et Tuovinen, 1992; NEDEM, 1996). Un paramètre clé assurant la présence de microorganismes viables à de basses températures est la présence d'eau sous forme liquide qui peut être possible sous 0°C, tel que montré dans le point précédent (Elberling, 2005; Escobar, Buccicardi, Morales et Wiertz, 2010). Le nombre d'études portant sur la présence et l'activité de bactéries agissant dans des environnements miniers froids sont toutefois encore limitées à ce jour (Elberling, 2005; Kupka, Liljeqvist, Nurmi, Puhakka, Tuovinen et al., 2009).

Quelques travaux ont étudié l'effet de la température sur l'apport bactérien par rapport à l'apport de l'activité chimique dans l'oxydation des sulfures. La Figure 2-7 suivante montre un schéma simple de ce que pourrait être la proportion du taux d'oxydation biologique par rapport au taux maximum à 35°C avec la présence de bactéries mésophiles (dont le taux de croissance maximal se situe à environ 35°C) et thermophiles (dont le taux de croissance maximal se situe à plus de 50°C) par rapport au taux d'oxydation chimique selon la température. On y remarque qu'une diminution de la température résulte en une importante diminution du taux d'oxydation des

sulfures. L'oxydation chimique de l'oxygène à température ambiante est très faible et la présence de microorganismes oxydant le fer et le soufre accroît significativement ce taux (Escobar et al., 2010).

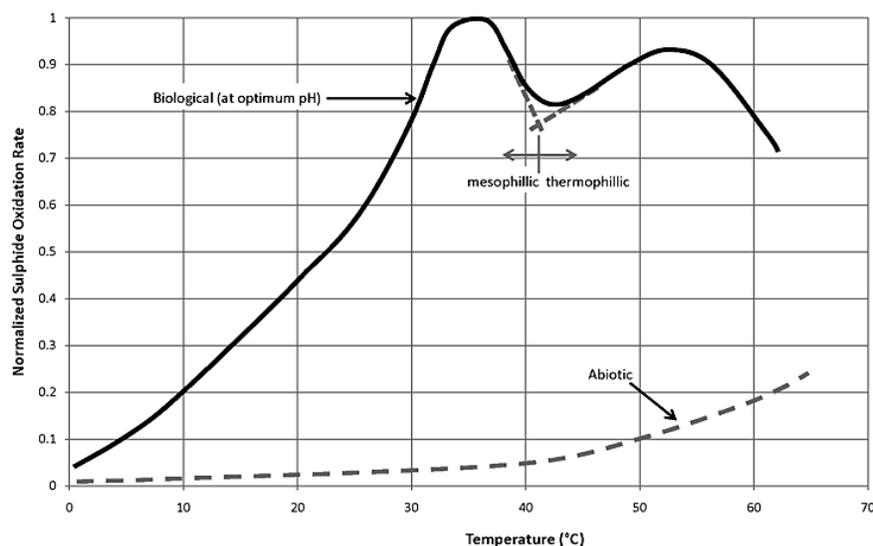


Figure 2-7: Illustration schématique de l'effet de la température sur les taux d'oxydation des sulfures normalisés (INAP, 2009, d'après Robertson et Broughton, 1992).

En ajout, quelques études ont montré qu'il existe des bactéries psychrophiles dans les rejets miniers (Ahonen et Tuovinen, 1989). Celles-ci sont adaptées au froid ; leur température de croissance maximale est inférieure à 15°C selon Elberling (2001a) ou 20°C selon Berthelot et al. (1994) et elles peuvent être actives sous 0°C. On parle aussi de bactéries psychrotolérantes ou psychrotrophes qui sont actives sous 0°C et dont la température maximale de croissance est supérieure à 15°C ou 20°C. Celles-ci sont surtout observées sur les sites où une température inférieure à 10°C persiste la majorité de l'année (Ferroni, Leduc et Todd, 1986). On peut observer l'effet de cette adaptation à la Figure 2-8, qui montre les taux d'oxydation relatifs par des bactéries échantillonnées sur un site arctique et tempéré. On remarque que les bactéries des milieux arctiques sont efficaces à de plus faibles températures.

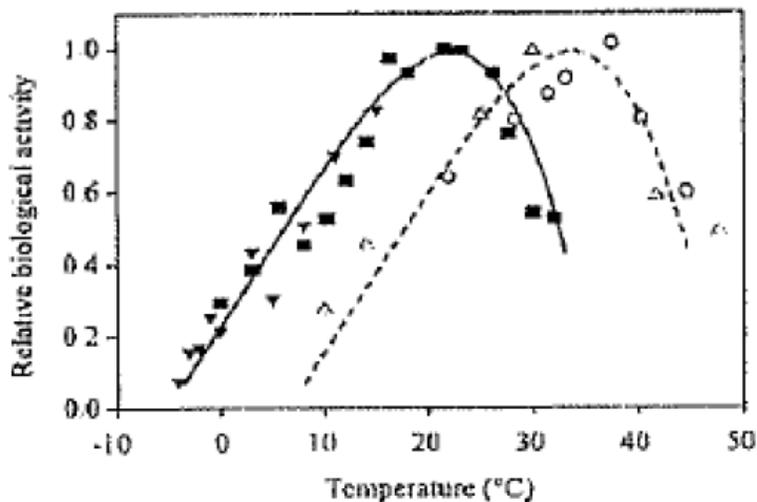


Figure 2-8: Variation des taux d'oxydation biologiques relatifs de la pyrite provenant de climats tempérés (symboles blancs) et arctiques (symboles noirs) (Elberling, 2001a)

Des souches psychrophiles et mésophiles de *T. ferrooxidans* et de bactéries acidophiles hétérotrophes ont déjà été isolées à partir de DMA (Ferroni et al., 1986; Leduc, Trevors et Ferroni, 1993; Berthelot et al., 1994). Plusieurs colonies psychotrophes de *T. ferrooxidans* ont été identifiées sur des sites nordiques et tempérés (Ferroni et al., 1986; Berthelot, Leduc et Ferroni, 1993; Leduc et al., 2002; Kupka et al., 2009). D'autres études montrent la présence de bactéries psychrophiles sur des sites miniers arctiques (Kalin, 1987), de bactéries de type *Thiobacillus ferrooxidans* présentes dans des résidus miniers sur l'Île de Baffin au Canada (73°N) (Elberling, Schippers et Sand, 2000) dont l'activité a été mesurée jusqu'à des températures de -4°C (Elberling, 2001b) et aussi des populations de bactéries oxydant le fer et dominées par *Thiobacillus ferrooxidans* dans du minerai naturellement exposé aux conditions atmosphériques au nord du Groenland (83°N) (Langdahl et Ingvorsen, 1997).

Solubilité des ions

La solubilité des ions est dépendante des conditions d'équilibre thermodynamique et diminue généralement avec une baisse de la température. Il est alors important de considérer la température lorsque la solubilité est calculée à partir de modèles thermodynamiques. Par exemple, des calculs thermodynamiques ont montré que la solubilité du gypse (FeSO_4) est de 1275 mg/L à 5°C et de 1354 mg/L à 20°C. Toutefois, l'effet contraire a été constaté pour les carbonates qui présentent une augmentation de leur solubilité avec une baisse de la température.

La présence des produits de dissolution des carbonates a pour effet d'accroître la solubilité de certains métaux (ex. : zinc et cadmium). Une lixiviation de zinc accrue a d'ailleurs déjà été observée en ce sens lors d'essais à des températures plus froides (NEDEM, 2006).

Les solubilités de la calcite et de la dolomite peuvent être exprimées selon les équations 2.24 et 2.25 en réagissant avec l'acide carbonique (H_2CO_3) formé par la mise en solution du dioxyde de carbone atmosphérique dans l'eau.

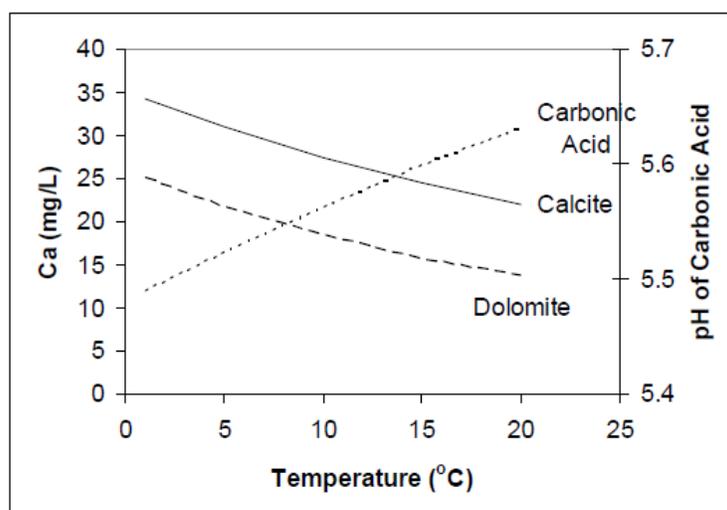


Figure 2-9: Solubilités théoriques de la calcite et de la dolomite et pH de l'acide carbonique en fonction de la température (pression partielle de $\text{CO}_2 = 10^{-3,5}$ atm) (NEDEM, 2006)

À plus faible température, les taux de dissolution de la calcite et de la dolomite sont inférieurs à ceux prédits par la loi d'Arrhénius (voir section 2.2.2), mais de plus grandes quantités de leurs produits de réaction doivent être générées pour que les systèmes soient à l'équilibre. Cet équilibre a été évalué thermodynamiquement avec le logiciel MINTEQA2 (Allison et al., 1991) et est présenté à la Figure 2-9. On remarque une augmentation de 1,4 et de 1,6 fois de la solubilité de la calcite et de la dolomite lorsque la température passe de 20 à 4°C. La réactivité des silicates est quant à elle plus complexe en raison des produits de réaction qui demeurent à la surface du minéral et inhibent l'altération. Par contre, il n'est pas exclu que la présence de

conditions plus acides en raison du dioxyde de carbone dissous puisse contribuer à leur altération plus rapide (NEDEM, 2006).

Un autre exemple est l'observation d'une lixiviation d'arsenic constante pour des essais à différentes températures sur des résidus de la mine Pogo contenant de l'arsénopyrite (FeAsS). Les taux de lixiviation à plus haute température devraient théoriquement être plus élevés. Or, la solubilité des minéraux secondaires contenant de l'arsenic est plus élevée à basses températures. Donc, cette étude n'a pas permis d'établir des conclusions claires concernant l'effet de la température sur l'oxydation de ces résidus. L'effet de la solubilité a eu un impact davantage significatif sur des stériles de la mine Red Dog. Ceux-ci contiennent de la sphalérite (ZnS) et ont lixivié plus de zinc à plus basse température qu'à température normale. Ce phénomène a aussi été remarqué pour les stériles de la mine Nanisivik, où la lixiviation de zinc était trois fois plus élevée à la température de réfrigération qu'à la température normale (NEDEM, 2006). Ces deux cas peuvent être expliqués par le fait que sous des conditions de pH neutre, les concentrations de certains métaux (incluant le cuivre, le manganèse, le nickel et le zinc) dans l'eau des rejets miniers est parfois contrôlée par la solubilité de leurs carbonates (Day et Howell, 2005). Par exemple, à pH 7, la solubilité d'un carbonate de zinc (la smithsonite (ZnCO_3)) est de 14 mgZn/L à 20°C et de 19 mgZn/L à 4°C. Donc, ces cas sont contraires au comportement prédits par la loi d'Arrhénius et pourraient être causés par une modification des conditions d'équilibre thermodynamiques (i.e. solubilité des minéraux).

Une étude préliminaire réalisée spécifiquement pour ce projet a aussi été réalisée avec le logiciel VMinteq (Felmy, Griven et Jenne, 1984) afin d'étudier l'effet de la température sur les conditions d'équilibre thermodynamique de lixiviats ayant percolé dans des rejets sulfureux contenant principalement de la pyrrhotite (Éthier, 2009). Les simulations ont été effectuées à 4 et 25°C pour deux échantillons d'eau typiques de DMA et de DNC (Aubertin et al., 2002). L'échantillon de DMA a un pH de 4,55 et une plus grande quantité de métaux en solution. Il contient aussi de plus grandes quantités de calcium, de magnésium, de silicium et de soufre. L'échantillon de DNC a un pH neutre (7,69) et contient des quantités relativement faibles de cuivre, de zinc, de calcium, de magnésium, de silicium et de soufre. L'indice de saturation de différents minéraux a été calculé et a permis d'évaluer si ceux-ci sont en condition de dissolution, d'équilibre ou de précipitation. Les résultats montrent que les principaux minéraux retrouvés sont des oxydes et oxyhydroxydes de cobalt, de fer et de cuivre, qui sont des minéraux secondaires souvent

retrouvés dans le DMA (Aubertin et al., 2002). Dans l'échantillon de DMA, on remarque que neuf composés sont en conditions favorables pour précipiter à 25°C et seulement sept à 4°C. Pour l'échantillon de DNC, en conditions près de la neutralité, on ne compte qu'un seul minéral en conditions favorables pour précipiter à 25°C qui se retrouve en équilibre à 4°C. Dans les résultats, on observe que la solubilité des oxydes et oxyhydroxydes de fer, de cobalt et de cuivre augmente avec une réduction de la température. Le nickel est quant à lui demeuré en solution à toutes les conditions étudiées. Donc, pour les deux lixiviats étudiés, une température plus froide de l'eau entraîne une augmentation de la solubilité de certains composés et pourrait avoir un impact sur la qualité de l'eau.

Sorption

La température, en plus de la concentration de l'espèce sorbée présente et le pH, a une influence sur les cinétiques de réactions impliquées dans les phénomènes de sorption (Limousin, Gaudet, Charlet, Szenknect, Barthès et al., 2007). Par exemple, les points de charge nulle d'oxydes et hydroxydes de cobalt et nickel diminuent avec une augmentation de la température (Tewari et Campbell, 1976). Des études ont aussi montré qu'une relation de type Arrhénius (équation 2.22) peut être applicable pour extrapoler les cinétiques de sorption à d'autres températures (Cornelissen, Van Noort, Parsons et Govers, 1997; Scheckel et Sparks, 2001b). La sorption augmente donc dans ce cas avec la température.

Scheckel et Sparks (2001b) ont étudié la sorption du nickel sur différents types de minéraux, soit la pyrophyllite, le talc, la gibbsite, la silice et un mélange gibbsite/silice, entre 9 et 35°C (voir Figure 2-10). Ils ont déterminé des énergies d'activation (E_a) de 93,05 à 123,71 kJ/mol pour ces minéraux. Selon cette étude, les énergies d'activation inférieures à 42 kJ/mol indiquent généralement que les processus sont contrôlés par la diffusion, tandis que la réaction de sorption est le facteur limitant pour des énergies d'activation supérieures à 42 kJ/mol.

Les points expérimentaux de cette étude à différentes températures et les équations d'Arrhénius linéarisées correspondantes pour chaque matériau sont présentés à la Figure 2-11. On peut observer une bonne corrélation entre ceux-ci.

Donc, si la sorption respecte la loi d'Arrhénius, le nickel sous forme aqueux présent dans une concentration donnée prendra plus de temps à se sorber à une température plus froide.

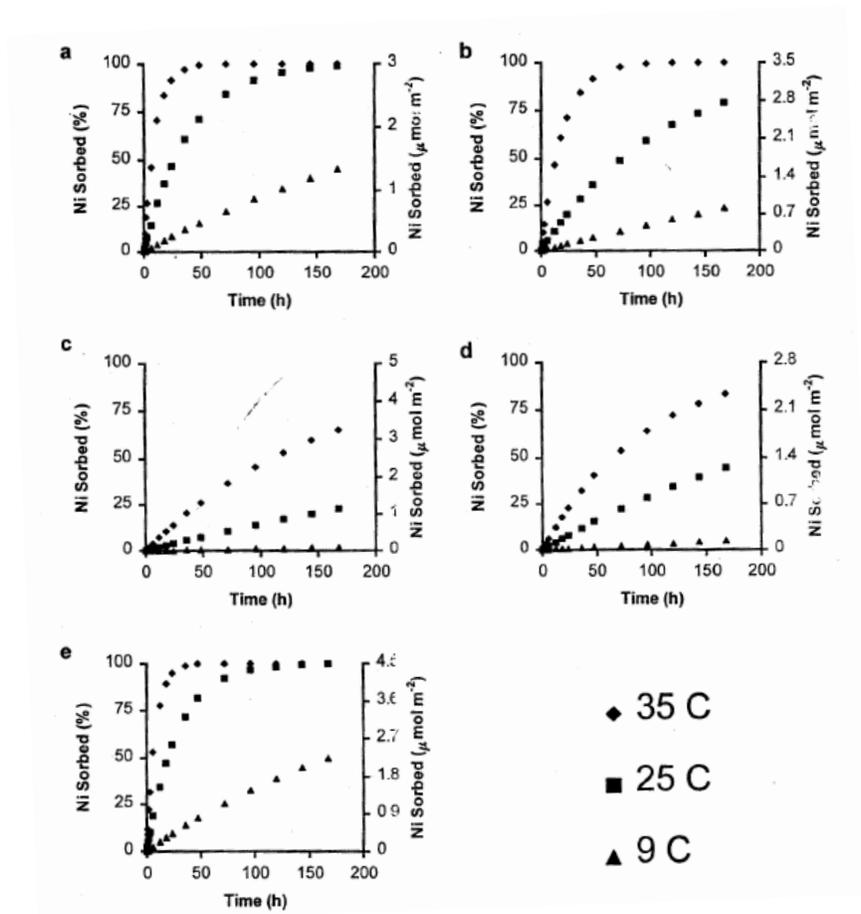


Figure 2-10: Pourcentage de nickel sorbé sur de la pyrophyllite (a), du talc (b), de la gibbsite (c), de la silice (d), et un mélange gibbsite/silice (e) à 9, 25 et 35°C à partir d'une concentration initiale en nickel de 3 mM (Scheckel et Sparks, 2001b)

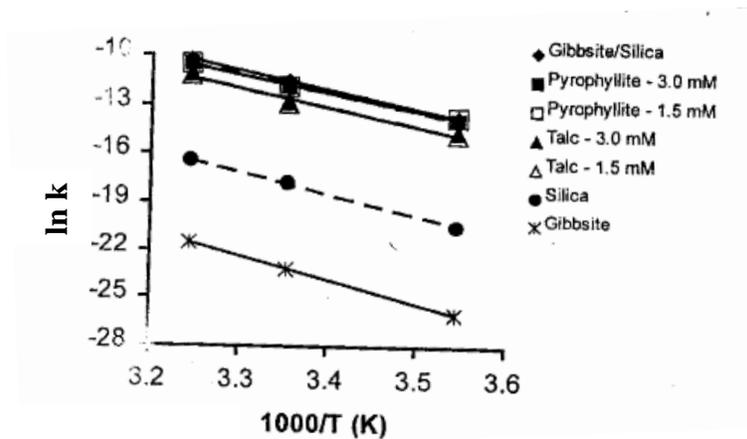


Figure 2-11: Graphiques de la loi d'Arrhénius linéarisée de la constante de sorption de nickel à 9, 25 et 35°C à partir d'une concentration initiale en nickel de 3 mM (Scheckel et Sparks, 2001b)

Cycles de gel et de dégel

Des impacts peuvent survenir suite à des cycles de gel et de dégel. Les changements créés par les phénomènes de gel et de dégel peuvent créer des fissures à la surface des résidus miniers qui peuvent former des brèches pour l'infiltration de l'oxygène, ainsi que des chemins préférentiels pour l'infiltration de l'eau. Ils peuvent aussi potentiellement fracturer ou briser des particules et exposer davantage de minéraux réactifs à des conditions oxydantes (NEDEM, 2006). De plus, les cycles de gel et de dégel peuvent augmenter la stabilité mécanique de la surface de résidus miniers en favorisant leur consolidation et en évacuant une grande partie de leur contenu en eau. En effet, les résidus gelés en surface ont une moins grande teneur en eau que les résidus non gelés sous-jacents, l'eau étant repoussée au front de gel (Beier et Sego, 2009).

2.2.2 Évaluation du taux d'oxydation des sulfures à différentes températures

Quelques équations ont été développées afin d'évaluer l'évolution des taux d'oxydation des sulfures en fonction de la température. Certaines de ces équations servent à extrapoler les taux d'oxydation des sulfures en général, alors que d'autres visent à évaluer plus spécifiquement l'effet de la température sur les taux d'oxydation de la pyrite et de la pyrrhotite.

Méthodes d'extrapolation générales

Deux méthodes sont principalement utilisées pour extrapoler les taux d'oxydation des sulfures à différentes températures. La première consiste à utiliser le coefficient de température (Q_{10}) pour décrire le changement des taux d'oxydation pour une variation de 10°C , tel que montré à l'équation 2.26 (Elberling, 2005).

$$Q_{10} = \left(\frac{k_2}{k_1}\right)^{10/(T_2-T_1)}, \text{ où } T_2-T_1 = 10^{\circ}\text{C}. \quad [2.26]$$

où k_2 est le taux de réaction spécifique à la température T_2 et k_1 est le taux de réaction spécifique à la température T_1 .

En général, la valeur de Q_{10} est supérieure dans les environnements où la température est plus faible (Elberling et Brandt, 2003). Quelques exemples de résultats de Q_{10} pour l'oxydation de la pyrite et de la pyrrhotite sont présentés au Tableau 2.1.

Tableau 2.1: Coefficients de température Q_{10} de la pyrite et de la pyrrhotite pour différentes températures et différents matériaux utilisés

Q_{10}	Gamme de températures	Type de matériau utilisé	Référence
2 à 3	3 à 25°C	Pyrite pure	Nicholson et al. (1988)
2 10	-2 à 12°C -12 à -2°C	Résidus contenant de la pyrite	Elberling (2005)
2,6		Stériles contenant de la pyrite	Elberling et al. (2007)
2	25 à 35°C	Pyrrhotite	Kwong (1995)
1,5 à 2,5 0,7 à 3,7		Pyrrhotite et dont l'oxydant est : l'oxygène le fer ferrique	Janzen (1996)

Quoique les effets de la température sur l'oxydation des sulfures soient complexes, plusieurs études, dont la plupart ont été effectuées sur des sulfures de fer, mentionnent que l'équation d'Arrhénius peut être utilisée pour extrapoler à d'autres températures les taux de réaction d'oxydation où le facteur limitant serait la réaction chimique elle-même (Nicholson et al., 1988; Ahonen et Tuovinen, 1992; Dawson et Morin, 1996; Elberling, 2001b; Belzile et al., 2004; INAP, 2009).

L'équation d'Arrhénius peut être exprimée de la façon suivante (Fogler, 2005) :

$$k=C \cdot \exp^{-E_a/(RT)} \quad [2.27]$$

où k est le taux de réaction, C est le facteur pré-exponentiel ou de fréquence, E_a est l'énergie d'activation de la réaction, R est la constante des gaz et T la température. On peut aussi diviser l'équation 2.27 par elle-même et la réorganiser pour obtenir l'équation 2.28, où l'on retrouve les taux de réaction à deux températures différentes (T_1 et T_2).

$$\ln \frac{k_1}{k_2} = \frac{E_a(T_1-T_2)}{RT_1T_2} \quad [2.28]$$

On retrouve cependant dans la littérature quelques cas où la loi d'Arrhénius n'arrive pas à bien décrire l'évolution de la réactivité en fonction de la température; NEDEM (2006) rapporte des cas où les taux d'oxydation n'ont pratiquement pas changé malgré une baisse de la température ou certains taux plus faibles que ceux prédits par la théorie. Cette loi a aussi été validée pour l'oxydation d'un minerai polymétallique (Ahonen et Tuovinen, 1992), de résidus contenant de la

pyrite (Elberling et al., 2000) et de la pyrite pure avec l'ajout d'un facteur 2,3 au dénominateur de l'équation 2.26 (Nicholson et al., 1988). Sa validité n'a toutefois pas été confirmée sous 0°C, où une régression linéaire semblait correspondre davantage aux observations de laboratoire que l'équation 2.27 (Elberling, 2001b).

Une modification de la loi d'Arrhénius a été proposée pour les taux de réaction de la pyrite pure à des températures plus élevées (25 à 60°C) ; l'ajustement serait nécessaire en raison d'une baisse de la disponibilité de l'oxygène. Celle-ci pourrait être causée par une hausse du taux de réaction plus grande que celui de la diffusion de l'oxygène, ce qui ferait en sorte que le facteur limitant deviendrait la diffusion de l'oxygène. Une autre hypothèse est la formation d'une couche d'oxydes de fer à la surface qui inhiberait la disponibilité de l'oxygène (Nicholson et al., 1988). L'équation d'Arrhénius modifiée s'écrit :

$$\frac{dN}{dt} = wSKC_{O_2}C \cdot \exp \frac{-E_a/RT}{1+KC_{O_2}} \quad [2.29]$$

où dN/dt représente le taux d'oxydation de la pyrite, w est le coefficient relatif au rapport molaire entre SO_4 et O_2 dans la réaction chimique, S est l'aire exposée (m^2), C_{O_2} est la concentration d'oxygène dans la phase gazeuse ($mol \cdot m^{-3}$), E_a est l'énergie d'activation (kJ/mol), R est la constante des gaz parfaits ($kJ/(mol \cdot K)$), T est la température (K), K est la constante d'adsorption d'oxygène de la pyrite et C est le facteur pré-exponentiel dans la loi d'Arrhénius (Nicholson et al., 1988). La valeur de K est de $1,36 \text{ m}^3/mol$ et est valide de 3 à 25°C ; elle peut varier avec la température. Celle de C est de $3,34 \cdot 10^{-10} \text{ mol}/(m^2 \cdot h)$. Cette loi a été utilisée et validée par d'autres auteurs (Andersen, Larsen et Postma, 2001).

Évaluation du taux d'oxydation de la pyrite

Le taux de réaction de la pyrite pure peut être approximé avec l'équation 2.30 selon la quantité de Fe^{2+} produite par la réaction d'oxydation. Cette équation est valide lorsque le facteur limitant de l'oxydation globale de la pyrite est l'oxydation du Fe^{2+} en Fe^{3+} . L'oxydation du Fe^{2+} est indépendant du pH pour de faibles valeurs de pH, tandis qu'il est dépendant de la concentration de $[OH^-]$ selon un ordre 2 pour de plus hautes valeurs de pH (Singer et Stumm, 1970; Kohfahl, Greskowiak et Pekdeger, 2007).

$$\frac{d[Fe^{2+}]}{dt} = k_{\text{abiotique}} \cdot km \cdot k_T \cdot P_{O_2} \cdot [Fe^{2+}] \cdot \left(1 + \frac{[Fe^{2+}]}{K_i}\right)^{-1} \quad [2.30]$$

où $[Fe^{2+}]$ est la concentration de fer ferreux libérée ($g \cdot m^{-3}$), t est le temps, $k_{abiotique}$ est la constante de réaction abiotique ($g^{-1} \cdot m \cdot ^\circ C$), km est le facteur d'accélération microbien (-), k_T est le facteur de correction pour la température (-), K_i est le facteur d'inhibition ($g \cdot m^{-3}$), P_{O_2} est la pression partielle d'oxygène ($g \cdot m^{-1} \cdot s^{-2}$) et t est le temps. La constante de réaction $k_{abiotique}$ se calcule comme suit :

$$\text{Si le } pH < 3, k_{abiotique} = 1,67 \cdot 10^{-9} \quad [2.31]$$

$$\text{Si } 3 < pH < 4,5, k_{abiotique} = 10^{(0,65pH-8,94)}/60$$

$$\text{Si } pH > 4,5, k_{abiotique} = 10^{(2pH-15)}/60$$

Le facteur d'accélération microbien se calcule de la manière suivante et ne tient pas compte de l'activité biologique à des pH supérieurs à 5 :

$$\text{Si } pH \leq 5, km = 10^{(-0,5264pH+6,632)} \quad [2.32]$$

$$\text{Si } pH > 5, km = 1$$

Le facteur d'inhibition (valide pour des températures supérieures à $10^\circ C$) est le suivant (Karavaiko, Kovalenko et Piskunov, 1982) :

$$K_i = (-0,82 \cdot T + 25,25) \cdot 1000 \quad [2.33]$$

Le taux d'accélération microbien dépend non seulement du métabolisme, mais aussi du taux de reproduction des espèces microbiologiques qui dépend de la température. Ceci est pris en considération dans le facteur k_T (Ahonen et Tuovinen, 1989).

$$k_T = 0,0047 \cdot (T-6)^2 + 0,12 \quad [2.34]$$

Évaluation du taux d'oxydation de la pyrrhotite

Plusieurs équations ont été développées pour estimer les taux d'oxydation de la pyrrhotite selon plusieurs facteurs (concentration d'oxygène, pH, etc.), elles ont pour la plupart été développées pour des taux de réaction à température ambiante, soit près de $25^\circ C$ (McKibben et Barnes, 1986; Williamson et Rimstidt, 1994). Un modèle impliquant une énergie d'activation de 99 kJ/mol a été développé pour décrire les cinétiques selon la température pour les réactions directes (l'oxygène étant le principal oxydant) et indirectes (oxydation du Fe(II) en Fe(III) par les

bactéries) à la fois d'un minerai broyé finement contenant 46% de pyrrhotite dans une solution aqueuse contenant 3% de solide (Beolchini et Veglio, 1999; Veglio 2000).

$$\frac{d\alpha_{Po}}{dt} = 1440,8 \cdot 10^{-4} e \left[-\frac{99 \cdot 10^3}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298} \right) + \frac{27 \cdot 10^3 \alpha_{Po}}{RT} \right] \left(\frac{C_{Fe^{3+}}}{1000} \right)^{0,47} (1 - \alpha_{Po})^{2/3} \quad [2.35]$$

où α_{Po} est la conversion de la pyrrhotite, t est le temps (j), $C_{Fe^{3+}}$ est la concentration de fer ferrique dans la solution (mol/m^3), R est la constante universelle des gaz (J/mol/K) et T la température (K).

2.3 Comportement de rejets miniers en région nordique : études de cas

L'étude du comportement de rejets miniers en conditions froides est importante pour avoir une bonne compréhension des phénomènes impliqués dans les processus de création ou d'atténuation de la contamination sur des sites situés en région nordique. Elle permet, par exemple, la prédiction de la contamination *in situ* et de l'efficacité de méthodes de restauration pour un parc à résidus miniers ou une halde à stériles. Les paragraphes suivants présentent des études antérieures sur le comportement de rejets miniers des sites Rankin Inlet et Nanisivik, où l'effet de températures froides est considéré.

Mine Rankin Inlet

La mine Rankin Inlet est située à 62° de latitude au Nunavut, Canada, en zone de pergélisol continu, où du nickel, du cuivre et des éléments du groupe du platine ont été exploités entre 1957 et 1962. La température moyenne annuelle de l'air y est de -11°C et celle du sol de -7°C . La restauration du parc à résidus a été effectuée entre 1992 et 1994 en relocalisant les résidus dans une ancienne fosse à ciel ouvert et en les recouvrant d'un mètre de gravier pour les encapsuler dans le pergélisol. Les résidus potentiellement générateurs de DMA contiennent de 5 à 30% volumique de pyrrhotite, ainsi que de plus faibles proportions de pyrite, de chalcopyrite et de pentlandite. L'eau de lixiviation en surface présente des concentrations non négligeables en métaux potentiellement toxiques, particulièrement du nickel (0,17 à 2,5 ppm). De fréquentes inondations provenant de la Baie d'Hudson et l'accumulation de produits d'oxydation des sulfures ont augmenté la salinité de l'eau des pores jusqu'à 52 parties par trillion faisant en sorte que la glace commence à s'y former à -4°C . La modélisation thermique et les mesures directes

ont démontré que le gel progresse dans les résidus et qu'ils devraient être totalement gelés environ 15 ans après leur enfouissement (Meldrum, 1998; Meldrum et al., 2001).

Afin d'évaluer l'efficacité de la méthode de restauration du site, des essais en colonnes ont été effectués selon différentes configurations avec des matériaux récupérés sur le site. La colonne contrôle est constituée de sable silteux non sulfureux (dont la teneur en soufre se trouve sous la limite de détection) et d'eau de mer. Deux autres colonnes ont été remplies de résidus accompagnés respectivement d'eau de mer et distillée. Une dernière colonne, la plus représentative des conditions *in situ*, contient des résidus prélevés gelés (intacts) et l'eau interstitielle qu'ils contenaient. La température des colonnes a été maintenue à 30°C pendant 5 jours, puis abaissée pour des intervalles de 30 jours à 0°C, -2°C et -10°C. Durant les essais à 0 et -2°C, une température légèrement supérieure a été observée dans la dernière colonne, probablement en raison de la chaleur dégagée par l'oxydation de la pyrrhotite.

Les teneurs en eau sous forme liquide ont été mesurées à l'intérieur des colonnes à l'aide de la technique de réflectométrie dans le domaine du temps (RDT). Les résultats des teneurs en eau non gelée pour différentes configurations matériel/eau sont présentés au Tableau 2.2, où l'on remarque que 9% de l'eau interstitielle des résidus est encore non gelée à -10°C.

Des essais de consommation d'oxygène ont aussi été effectués dans les colonnes pour mesurer les taux d'oxydation des sulfures. Pour ce faire, les colonnes ont été fermées avec un couvercle étanche où un senseur à concentration d'oxygène a été fixé (opérationnel entre -20 et 50°C et ayant une précision de 0,1% O₂). Ces taux sont présentés au Tableau 2.3. On remarque que les taux d'oxydation les plus élevés sont ceux provenant des résidus intacts et de l'eau interstitielle *in situ*. À 0°C, de l'oxydation est remarquée pour toutes les combinaisons eau-matériau. À -2°C, de faibles taux d'oxydation sont mesurés pour seulement deux colonnes, et on n'observe pas d'oxydation à -10°C. La faible consommation d'oxygène dans la colonne contrôle provient probablement de dégradation de matière organique. Il est important de mentionner que la précision de ce type de test est plutôt faible lorsque la consommation d'oxygène est inférieure à 20 à 25 mol O₂/m²/an (Bussière, Dagenais, Aubertin et Mbonimpa, 2002). Il faut donc garder un esprit critique lors de l'analyse des résultats contenus dans le Tableau 2.3.

Tableau 2.2: Contenu volumétrique moyen en eau non gelée dans chaque colonne à 30, 0, -2 et -10°C (en %) (Meldrum et al., 2001).

Matériel	Fluide dans les pores	Température (°C)			
		30	0	-2	-10
Sable silteux (non sulfureux)	Eau de mer	23	16	11	1
Résidus intacts	Eau interstitielle in situ	32	20	15	9
Résidus de forage	Eau de mer	24	18	14	5
Résidus de forage	Eau distillée	21	16	13	4

Tableau 2.3: Flux d'oxygène moyen pour la durée des tests dans chaque colonne à 30, 0, -2 et -10°C ($\pm 5 \text{ mol O}_2/(\text{m}^2 \cdot \text{an})$) (Meldrum et al., 2001)

Matériel	Fluide dans les pores	Température (°C)			
		30	0	-2	-10
Sable silteux (non sulfureux)	Eau de mer	14	2	0	0
Résidus intacts	Eau interstitielle in situ	148	19	7	0
Résidus de forage	Eau de mer	68	3	0,5	0
Résidus de forage	Eau distillée	89	2	0	0

Lors du démantèlement des colonnes, des minéraux secondaires formés par l'altération des résidus de Rankin Inlet ont été observés par diffraction des rayons X et en microscopie électronique à balayage. Les principaux sont la halite (NaCl), l'epsomite ($\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$), la birnessite ($\text{Na}_4\text{Mn}_{14}\text{O}_{27} \cdot 9\text{H}_2\text{O}$), et on suspecte aussi la présence d'hydroxydes de fer amorphes.

Les résultats de cette étude confirment que l'intégration des résidus au pergélisol est une méthode qui minimise l'oxydation des sulfures dans les régions de pergélisol continu. De plus, pour que cette méthode soit totalement efficace, la température des résidus doit préférentiellement être inférieure à -2°C (Meldrum, 1998; Meldrum et al., 2001).

Mine Nanisivik

Du plomb et du zinc ont été exploités entre 1973 et 2002 à la mine Nanisivik située sur l'Île de Baffin au Canada (73°N). La température moyenne annuelle y est de $-15,1^{\circ}\text{C}$ et on y retrouve plus de 400 mètres de pergélisol continu (Cassie, Claypool et Carreau, 2009). Les résidus contiennent de 50 à 85% de pyrite, ainsi que de la dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) et de faibles proportions de sphalérite (ZnS) et de galène (PbS) (NEDEM, 2006). Le pH de l'eau sur le site se trouve généralement entre 7,4 et 7,7, mais l'eau interstitielle devient parfois plus acide après des périodes de sécheresse (jusqu'à un pH de 2,3) et peut contenir des concentrations élevées de zinc, plomb, cadmium et sulfates.

Des essais de consommation d'oxygène ont été effectués directement sur ce site pour évaluer les taux d'oxydation des résidus. Les taux sont de l'ordre de 73 à $182 \text{ mol O}_2 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{an}^{-1}$ en été, ce qui est dans le même ordre de grandeur que les taux observés dans des climats tempérés (Elberling et Nicholson, 1996). À partir de la modélisation liée aux mesures sur le terrain montrée à la Figure 2-12, on suggère que 40% de l'oxygène total a été consommé à des températures inférieures à 0°C durant l'année d'essais. On remarque aussi qu'une meilleure corrélation relie la consommation d'oxygène à la température du sol dans la zone de réactivité (0-30 cm) qu'à la température de l'air (Elberling, 2001b).

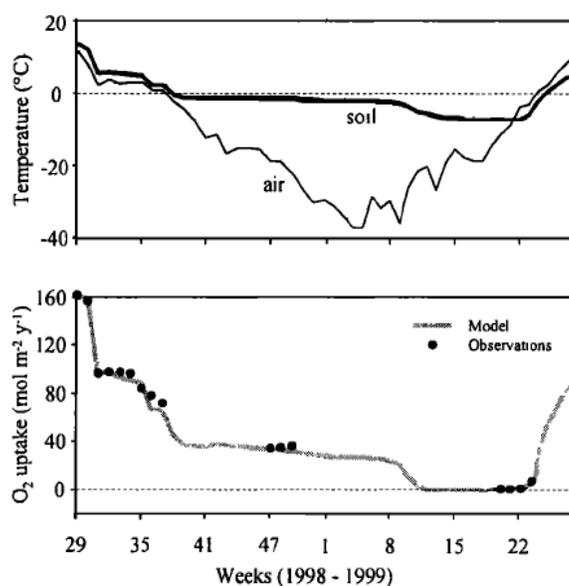


Figure 2-12: Variations annuelles de température et de consommation d'oxygène observées dans les résidus de la mine Nanisivik, basées sur des estimés hebdomadaires (Elberling, 2001b)

La consommation d'oxygène des résidus a aussi été mesurée au laboratoire pour différentes températures et démontre une très bonne corrélation entre les données expérimentales et l'extrapolation avec la loi d'Arrhénius pour des températures supérieures à 0°C. Sous 0°C, un écart est remarqué et une relation linéaire procure un meilleur ajustement (voir Figure 2-13). On remarque également une certaine dépendance des taux d'oxydation des réactions chimiques et biologiques en fonction de la température. Les considérations théoriques et les mesures de taux de consommation d'oxygène démontrent qu'une baisse de température de 15 à -3°C réduit l'oxydation globale de résidus sulfureux par un facteur d'approximativement 3 ou 4 (Elberling, 2001b). Le Q_{10} (défini à la section 2.2.2) est approximativement de 2 pour des températures au-dessus de -2°C et de 10 pour des températures sous -2°C (Elberling, 2005). Les auteurs considèrent qu'une hypothèse pouvant expliquer cette dernière valeur plus élevée pourrait provenir du fait que sous -2°C, l'oxygène est prisonnier de la glace et est donc moins disponible pour l'oxydation des sulfures.

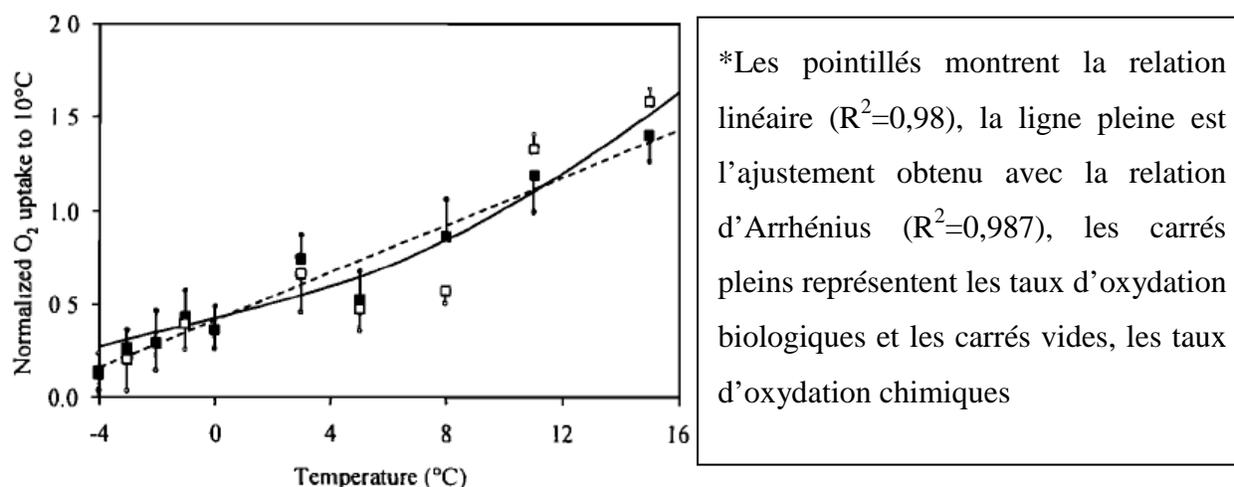


Figure 2-13: Consommation d'oxygène par les résidus de la mine Nanisivik au laboratoire en fonction de la température. (Elberling, 2001b)

La présence de microorganismes, entre autres ceux oxydant le fer (*Thiobacillus ferrooxidans*), le soufre (*T. thiooxidans*), et les thiosulfates (*Thiomonas intermediae*), a été décelée dans les résidus de la mine Nanisivik jusqu'à des profondeurs de 25 centimètres. Les résultats de mesures calorimétriques à 6°C, 10°C et 20°C montrent aussi que l'activité bactérienne est responsable environ du tiers de l'oxydation observée sur le terrain (Elberling et al., 2000). Cette étude conclut qu'une baisse de la température limite la réactivité générale dans les résidus, mais aussi

qu'une température tout juste sous 0°C ne garantit pas des taux négligeables d'oxydation de la pyrite.

De l'eau non gelée est aussi retrouvée dans les résidus jusqu'à des températures de -10°C (voir Figure 2-7) et pourrait influencer les taux d'oxydation à ces températures (Elberling, 2001b). Sur le site, le contenu en eau des résidus à proximité d'un lac réduit toutefois la diffusion et la consommation d'oxygène par un facteur d'environ 100. Il a été remarqué que pour les résidus ayant un degré de saturation de 30 à 70%, le gel peut faire diminuer la diffusion de l'oxygène jusqu'à environ un ordre de grandeur. Par contre, aucun effet significatif n'a été observé sur les résidus exposés au gel et ayant un degré de saturation de moins de 30% (Elberling, 1998; NEDEM, 2006).

L'ennoiement des résidus était la méthode choisie initialement pour la restauration du parc à résidus. Il s'est toutefois avéré qu'elle n'avait pas l'efficacité escomptée, étant donné qu'une partie des résidus était tout de même exposé à l'atmosphère et s'altérait. Afin de vérifier l'efficacité d'une autre méthode de restauration, soit l'encapsulation dans le pergélisol, des cellules de terrain ont été construites. Dans celles-ci, des résidus ont été recouverts de 2 mètres de matériaux non sulfureux. Un modèle 1D d'écoulement de l'eau et de transfert de chaleur (WinSoil) a été utilisé pour simuler les températures dans la couverture et les résidus, en relation avec l'épaisseur de la couverture sèche et de la neige. Les simulations correspondent raisonnablement aux températures mesurées qui sont inférieures à zéro depuis le recouvrement des résidus effectué six années auparavant (Kyhn et Elberling, 2001).

Basé sur la performance des recouvrements testés et des résultats des modélisations, il a été déterminé que le design final du recouvrement des résidus de Nanisivik serait une couche de protection de 0,25 mètre de matériel grossier granulaire par-dessus 1 mètre de schiste granulaire. Le schiste est constitué de cailloux, de gravier, de sable et de silt et possède un potentiel de neutralisation élevé et un faible potentiel de génération d'acidité. La couverture a été construite en 2004-2005 et depuis, la qualité de l'eau s'est améliorée, particulièrement dans les périodes de gel.

Les prédictions sur la température annuelle moyenne de l'air de la mine Nanisivik prévoient d'ici 2100 une augmentation de -15,1 à -12,3°C (meilleure estimation), avec un minimum de -13,3°C

et un maximum de $-10,1^{\circ}\text{C}$ (Cassie et al., 2009). Il y a donc une probabilité que le réchauffement climatique affecte l'efficacité à long terme de cette méthode de restauration du site.

2.4 Description du site de la mine Raglan

Les matériaux à l'étude dans le présent projet proviennent du site minier Raglan. Le site minier Raglan est en opération depuis 1998. D'abord exploité par la compagnie Falconbridge, le site est maintenant la propriété d'Xstrata Nickel depuis 2006. Un concentré de nickel-cuivre y est produit, contenant aussi des quantités significatives de palladium, de platine, de rhodium et de cobalt. Au total, ce sont 26 000 tonnes de concentré qui sont produites annuellement et sont transportées par bateau au port de Québec, à partir duquel il est acheminé jusqu'à une fonderie à Sudbury. La matte fondue est par la suite expédiée en Norvège pour être affinée en métaux purs.

Le site se trouve à la hauteur du 62° parallèle dans la péninsule d'Ungava de la région du Nunavik, Québec, Canada (voir Figure 2-14). La température moyenne annuelle de l'air y est de $-10,3^{\circ}\text{C}$ et les précipitations annuelles totales atteignent 650 mm. Tel que montré par le profil de la température selon la distance à partir de la surface du sol à la Figure 2-15, le pergélisol prend place jusqu'à une profondeur de 586 mètres sous la surface du sol et la couche active y est d'environ un mètre. La température minimale du pergélisol se trouve à 60 mètres sous la surface du sol et est de $-6,9^{\circ}\text{C}$ (Fortier, 2006). Dans les 150 premiers mètres sous la couche active, la température se situe principalement entre celle-ci et -6°C .



Figure 2-14: Emplacement de la mine Raglan

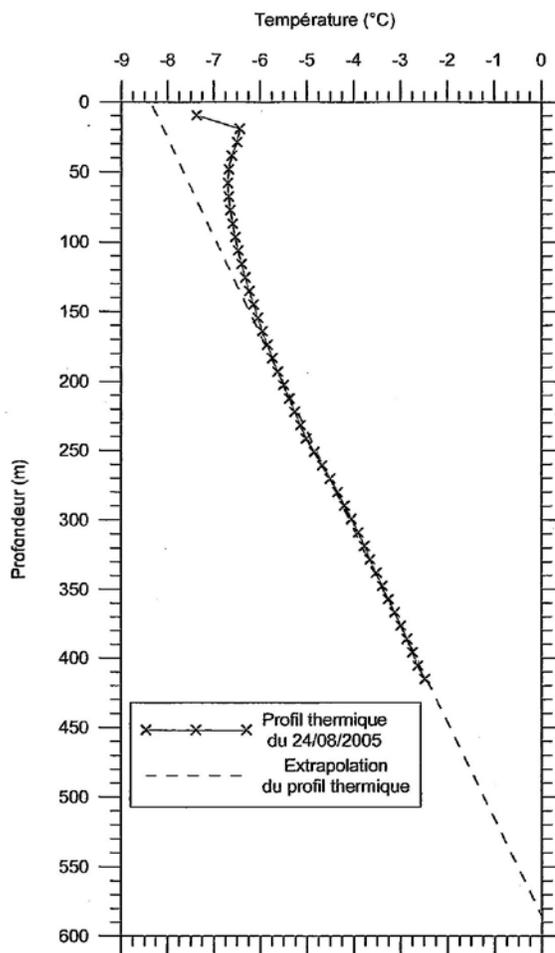


Figure 2-15: Mesures du profil thermique jusqu'à 430 m de profondeur observé dans le trou de forage 718-1797 de la zone 5-8 du plateau Katinniq et extrapolation basée sur le gradient géothermique moyen calculé entre 160 et 430 m d'une valeur moyenne de $0,0136^{\circ}\text{C}/\text{m}$ (Fortier, 2006)

2.4.1 Géologie régionale et du gisement

La mine Raglan loge dans la partie est de la ceinture orogénique du Cap Smith qui traverse la Péninsule de l'Ungava d'est en ouest. Cette ceinture de roches sépare les provinces Supérieures et Churchill et peut être associée à d'autres roches Protérozoïques dans le Pli Synclinal du Labrador et à l'ouest de la Baie d'Hudson dans la Ceinture de Nickel Thompson. La stratigraphie de la ceinture du Cap Smith peut être subdivisée en deux groupes sédimentaires inférieurs, une division centrale de basaltes et de sédiments tholéitiques (le Groupe Povungnituk) et une division supérieure de basaltes komatiitiques (Groupe de Chukotat). Des coulées et filons-

couches mafiques à ultramafiques sont abondants dans la portion centrale-est de la ceinture (Leshner, 2007; Xstrata Nickel - Mine Raglan, 2009).

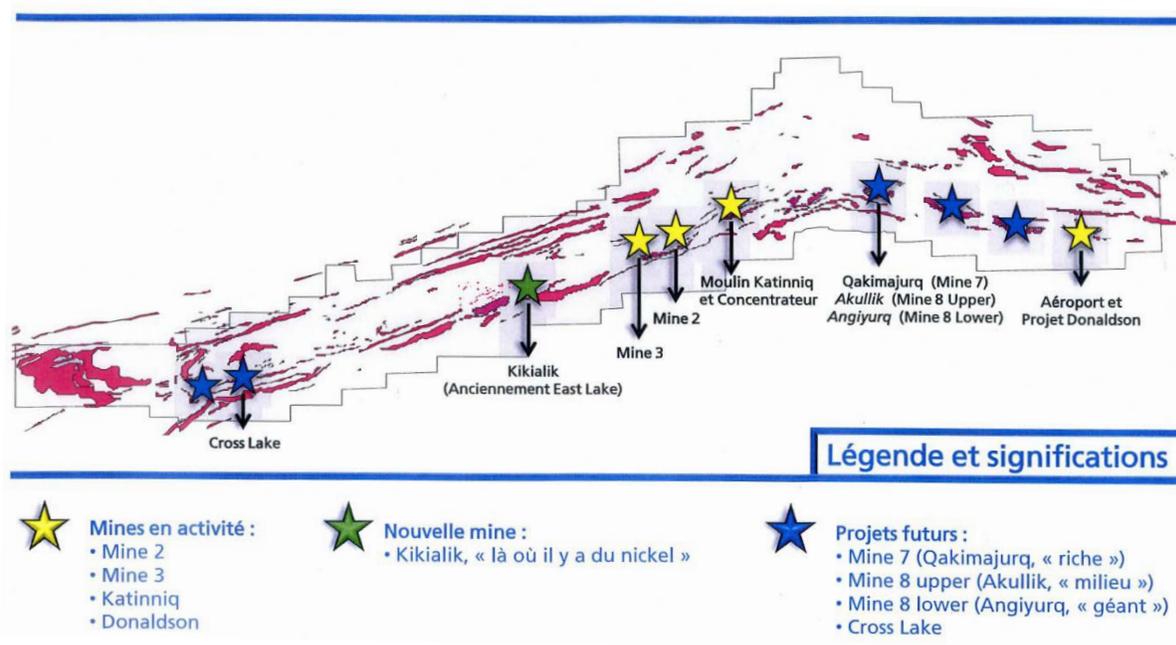


Figure 2-16: Les différents gisements de la mine Raglan à l'hiver 2010

Les gisements de nickel exploités par la mine Raglan sont composés de roches ultramafiques, telles que des péridotites, des pyroxénites, des gabbros et des basaltes komatiitiques. La propriété de la mine Raglan, qui s'étend sur 70 km d'est en ouest, contient une série de zones de minéralisation à haute teneur dispersées sur sa longueur. Cette minéralisation consiste en lentilles individuelles de sulfures associés à des coulées ultramafiques le long du contact des groupes de Povungnituk et Chukotat. En tout, neuf coulées péridotitiques contenant une minéralisation économique significative sont retrouvées sur une distance de 55 kilomètres. Les lentilles de minerai consistent en une zone étroite de sulfures massifs le long du mur de la formation entourée de sulfures ayant une texture en filets ou disséminés. Le minerai est composé de pyrrhotite hexagonale, de pentlandite, de chalcopryrite, de magnétite et de pyrite (ce dernier en faible teneur) dans une gangue de péridotite, dans lequel du cobalt et des éléments du groupe du platine sont associés aux sulfures. Les lentilles de minerai varient considérablement en grandeur et forme, et sont généralement situées à la base de canaux et de plis synclinaux des coulées péridotitiques. Leur épaisseur varie de quelques mètres à quelques dizaines de mètres et leur

longueur varie de quelques dizaines de mètres à 200 mètres (Xstrata Nickel - Mine Raglan, 2009).

Sur la propriété, les neufs principales aires d'exploitation ou d'exploration sont, d'est en ouest, Donaldson, West Boundary, 13-14, 5-8 (Qakimajurq, Akullik et Angiyurq), Katinniq, 2, 3, Kikialik et Cross Lake (voir Figure 2-16). Au moment de l'échantillonnage à la fin de l'été 2008, la mine Kikialik était en démarrage et l'exploitation se limitait aux aires Katinniq, 2 et 3.

2.4.2 Gestion des stériles

Sur le site minier, différents types de stériles sont extraits : de l'olivine-pyroxénite, du gabbro, de la péridotite, de l'argilite et de la volcanique (du basalte) ; les stériles peuvent également contenir une certaine proportion de minerai selon la teneur de coupure à la mine et la proximité du gisement. Les stériles de la mine Raglan sont temporairement entreposés dans des haldes avant leur enfouissement quelques années plus tard sous forme de remblai rocheux dans les galeries et au fond des fosses de la mine. Le concept de restauration est d'intégrer les stériles au pergélisol en se basant sur le fait que l'oxydation des sulfures est diminuée considérablement à basse température. Les stériles seraient donc déposés dans les fosses et recouverts par une couverture de matériaux non générateurs de contaminants. La température de la base de la couverture devra être en permanence sous 0°C pour assurer le gel des stériles (Szymanski, Zivkivik, Tchekhovski et Swarbrick, 2003).

La production annuelle de stériles à la mine a été évaluée à 1,16 Mt en 2008 et 1,02 Mt en 2007. En date du 20 juin 2009, les empilements de stériles en surface couvraient plus de 500 000 m² (ou 50 hectares) et occupaient un volume de plus de 5 Mm³ (équivalent à plus de 8 Mt). Depuis les débuts de la mine, la teneur de coupure du minerai a varié selon le contexte économique entre 1 et 1,5%, ayant un impact sur la teneur en sulfures des stériles. Celle-ci est estimée à 0,3% en moyenne et est constituée notamment de pyrrhotite contenant des inclusions de pentlandite. La granulométrie des stériles est variable, selon qu'ils soient extraits d'une mine souterraine ou à ciel ouvert. Ces dernières sont généralement plus grossières en raison des méthodes de minage (Fala et al., 2008). Les eaux de drainage des haldes à stériles de la mine Raglan ont parfois des pH et des concentrations en nickel ne respectant pas les normes gouvernementales et nécessitent un traitement avant d'être rejetées à l'environnement (P. Garneau, communication personnelle, 2010).

2.5 Études antérieures sur la géochimie des stériles de la mine Raglan

Des essais en cellules humides, ainsi qu'une caractérisation et des essais statiques ont été effectués sur les stériles de la mine Raglan au cours des dernières années. De brefs résumés de ces études sont présentés dans les sections suivantes.

2.5.1 Essais en cellules humides (Rinker et al., 2003)

La caractérisation de certains types de stériles (argilite, pyroxénite, gabbro) de la mine 2 du site Raglan ainsi que des essais cinétiques en cellules humides ont été effectués. Les résultats de la caractérisation (voir Tableau 2.4) montrent que les stériles échantillonnés contiennent des concentrations en soufre de moins de 0,01% et jusqu'à 9,22%, ainsi que des concentrations en nickel de 0,02 à 3,3%. Le rapport Ni : S des stériles d'environ 0,55 laisse croire que les stériles contiennent de la pentlandite en plus de la pyrrhotite.

Tableau 2.4: Résultats de la caractérisation chimique et des essais statiques sur des stériles de la mine Raglan (Rinker et al., 2003)

Constituent	Waste Rock Sample ID								
	RWR-001	RWR-002	RWR-003	RWR-004	RWR-005	RWR-006	RWR-007	RWR-008	RWR-Z2
Co (mg/kg)	120	200	540	180	38	32	56	140	130
Cr (mg/kg)	1,300	2,000	1,300	880	170	100	2,100	36	1,700
Cu (%)	0.06	0.45	0.50	1.0	0.044	0.047	0.018	0.009	0.068
Ni (%)	0.33	1.20	3.30	0.92	0.02	0.02	0.12	0.0018	0.37
NP (kg CaCO ₃ /t)	69.8	17.8	28.7	26.8	20.4	15	64.2	40.7	37.8
AP (kg CaCO ₃ /t)	4.06	20.6	135	53.4	0.31	0.31	1.88	15.3	4.69
Total S (%)	0.56	2.05	9.22	3.96	0.05	0.03	0.47	1.72	0.69
Sulphide S (%)	0.13	0.66	4.32	1.71	<0.01	<0.01	0.06	0.49	0.15

Sept cellules humides ont été montées aux fins de l'étude. Les rinçages de quatre d'entre elles (contenant du gabbro, de l'argilite, de la pyroxénite et un agrégat) ont été effectués avec de l'eau déionisée. Une eau dont le pH a été ajusté entre 6 et 7 avec de l'acide acétique a été utilisée pour les trois autres cellules humides (contenant du gabbro, de l'argilite, de la pyroxénite). Le Tableau 2.5 présente les principaux résultats de ces essais. Ceux-ci rassemblent les concentrations maximales et moyennes en régime permanent de nickel et de sulfates des essais standards et avec pH ajusté. Dans les essais standards, du nickel est lixivié à des concentrations atteignant 1,6 mg/L après un délai de quelques semaines pour la plupart des types de stériles et ce, même pour

des teneurs en soufre aussi basses que 0,3%. Les concentrations maximales en nickel observées sont plus élevées pour les essais avec pH ajusté, mais les concentrations en régime permanent sont semblables à celles du test standard. Aussi, on n'observe aucun délai dans la lixiviation de Ni à des pH inférieurs à 8. On remarque aussi que la lixiviation de Ni ne survient pas au-dessus d'un pH seuil près de la neutralité et caractéristique à chaque échantillon de stérile. Ces résultats reflètent l'abondance de précipités de fer dans les cellules humides ayant un plus grand pourcentage de soufre qui contrôlent la lixiviation de nickel par sa sorption. En conclusion, cette étude mentionne que le rapport des potentiels de génération d'acidité et de neutralisation (AP/NP) ne doit pas être le seul outil servant à gérer le risque associé à la contamination par les stériles de la mine Raglan, car il ne prend pas en considération le risque de contamination à pH neutre par le nickel.

Tableau 2.5: Résultats des concentrations de sulfates et de nickel moyennes et maximales en régime permanent lors d'essais en cellules humides (Rinker et al., 2003)

Type de stérile	Concentration maximale		Concentration moyenne en régime permanent	
	Nickel (mg/L)	Sulfates (mg/L)	Nickel (mg/L)	Sulfates (mg/L)
Essais en lixiviation standard				
Gabbro	0,02	3	<0,010	0,6
Argilite	0,16	17	0,031	1,7
Pyroxénite	0,11	28	0,019	5
Agrégat	1,60	120	0,41	13,3
Essais en lixiviation acide				
Gabbro	0,26	10	<0,010	0,4
Argilite	1,20	20	0,035	1,6
Pyroxénite	0,93	42	0,030	4,9

2.5.2 Caractérisation et essais statiques de différents types de stériles (Bussière et al., 2008)

Des essais statiques de prédiction du potentiel de génération de drainage minier acide ainsi que des analyses de caractérisation chimiques et minéralogiques ont été effectués dans cette étude sur des stériles ne contenant pas de minerai. Les échantillons analysés sont de l'olivine-pyroxénite et de la péridotite des mines 2 et Spoon, ainsi que du gabbro, de l'argilite et de la volcanique de la mine 2. La concentration maximale en soufre est retrouvée à un maximum de 0,6% dans les échantillons et ce dernier se trouve presque en totalité sous forme de sulfures. Les péridotites et

l'olivine-pyroxénite contiennent entre 0,2 et 0,3% de nickel. Les échantillons sont composés en grande partie de minéraux silicatés, et tous contiennent de 0,3 à 0,5% de sulfures détectables (chalcopyrite, de pyrite et/ou de pyrrhotite), sauf pour l'argilite dont la teneur est sous la limite de détection.

Les gabbros et les péridotites ont été classés non générateurs d'acidité, tandis que le potentiel de génération d'acidité pour les autres types de roches est incertain. L'évaluation du PN pour ces matériaux pourrait être sous-estimée en raison de la présence de minéraux neutralisant silicatés seulement. Les principaux résultats de l'étude sont résumés au Tableau 2.6.

Tableau 2.6: Principaux facteurs et verdict quant au potentiel de génération de DNC et de DMA des échantillons étudiés (Bussière et al., 2008)

Paramètre	Olivine-pyroxénite	Gabbro mine 2	Péridotite mine 2	Argilite mine 2	Volcanique mine 2	Péridotite Spoon
PA (kg CaCO₃/t)	18,3	0,3	5,9	9,5	9,5	5,3
PN (kg CaCO₃/t)	19,4	8,6	43,4	29,1	32,0	35,9
PNN (kg CaCO₃/t)	1,07	8,26	27,5	19,6	22,5	30,6
PN/PA	1,06	25,0	7,39	3,07	3,38	6,76
Ni	0,283%	0,013%	0,228%	<0,01%	0,052%	0,207%
Soufre sulfure	0,592%	0,015%	0,192%	0,309%	0,308%	0,177%
Pyrrhotite	Oui			Oui	Oui	
Pyrite		Oui			Oui	
Pentlandite	Oui	Oui	Oui	Oui	Oui	Oui
Verdict DMA	Incertain	Non générateur	Non générateur	Incertain	Incertain	Non générateur
Verdict DNC	Risque élevé	Risque très faible	Risque élevé	Risque faible	Risque faible	Risque élevé

Cette étude recommande la réalisation d'essais cinétiques pour les échantillons à risque élevé de génération de drainage neutre contaminé (soient l'olivine-pyroxénite et les péridotites provenant des mines 2 et Spoon) pour clarifier les verdicts de générations de DMA incertains et ceux de DNC qui sont donnés à titre arbitraire.

2.6 Besoins en recherche pour caractériser les stériles de Raglan

La revue de littérature nous a permis d'identifier les processus liés à l'oxydation des sulfures, la production de DNC en nickel et l'effet de la température sur ces phénomènes et sur d'autres processus indirects pouvant influencer la qualité de l'eau. On a aussi constaté à partir des études antérieures effectuées à la mine Raglan que certains types de stériles ont un potentiel à générer du DMA ou du DNC. En effet, étant donné la nature sulfureuse du gisement de la mine Raglan, les stériles situés à proximité de celui-ci peuvent contenir une certaine teneur en sulfures et sont ainsi plus propices à avoir un potentiel de contamination.

Par contre, on ne connaît pas le potentiel de contamination des stériles situés à une certaine distance du gisement et qui n'ont pas l'influence minéralogique de celui-ci. On a remarqué dans le Tableau 2.6 que plusieurs échantillons de stériles provenant du site étaient non générateurs d'acidité et possédaient un contenu en nickel relativement faible. Comme aucun critère n'existe pour identifier la limite entre un stérile générateur de DNC et qui ne produit pas de contamination, ceux-ci sont présentement tous considérés et gérés comme s'ils avaient un potentiel de contamination. Cependant, une proportion des stériles produits à la mine Raglan pourrait avoir un potentiel de contamination nul. Il serait donc avantageux d'identifier quels types de roche stérile peuvent être classifiés comme non générateurs de DNC. L'identification de ces types de roches permettrait à la mine Raglan de gérer les stériles potentiellement générateurs de contaminants séparément des stériles non problématiques pour l'environnement. Ce mode de gestion permettrait, par exemple, de favoriser le remblai de galeries souterraines ou de fosses à ciel ouvert avec des stériles générateurs de contaminants afin de favoriser leur intégration au pergélisol et ainsi limiter les chances que survienne une potentielle contamination. Les stériles non problématiques pour l'environnement pourraient quant à eux être stockés en surface sur de plus longues périodes que les autres ou, par exemple, être utilisés dans la restauration de fosses remblayées comme recouvrement ou comme matériaux de construction pour les routes et l'entretien. La mise en place de ce critère permettrait donc de diminuer les coûts reliés de gestion des stériles et favoriserait une diminution de l'empreinte environnementale.

Afin de catégoriser un stérile comme non générateur de contaminants, plusieurs phénomènes reliés au comportement géochimique des stériles doivent être approfondis. Par exemple, il est pertinent d'étudier les taux et les processus des principales réactions liées à la contamination,

telles la d'oxydation des sulfures et la dissolution des minéraux neutralisants. Les processus limitant la contamination, telles la sorption du nickel par les stériles et sa précipitation en minéraux secondaires, doivent aussi être mieux connus avant de caractériser le potentiel de contamination des différents types de roche stérile. Pour ce faire, la réalisation d'essais cinétiques semble donc parfaitement appropriée. Parmi ceux-ci, l'essai en colonne est la méthode la plus efficace pour atteindre les buts recherchés. Ce type d'essai utilise un plus grand volume de matériau et peut contenir des stériles ayant une granulométrie plus grossière (situation plus représentative d'une halde à stériles par rapport à la cellule humide).

On sait cependant que les températures au site minier sont habituellement plus froides que la température normale du laboratoire. Les essais cinétiques en colonnes effectués à température normale sont appropriés pour déterminer le potentiel de contamination d'un matériau, mais ils ne pourront pas simuler les phénomènes pouvant se produire à plus faibles températures et pouvant influencer la production de drainage contaminé (ex. sur les taux d'oxydation et la solubilité du nickel). Des essais cinétiques effectués à différentes températures permettraient de quantifier l'effet de la température sur le comportement géochimique des stériles. Les essais à plus petite échelle semblent appropriés pour évaluer l'impact de la température sur la réactivité des matériaux provenant de la mine Raglan. Étant plus agressifs que l'essai en colonne, ils permettraient d'amplifier les réactions d'oxydation et de mieux percevoir les différents processus de production ou d'atténuation de la contamination. Les tailles de celles-ci permettent aussi leur manipulation dans une chambre à atmosphère contrôlée pouvant atteindre des températures négatives, notamment la température minimale du pergélisol de la mine Raglan.

Dans les chapitres qui suivent, on présente un programme de recherche réalisé au laboratoire visant à mieux connaître le comportement géochimique des différents types de roche stérile du site minier Raglan, dans des conditions de température normale (de laboratoire) et froide.

CHAPITRE 3 MATÉRIEL, MÉTHODES ET CARACTÉRISATION DES ÉCHANTILLONS

Afin d'atteindre l'objectif principal de ce mémoire, soit de caractériser le comportement géochimique des stériles de la mine Raglan, il est primordial de connaître les principales propriétés physiques, chimiques et minéralogiques des roches stériles à l'étude. Ce chapitre présente les différents matériaux à l'étude, les méthodes utilisées pour les caractériser et les principaux résultats de caractérisation.

3.1 Échantillonnage

L'échantillonnage des différents types de roche stérile a été effectué le 18 août 2008. Il a été prévu de prélever les principaux types de roches retrouvés dans la formation de Raglan, soient la péridotite, l'olivine-pyroxénite, le gabbro, l'argilite et la volcanique (un basalte). À ce moment, les mines 2, 3 et Katinniq étaient en exploitation et la mine Kikialik était en démarrage. Il a été décidé, en collaboration avec la mine, d'échantillonner des roches stériles fraîchement dynamitées de toutes les mines en opération, sauf pour Katinniq, étant donné que les stériles qui y sont produits sont renvoyés à court terme en remblai rocheux dans les galeries souterraines. Les échantillons initiaux consistaient en des roches d'environ 5 à 30 cm de diamètre situées à de bonnes distances du gisement (qui ne contiennent donc pas de minerai). Les stériles ont été échantillonnés peu après leur production et avant leur transport vers les haldes afin d'être en présence de matériaux les plus frais possible (non altérés). Les matériaux échantillonnés sont affichés au Tableau 3.1.

Tableau 3.1: Échantillons de stériles et provenance

Type de roche	Provenance
Péridotite	Mine 3, niveau 1385, chantier 3F sous terre
Péridotite	Mine Kikialik (anciennement East Lake), rampe principale
Olivine-pyroxénite	Mine 3, niveau 1385 sous terre, chantier 3FU
Olivine-pyroxénite	Mine 2, sous-niveau 1375 sous terre
Gabbro	Mine 2, niveau 1475 sous terre
Argilite	Mine 3, mine à ciel ouvert 3
Volcanique (basalte)	Carrière près du parc à résidus

D'un point de vue visuel, on remarque peu de dépôts d'altération sur les surfaces des stériles, excepté pour la péridotite de la mine Kikialik (une mine qui entrainait en opération lors de l'échantillonnage, voir Figure 2-16). Des formations de couleur verdâtre, rougeâtre et blanchâtre qui sont présentes même à la surface d'échantillons fraîchement concassés portent à croire qu'elles contiennent un dépôt de minéraux d'altérations formés le long de fractures dans la roche. Cette roche a été échantillonnée relativement près de la surface du sol et les géologues de la mine rapportent que ce type d'altération et des produits d'oxydation des sulfures sont visibles jusqu'à plus de 15 mètres de profondeur à partir de la surface du sol.

3.2 Essais en colonnes

Pour quantifier le comportement géochimique se produisant dans les stériles à l'étude et évaluer plus précisément leurs potentiels de génération de drainage minier acide ou de drainage neutre contaminé, des essais en colonnes ont été effectués. Ce type de test est fréquemment utilisé pour statuer sur le potentiel de génération de drainage minier acide lorsque les essais statiques ne permettent pas la détermination d'un verdict sur ce point en raison des incertitudes reliées à la méthode. On a d'ailleurs pu constater que le verdict des essais statiques est incertain pour des stériles de la mine Raglan et que méthode ne considère pas le plein potentiel de neutralisation des silicates (voir les études préalables à la section 2.5.2). Si les stériles ne sont pas potentiellement générateurs d'acidité, les essais en colonnes vont également nous renseigner sur le potentiel de DNC. Dans cette étude, l'emphase est portée sur l'évaluation du potentiel de contamination des eaux de lixiviation par le nickel.

Avant d'effectuer les essais, les échantillons ont d'abord été préparés afin d'obtenir la granulométrie et les propriétés de base désirées. Les essais en colonnes ont ensuite été effectués sur une période d'un an. À la fin des essais, des essais de consommation d'oxygène ont été effectués dans le but de déterminer les taux de consommation d'oxygène (qui est un réactif de l'oxydation des sulfures) et d'évaluer ainsi la réactivité de certains des matériaux à l'étude, soit les plus réactifs.

3.2.1 Préparation des échantillons et mise en place

Les échantillons ont été préparés afin de monter dix colonnes (C1 à C10). Les sept premières colonnes contiennent chacune un des types de stériles échantillonnés, concassés et tamisés pour

obtenir une fraction granulométrique de 1,3 à 5 cm (sans fraction fine). Les huitième et neuvième colonnes sont des duplicatas visant à évaluer la reproductibilité de l'essai. Les critères pour la sélection des matériaux de ces deux colonnes sont une plus forte probabilité de réactivité (nickel et soufre en proportion suffisante dans le stérile) et une présence plus importante de ce type de stérile dans les haldes à stériles. L'olivine-pyroxénite de la mine 2 et la péridotite de la mine 3 ont été choisies car elles remplissent bien ces deux critères. Une dixième colonne contenant le tout-venant du concassage (<5 cm, sans lavage) a aussi été montée pour évaluer l'effet hydrogéochimique que les fines peuvent apporter (réactivité, migration vers le bas de la colonne, rétention d'eau, etc.).

Les échantillons ont été concassés à l'aide d'un concasseur à mâchoire ayant une ouverture de mâchoire de 5 cm. Le tamisage des matériaux des colonnes C1 à C9 a ensuite été effectué (voir Figure 3-1) avec un crible ayant une taille de maille de 1,3 cm pour exclure les fines particules.



Figure 3-1: Tamisage des matériaux des colonnes C1 à C9

Afin d'enlever le plus de poussières possible, les roches des colonnes C1 à C9 ont aussi été lavées. Après avoir été séchées, elles ont été homogénéisées avant d'être mises en place dans les colonnes. La quantité de stériles mis en place dans chaque colonne et la porosité des matériaux

(considérée équivalente au volume d'eau pouvant être introduit dans la colonne) en place dans les colonnes sont présentées au Tableau 3.2.

Tableau 3.2: Caractéristiques et propriétés des matériaux en place dans les colonnes

#	Contenu de la colonne	Masse de stériles (kg)	Porosité n (-)
C1	Péridotite mine 3	72,09	0,47
C2	Péridotite Kikialik (East Lake)	69,58	0,50
C3	Olivine-pyroxénite mine 3	67,79	0,50
C4	Olivine-pyroxénite mine 2	75,02	0,47
C5	Gabbro mine 2	76,80	0,47
C6	Argilite mine 3	59,41	0,53
C7	Volcanique	79,34	0,47
C8	Péridotite mine 3 duplicata	69,01	0,50
C9	Olivine-pyroxénite mine 3 duplicata	68,27	0,47
C10	Olivine-pyroxénite mine 2 avec fines	75,37	0,47

3.2.2 Description de l'essai en colonne

Les essais cinétiques en colonnes sont effectués dans des colonnes faites de PVC d'une hauteur de 80 cm et d'un diamètre de 30 cm. Un géotextile placé sur une plaque perforée a été posé au fond pour empêcher la migration des particules et permettre la circulation d'eau à partir d'une sortie percée dans le milieu de la base de la colonne, tel que montré à la Figure 3-2. Les colonnes ont été remplies par les échantillons présentés à la section 3.2.1 jusqu'à environ 10 cm du haut de la colonne.

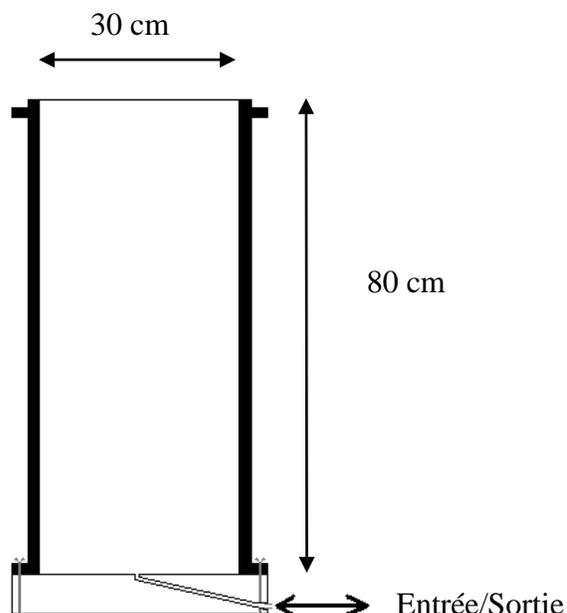


Figure 3-2: Coupe verticale d'une colonne

Les essais en colonnes sont effectués au laboratoire et comprennent 12 cycles de mouillage-drainage d'une durée de 28 à 32 jours chacun. Chaque cycle débute par un mouillage (ou une lixiviation), où on remplit la colonne avec de l'eau distillée jusqu'à la surface des stériles. L'eau provient d'un réservoir et pénètre par gravité par un tuyau situé au bas de la colonne (voir Figure 3-3). Le temps de remplissage d'une colonne est d'environ 45 minutes. L'eau reste en contact avec les stériles pour une durée de 4 heures. Ensuite, la colonne est vidée par la vanne du bas sur une durée d'environ 20 minutes et des analyses de pH, du potentiel d'oxydoréduction (Eh), de la conductivité, de l'acidité, de l'alcalinité et des éléments chimiques sont effectuées sur l'eau recueillie (voir section 3.5 pour la description de la caractérisation des échantillons liquides). Après la lixiviation, les colonnes sont laissées à l'air libre, à la température de la pièce, jusqu'au prochain mouillage qui sera effectué 28 à 32 jours plus tard. Aucune analyse post-démantèlement n'est prévue pour cet essai, car les changements des propriétés des stériles sont minimaux avec ce type de matériau peu réactif et de granulométrie grossière.



Figure 3-3: Colonnes et remplissage d'une colonne d'eau déionisée à partir d'un réservoir en hauteur (à droite)

3.2.3 Consommation d'oxygène par les stériles des colonnes

Les essais de consommation d'oxygène sont effectués sur les colonnes à la toute fin des essais cinétiques. Les essais effectués ici ne visent pas à évaluer un flux d'oxygène avec la méthode proposée par Elberling et al. (1994), mais plutôt à comparer la consommation d'oxygène sur une période donnée (5000 minutes, soit environ 3,5 jours) entre les différentes colonnes. Une lixiviation est d'abord effectuée selon la même méthode que pour les essais cinétiques en colonnes (voir section 3.2.2). Un couvercle est placé sur la colonne immédiatement après le drainage de l'eau. Un joint torique et l'application de graisse à vide assurent l'étanchéité entre celui-ci et la colonne.

Le couvercle est muni d'un capteur de concentration d'oxygène électrochimique de marque Teledyne R-17A de précision 0,1% O₂ et ayant un temps de réponse de 6 secondes. À l'intérieur de ce capteur, du plomb réagit avec l'oxygène et produit un voltage qui est fonction de la concentration d'oxygène. La consommation maximale de la cellule électrochimique est de 0,1

cm³ d'oxygène à température et pression normale (TPN), ce qui correspond à une baisse de 0,008% O₂ en moyenne dans une colonne pour la durée maximale de l'essai. Le voltage initial mesuré correspond à la concentration d'oxygène ambiante de 20,9%. Aussi, lorsque la concentration d'oxygène est de 0%, cette sonde n'émet aucun voltage. Une relation linéaire peut alors être tirée de ces deux couples de données. Le logiciel LoggerNet 3.1.5 est utilisé pour extraire les données de l'enregistreur CR1000 de Campbell Scientific qui mesure les voltages provenant des sondes (fréquence d'une mesure à la minute) pour une durée de 4 à 5 jours. La configuration d'un essai de consommation d'oxygène et une photo sont présentés à la Figure 3-4.

Sonde de concentration d'oxygène

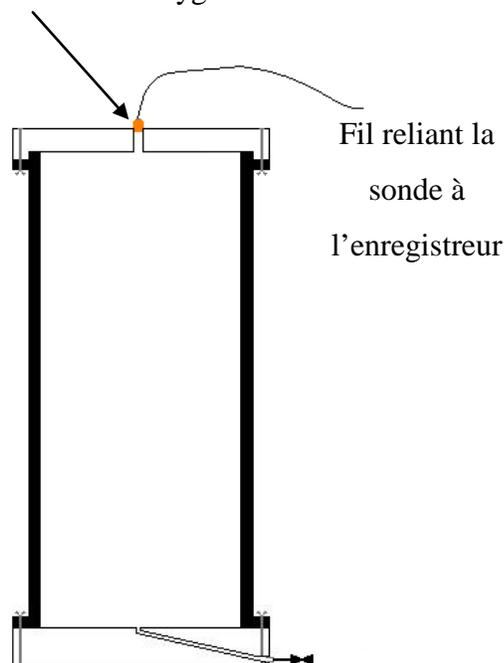


Figure 3-4: Configuration et photo d'une colonne lors des essais de consommation d'oxygène

3.3 Essai en mini-cellule d'altération et évaluation de l'effet de la température

Des essais cinétiques ont été effectués à plus petite échelle dans le but d'évaluer l'effet de la température sur le comportement géochimiques des stériles de la mine Raglan. On a jugé que la

mini-cellule était l'outil le plus approprié, car les essais sont plus facile à mettre en place et permettent d'amplifier les réactions (Villeneuve, 2004), ce qui permet de mieux les percevoir. Son format est aussi plus approprié que celui de la colonne pour la réalisation d'essai avec variation de température dans une chambre à atmosphère contrôlée de l'ordre du m³. Les résultats de l'essai en mini-cellule d'altération sont par contre moins adéquats que la colonne pour évaluer le potentiel de DNC et de DMA des stériles (Plante, 2010).

3.3.1 Préparation des échantillons

Les matériaux contenus dans les mini-cellules d'altération ont été préparés à partir de la fraction de particules fines rejetées lors du tamisage des matériaux des essais en colonnes. Ceux-ci ont été tamisés et le tout-venant inférieur à 4,75 mm des stériles a été conservé pour les essais. Après avoir été séchés, les échantillons ont ensuite été homogénéisés. Une masse de 67 g de chaque type de stériles a été pesée et ensuite ajoutée dans chaque mini-cellule.

3.3.2 Méthode de l'essai en mini-cellule d'altération

Les essais en mini-cellules d'altération sont basés une méthodologie développée par Cruz et al. (2001), modifiée par Villeneuve (2004). Ce sont aussi des essais cinétiques comportant des cycles de mouillage-séchage et les résultats de cette méthode sont souvent similaires à ceux des essais en cellule humide (norme ASTM D5744-96), mais sont obtenus sur une plus faible quantité d'échantillon (Villeneuve, 2004; Hakkou, Benzaazoua et Bussiere, 2008).

Au montage des mini-cellules, les 67 grammes de chaque type de roches stériles sont introduits dans des entonnoirs Büchner de 9 cm de diamètre interne, sur un papier filtre de pores de 0,45 µm. Le papier filtre est maintenu en place à l'aide d'une graisse de silicone. Celle-ci a aussi l'utilité d'éviter la perte de particules de l'échantillon dans les trous du Büchner, ainsi que la formation de chemins préférentiels sur les côtés du filtre. Le Büchner est placé sur un support sous lequel est placé un erlenmeyer à vide de 250 mL pour récupérer l'eau de lixiviation, tel que montré à la Figure 3-5.



Figure 3-5: Photo des mini-cellules d'altération de cette étude

Deux lixiviations par semaine sont effectuées (à tous les 3 et 4 jours en alternance). Au cours de celles-ci, 50 mL d'eau déionisée sont introduits dans la mini-cellule et demeurent en contact avec les stériles pour une période de 3 heures. L'eau est ensuite retirée sous vide de la cellule pour être récupérée dans l'erenmeyer. Les paramètres analysés sur les eaux récupérées sont le pH, le Eh, la conductivité électrique et le contenu en éléments chimiques (voir section 3.5 pour les analyses des échantillons liquides). Le schéma présenté à la Figure 3-6 résume le matériel utilisé et les manipulations effectuées.

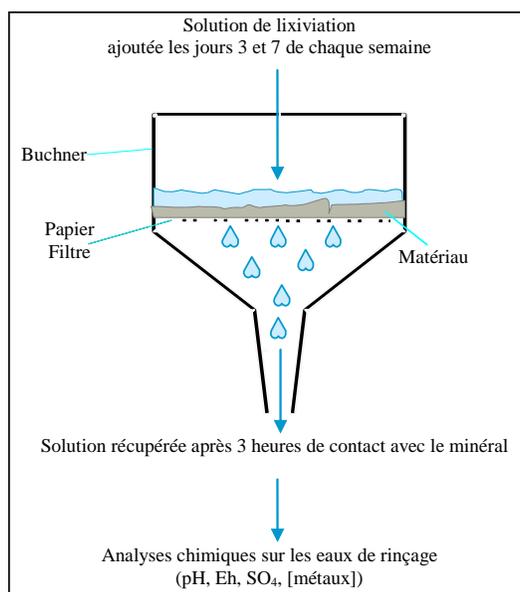


Figure 3-6: Schéma résumant les essais en mini-cellule d'altération (Bussière et al., 2005, adapté de Cruz et al., 2001)

Les essais en mini-cellules d'altération sont utilisés pour évaluer l'effet de la température sur les phénomènes géochimiques pouvant se produire dans les stériles en quatre étapes résumées au Tableau 3.3. À la première étape, 30 cycles sont effectués à la température de la pièce. Les cellules sont placées dans une chambre à atmosphère contrôlée pour les deuxièmes et les troisièmes étapes. Elles sont exposées pour 10 à 15 cycles à des températures de respectivement 10 et de -6°C. La température de -6°C a été choisie comme température plancher pour ces essais, car elle se rapproche de la température du pergélisol près de la surface du sol à la mine Raglan tout en étant conservatrice par rapport à son minimum de -6,9°C (voir Figure 2-15). Pour chaque cycle de lixiviation, les mini-cellules sont ramenées à la température de la pièce pour une période de 3 heures de contact avec l'eau ajoutée, suivie d'au maximum 3 heures nécessaires pour la vidange d'eau. La quatrième étape consiste à leur faire subir en alternance des cycles gelés et à la température de la pièce pour 10 à 15 cycles. En raison de difficultés techniques, les cycles gelés ont été effectués à -18°C.

Tableau 3.3: Étapes des essais en mini-cellules d'altération

Étape	Nombre de cycles	Température (°C)
#1	30	22
#2	10 to 15	10
#3	10 to 15	-6
#4	10 to 15	Alternance entre -18 et 22°C

À la fin des essais, une analyse post-démantèlement est effectuée sur les stériles ayant subi les essais en mini-cellules. Leur composition en éléments chimiques et leur minéralogie y sont analysées et servent ainsi à évaluer l'épuisement des minéraux et la formation de minéraux secondaires.

3.4 Méthodes de caractérisation des matériaux solides

Dans cette section, on présente les méthodes utilisées pour la caractérisation physique, chimique et minéralogique des échantillons de roches stériles à l'étude.

3.4.1 Caractérisation physique

Une caractérisation physique des échantillons de stériles utilisés pour les essais en colonne et en mini-cellule d'altération a été effectuée. Celle-ci inclut la distribution granulométrique, la densité

relative des grains et la surface spécifique des matériaux. La mesure d'un rapport de forme des matériaux utilisés dans les essais en colonnes a aussi été effectuée.

Distribution granulométrique et rapport de forme

L'analyse de la distribution granulométrique des roches stériles plus grossières (>300 μ m) est faite par tamisage selon la norme ASTM E 11-87, tandis que les fines sont analysées avec un granulomètre laser.

Après homogénéisation, le quart des roches utilisées pour les essais en colonnes ont été testés pour ces analyses. Le tamisage des roches de plus grandes dimensions (>16 mm) a été effectué manuellement pour les tamis de tailles de mailles suivantes : 45; 37,5; 26,5; 22,4; 19; et 16 mm. Un crible a été utilisé pour les mailles de plus petites dimensions ; 13,2; 11,2; 9,5; 8; 6,7; 5,6; et 4,75 mm. Pour la colonne C10 contenant des particules plus fines que 1,3 cm, une série de tamisages a aussi été effectuée pour les mailles suivantes : 4; 3,35; 2,8; 2,36; 2; 1,4; et 1,18 mm. Tout l'échantillon contenu dans la colonne C6 a été tamisé à la main, car ses roches trop friables auraient été brisées par les vibrations du crible. En ajout au tamisage, pour comparer les formes sphériques ou allongées des roches constituant les échantillons, une moyenne du rapport divisant le plus grand côté par le plus petit côté de 50 roches de chaque colonne a aussi été calculée pour chaque type de roche.

La granulométrie des particules grossières contenues dans les mini-cellules d'altération a été déterminée avec un crible et des tamis de mailles suivantes : 300; 425; 600; 850; 1180; 2000; 2360; et 4750 μ m. L'analyse granulométrique des particules de diamètres inférieurs à 300 μ m a quant à elle été effectuée avec un granulomètre laser Mastersizer S de Malvern Instruments (Lee Black, McQuay et Bonin, 1996). Celui-ci mesure la déviation d'un faisceau laser ayant traversé une suspension aqueuse du matériau à analyser. L'ampleur de cette déviation dépend de la taille de la particule rencontrée, tandis que l'intensité lumineuse du rayon dévié dépend de la quantité de particules d'une classe de taille donnée. Sa précision est de $\pm 2\%$ sur le diamètre médian en volume.

Densité relative des grains (D_r)

Un pycnomètre à hélium Micromeritics Accupyc 1330 est utilisé pour déterminer la densité relative des grains selon la norme ASTM D854-91. Préalablement à l'analyse, le matériel à analyser est broyé à une taille des grains inférieure à 500 μ m. Une masse connue de l'échantillon

est ensuite introduite dans un cylindre de volume connu. Un volume d'hélium y est introduit et sa pression est mesurée. Avec la loi des gaz parfaits, le volume de l'échantillon peut alors être calculé. La valeur de D_r est trouvée en divisant la masse par le volume de l'échantillon et par la masse volumique de l'eau à 4°C (qui est de 1 g/cm³). L'erreur absolue du résultat est évaluée à $\pm 0,01$.

Surface spécifique

La surface spécifique est mesurée au laboratoire pour les mini-cellules et est estimée par calculs pour les matériaux des colonnes étant donné la grosseur des roches qui ne permet pas son évaluation à l'aide d'appareil de mesure de la surface spécifique.

La surface spécifique des stériles utilisés pour les essais en mini-cellules d'altération est analysée à l'aide d'un analyseur Micromeritics Gemini III 2375, qui utilise l'adsorption d'azote gazeux à la surface du solide selon le modèle d'adsorption multicouches de Langmuir. La relation entre la quantité de gaz adsorbé sur l'échantillon et la surface spécifique est alors effectuée à l'aide de la méthode Brunauer, Emmett, and Teller (BET). L'échantillon à analyser est préalablement séché sous vide à 50°C pendant 24 heures avec un appareil de type Micromeritics VacPrep 061. Ensuite, l'analyse consiste à plonger deux tubes, l'un vide (référence) et l'autre rempli de l'échantillon à analyser, dans l'azote liquide. Un volume d'azote gazeux est envoyé afin qu'une pression identique soit appliquée dans les deux tubes. Comme le gaz s'adsorbe à la surface des grains de l'échantillon, la quantité d'hélium pénétrant dans le tube témoin est supérieure à celle entrant dans le tube vide. La différence de volume de gaz envoyé entre les deux tubes est reliée à la surface des grains de l'échantillon. Comme la masse de l'échantillon est connue, il est possible d'évaluer la surface par unité de masse, qui est la surface spécifique. L'erreur absolue est de $\pm 0,01$ m²/g.

Pour les matériaux utilisés dans les colonnes, la surface spécifique a été évaluée par une approche basée sur la granulométrie des échantillons montrée à l'équation 3.1 (White, 1995; Paktunc, 1999).

$$S_s = \frac{2\lambda(1+2\alpha)}{\alpha D_r} \sum \left(\frac{1}{d_i} \frac{m_i}{M} \right) \quad [3.1]$$

où S_s est la surface spécifique, α est le rapport de forme épaisseur/longueur du type de roche (servant à tenir compte de la forme non sphérique des particules), λ est le facteur de rugosité

(servant à tenir compte des imperfections de surface), d_i est une taille de maille, m_i est la masse retenue entre les tamis de mailles d_i et d_{i+1} et M est la masse totale de l'échantillon.

D'autres techniques existent également mais n'ont pas été retenues dans cette étude (Chapuis et Légaré, 1992; Menoret, 2001).

3.4.2 Caractérisation chimique

L'analyse élémentaire est effectuée sur les échantillons solides par spectrométrie d'émission atomique au plasma à couplage inductif (ICP-AES) avec un appareil Perkin Elmer Optima 3100 RL (Skoog et Leary, 1992). Les échantillons des mini-cellules et des colonnes ont tous été analysés pour vérifier si la composition chimique des stériles varie selon la taille des particules (matériaux des colonnes vs matériaux des mini-cellules d'altération). Une digestion des échantillons est d'abord effectuée avec du HNO_3 , du Br_2 , du HF et du HCl . Vingt-deux éléments sont analysés : l'aluminium (Al), l'arsenic (As), le baryum (Ba), le béryllium (Be), le bismuth (Bi), le calcium (Ca), le cadmium (Cd), le cobalt (Co), le chrome (Cr), le cuivre (Cu), le fer (Fe), le magnésium (Mg), le manganèse (Mn), le molybdène (Mo), le nickel (Ni), le plomb (Pb), le soufre (S), l'antimoine (Sb), le sélénium (Se), l'étain (Sn), le titane (Ti) et le zinc (Zn).

3.4.3 Caractérisation minéralogique

La minéralogie des roches stériles présentes dans les colonnes et les mini-cellules d'altération est déterminée par la microscopie optique (MO), le calcul minéralogique, la diffractométrie des rayons X (DRX), la microscopie électronique à balayage (MEB) et la microsonde électronique (MSE).

Calcul minéralogique

Il est parfois possible de quantifier certains minéraux par calcul minéralogique, tels certains sulfures présents en faible quantité dans les stériles. On doit d'abord préalablement identifier les minéraux à quantifier, obtenir les résultats de l'analyse ICP-AES des solides (chimie totale) et connaître la stœchiométrie des différents minéraux sulfurés présumés (teneurs théoriques ou mieux encore celles déterminées par microanalyse des minéraux de l'échantillon). Le problème est régi par le système d'équations 3.2 dont la résolution fait appel à un calcul matriciel (Benzaazoua, 1996).

$$M_{\text{chimie}}(n_{\text{éléments}}, n_{\text{échantillons}}) = M_{\text{éléments}}(n_{\text{éléments}}, n_{\text{minéraux}}) \cdot M_{\text{minéraux}}(n_{\text{minéraux}}, n_{\text{échantillons}})$$

[3.2]

où M_{chimie} est la matrice des compositions chimiques des différents stériles, $M_{\text{éléments}}$ est la matrice de la stœchiométrie ou des teneurs élémentaires dans les minéraux, $M_{\text{minéraux}}$ est la matrice des proportions minérales dans les stériles, $n_{\text{éléments}}$ est le nombre d'éléments chimiques considérés dans le calcul, $n_{\text{échantillons}}$ est le nombre d'échantillons de stériles et $n_{\text{minéraux}}$ est le nombre de minéraux à quantifier dans les échantillons. Un exemple de matrice des compositions chimiques (M_{chimie}) est présenté au Tableau 3.4. Le calcul minéralogique ne peut être effectué que si $n_{\text{éléments}} = n_{\text{minéraux}}$, c'est-à-dire si la matrice $M_{\text{éléments}}$ est carrée.

Tableau 3.4: Exemple de matrice de la composition élémentaire des principales phases minérales pour le calcul minéralogique

Élément	Pyrrhotite	Chalcopyrite	Pentlandite
S	0,3767	0,35	0,3323
Cu	0	0,346	0
Ni	0	0	0,3421

Diffraction des rayons X

Une analyse par diffraction des rayons X (DRX) est effectuée pour une première quantification minéralogique. Par cette analyse, des rayons X bombardent un échantillon sous différents angles. Chaque minéral contenu dans l'échantillon diffracte le rayon incident d'un angle précis (l'angle de Bragg) qui dépend de leur cristallographie. L'intensité du rayonnement qui a été diffracté pour chaque angle d'incidence est enregistré dans un diffractogramme et c'est ce dernier qui permet, dans une première phase, l'identification des minéraux constituant l'échantillon (Guinebretière, 2002). Dans une deuxième phase, les minéraux sont quantifiés avec l'analyse Rietveld (Taylor et Hinczak, 2001). Le logiciel EVA a été utilisé pour l'identification des minéraux et le logiciel TOPAS, qui utilise l'approche Rietveld, a permis la quantification de ces mêmes minéraux. La précision absolue de l'analyse est de 0,5 à 1% massique. Une incertitude existe aussi par rapport à l'identification des minéraux.

Pour les fins de l'analyse DRX, les roches stériles sont finement broyées en suspension dans de l'isopropanol avec un pulvérisateur McCrone Micronizing Mill pour atteindre une granulométrie

où environ 90% des particules sont de taille inférieure à 10 μm (i.e. D_{90} est de l'ordre de 10 μm). Ils sont par la suite séchés et analysés avec un diffractomètre Bruker A.X.S. Advance D8 produisant les rayons-X utilisant un tube de cuivre. Le mode $\theta/2\theta$ est utilisé pour les angles de diffraction de 5 à 70°.

Microscopie électronique à balayage couplé à la microanalyse

Le microscope électronique utilisé est de modèle Hitachi S-3500N couplé à un spectromètre EDS Oxford Instrument Link Isis. Cette technologie consiste à produire, à partir d'un filament de tungstène, un faisceau primaire d'électrons qui est ensuite concentré et accéléré avec une série de lentilles électromagnétiques. Celui-ci bombarde une surface polie d'un échantillon de manière à la balayer et interagit avec elle dans un certain volume (la « poire d'interaction »). Ce volume rétrodiffuse les électrons, les transmet et émet des électrons Auger et secondaires, des rayons X, ainsi que de la cathodoluminescence (Ammou, 1989; Skoog et Leary, 1992). Les électrons secondaires reproduisent l'image de l'échantillon en permettant de distinguer sa topographie. La quantité d'électrons rétrodiffusés quant à elle augmente avec le numéro atomique des atomes et montre les différences chimiques de la surface. Les zones constituées d'atomes de plus faibles numéros atomiques seront affichés en plus foncé et de plus forts numéros atomiques en plus pâle.

Le microscope électronique peut aussi être utilisé en microanalyse X, où les rayons X émis par les atomes de l'échantillon sont captés, permettant de distinguer et de quantifier les éléments chimiques présents. Les rayons X sont analysés avec un spectromètre à dispersion d'énergie (EDS) couplé au MEB et permettent de déterminer la chimie de surface d'un point de l'échantillon avec une limite de détection des éléments d'environ 1%.

Microsonde électronique (MSE)

Étant donné qu'un minéral doit contenir au moins 1% d'un élément chimique pour que celui-ci soit détecté par le MEB, des analyses ont été effectuées avec une microsonde électronique (MSE), qui utilise une technique plus précise pour l'analyse d'éléments chimiques (précision d'environ 200 ppm). Dans cette étude, le but de l'analyse par MSE est de détecter si du nickel est contenu en trace dans les sulfures qui n'en contiennent pas théoriquement (exemples : pyrite, pyrrotite) et dans certains minéraux neutralisants (exemples : serpentine, chlorite, feldspath et amphibole) (Perkins et al., 1995; Heikkinen et Räsänen, 2008). Les analyses ont été effectuées à

l'Université Laval avec une microsonde Cameca SX-100 contrôlée par une station de travail Sun Ultrasparc.

Le fonctionnement de la MSE est semblable à celui du MEB, où un rayon incident d'électrons bombarde l'échantillon à analyser qui produit des électrons secondaires, rétrodiffusés et Auger, ainsi que des rayons X selon sa composition chimique. L'émission X issue du matériau est analysée par plusieurs spectromètres à dispersion de longueur d'onde (WDS : Wave length Dispersion Spectrometer) pouvant quantifier les éléments majeurs et mineurs dans la plupart des matériaux. Le recours à plusieurs spectromètres permet de collecter et mesurer les rayonnements X de plusieurs éléments à la fois. Un résumé des observations effectuées à la microsonde électronique sur les matériaux étudiés et des limites de détection du nickel est présenté au Tableau 3.5.

Tableau 3.5: Nombre de minéraux de pyrite, de pyrrhotite et de gangue observés à la MSE pour chaque type de stérile et limite de détection du nickel (LD)

Minéral	LD (%)	Péridotite mine 3	Péridotite Kikialik	O-P mine 3	O-P mine 2	Gabbro mine 2	Argilite mine 3	Volcanique	Total
Pyrrhotite	0,072	9	1	12	10	4	4	6	46
Pyrite	0,072	1	9	0	2	6	4	4	26
Gangue	0,038	5	5	5	6	5	5	5	36
Total	-	15	15	17	18	15	13	15	109

3.4.4 Essais statiques

Les essais statiques effectués consistent à déterminer le potentiel de génération d'acidité (PGA) des stériles à l'aide d'un bilan acide-base. À cette fin, les potentiels de neutralisation (PN) et de génération d'acidité (PA) sont déterminés et interprétés par les méthodes suivantes.

Potentiel de génération d'acidité (PA)

Dans cette étude, nous avons utilisé le soufre total pour estimer le PA, tel que proposé par Sobek et al. (1978). On considère que le fait de ne pas soustraire le soufre présent dans la phase solide sous forme de sulfates tel que proposé par Lawrence (1990) n'a pratiquement pas d'impact puisque les matériaux sont frais et que l'étude de Bussière et al. (2008) a montré que le soufre se trouve essentiellement sous forme de sulfure dans les stériles de la mine Raglan (le soufre sous forme de sulfures est donc équivalent au soufre total).

L'équation permettant de calculer le potentiel de génération d'acidité d'un matériau est la suivante :

$$PA = 31,25 \cdot S_{\text{sulfures}} \quad [3.3]$$

où PA est le potentiel de génération d'acidité, 31,25 est le facteur de conversion stœchiométrique et S_{sulfures} est la teneur en soufre sous forme de sulfures de l'échantillon. Villeneuve (2004) a calculé une erreur relative de l'ordre de 7% du PA.

Potentiel de neutralisation (PN)

Le potentiel de neutralisation est évalué selon la méthode de Sobek modifiée par Lawrence et Wang (1997). Un test de réactivité de l'échantillon avec de l'acide chloridrique (HCl) 25% v/v est d'abord effectué. Ensuite, un volume d'acide chloridrique (HCl) déterminé avec le test précédent est mis en contact avec l'échantillon pour une durée de 24h. De l'acide est ajouté aux temps 0h, 2h et 22h au besoin. Un pH entre 2 et 2,5 est maintenu afin de consommer tous les minéraux neutralisants du matériau étudié. Une titration est par la suite effectuée avec de l'hydroxyde de sodium jusqu'à un pH de 8,3 pour déterminer la quantité d'acidité excédentaire. Avec les résultats de cet essai, le potentiel de neutralisation est calculé à l'aide de la formule suivante :

$$PN = [(N_{HCl} - V_{HCl}) - (N_{NaOH} - V_{NaOH})] \cdot 50/M \quad [3.4]$$

où N_{HCl} et N_{NaOH} sont les normalités des solutions de HCl et de NaOH, V_{HCl} et V_{NaOH} sont les volumes de solutions de HCl et de NaOH utilisés et M est la masse de l'échantillon soumise au test.

Critères d'interprétation du potentiel de génération d'acidité pour les essais statiques

Le potentiel de génération d'acidité peut être évalué avec les résultats des essais statiques selon le potentiel net de neutralisation (PNN) et le rapport PN/PA. Le PNN est la différence entre le potentiel de neutralisation et le potentiel de génération d'acidité ($PNN = PN - PA$) (Miller, Jeffery et Wong, 1991). S'il se situe sous -20 kg $CaCO_3/t$, le matériau est potentiellement générateur d'acidité. Il est non générateur d'acidité au-dessus de 20 kg $CaCO_3/t$ et se trouve dans une zone d'incertitude entre ces deux valeurs.

L'autre méthode servant à évaluer le potentiel de génération d'acidité est le rapport PN/PA. Si celui-ci se situe sous 1, le matériau est générateur d'acidité. S'il est supérieur à 3, il est non

générateur d'acidité (Adam, Kourtis, Gazea et Kontopoulos, 1997). Pour des valeurs entre 1 et 3, on ne peut pas statuer avec certitude sur le potentiel de génération d'acidité.

Les matériaux dont le PA est inférieur à 3,1 kg CaCO₃/t peuvent aussi être considérés comme non générateurs d'acidité, car ceux-ci ont statistiquement un risque très faible de générer de l'acidité (Li, 2000).

3.4.5 Évaluation du potentiel de sorption et de la forme du Ni sorbé

On a déjà observé des cas où le phénomène de sorption de métaux lourds sur les surfaces des stériles s'est avéré avoir un impact important sur la qualité de l'eau de drainage de haldes à stériles (Plante, 2010). En effet, lorsque la génération de contaminant est faible, il est possible que la sorption retarde l'apparition de concentration en élément problématique supérieure aux critères réglementaires. Il est donc pertinent d'effectuer dans cette études des essais de sorption dans le but d'investiguer l'ampleur que peut avoir ce phénomène dans la rétention du nickel par les stériles de la mine Raglan. Deux séries d'essais en batch en bécher et en flacons agités, ont été réalisées afin de comparer leurs cinétiques de sorption respectives.

Essai de sorption en bécher

Les essais en batch de sorption en bécher sont effectués dans le but d'évaluer l'ampleur de la capacité de rétention du nickel dans les stériles de la mine Raglan. Ces essais ont été effectués en cuvée et sans agitation afin d'obtenir des conditions qui s'approchent de celles retrouvées dans les essais en colonnes. Ils pourront ainsi fournir des informations qui aideront à l'interprétation de ces essais.

Un essai de sorption en bécher a été effectué pour chaque type de stérile sur un échantillon composé des mêmes matériaux que ceux utilisés pour les essais en mini-cellules d'altération (tout venant <4,75 mm, détails à la section 3.3.1). Lors de ces essais, 800 g d'un type de stérile est homogénéisé et mis en place dans un bécher de 1L avec 350 mL d'eau déionisée contenant 10 ppm (mg/L) de nickel en solution. Cette concentration en nickel a été choisie pour être représentative des concentrations retrouvées *in situ*. La solution a été fabriquée à partir de sulfate de nickel hexahydraté (NiSO₄.6H₂O). Ce sel de nickel comporte l'avantage de donner à l'eau une composition chimique se rapprochant de celle des eaux de drainage minier en raison de son contenu en sulfates. Les rapports liquide/solide volumiques se rapprochent de 1:1 et sont

semblables à ceux des essais en colonnes (qui ont entre 47 et 53% de vides). Aucun autre paramètre n'a été ajusté pour se rapprocher le plus possible des conditions des essais en colonnes (ex. : pH, force ionique).

Après l'insertion des stériles et de l'eau dans les béchers, ceux-ci ont été laissés au repos sans agitation pour la durée totale des essais. Le pH et le contenu en éléments chimiques de la solution en contact avec les stériles ont été testés à 0, 15 et 30 minutes après le début des essais, ainsi qu'à 1, 2, 4, 24 et 48 heures.

Essai de sorption en flacon agité

Des essais de sorption avec agitation et un rapport solide : liquide moins élevé ont aussi été effectués afin de se rapprocher de la capacité totale de rétention du nickel dans les stériles et ainsi réduire les risques que la diffusion dans le liquide soit un facteur limitant. Les essais de sorption en flacons agités ont été effectués sur trois types de stériles ayant eu des comportements différents lors des essais de sorption en béchers : la péridotite, l'olivine-pyroxénite et l'argilite de la mine 3 (voir section 3.6.5).

Pour la réalisation de ces essais, 250 mL d'eau déionisée contenant 10 ppm de nickel ont été versés dans un erlenmeyer contenant 10 grammes de stériles. Ces quantités ont été choisies pour ne pas que le rapport liquide : solide ne soit trop modifié au cours de l'essai. L'eau contaminée a été fabriquée de la même manière que dans les essais de sorption en béchers. L'erlenmeyer a ensuite été placé sur une table d'agitation à 200 rpm (voir Figure 3-7); des mesures du pH et des analyses chimiques de l'eau ont été effectuées à 2, 6, 24 et 48 heures.



Figure 3-7: Photographie des essais de sorption agités

Extractions séquentielles

Afin de déterminer la forme sous laquelle le nickel est sorbé dans les stériles, des extractions séquentielles ont été effectuées sur des échantillons de stériles (Zagury, Colombano, Narasiah et Ballivy, 1997; Plante, Benzaazoua, Bussière, Biesinger et Pratt, 2010b). Dans ces essais effectués en duplicatas, les échantillons sont mis en contact avec une solution visant à dissoudre des phases spécifiques du solide. Les résultats de ces essais fourniront des informations sur les mécanismes de rétention du nickel. Cette méthode est toutefois semi-quantitative. Pour cette étude, les extractions séquentielles ont été effectuées sur quatre types de stériles présentant des caractéristiques différentes : la péridotite des mines 3 et Kikialik, l'olivine-pyroxénite et l'argilite de la mine 3. Les essais ont été effectués sur des matériaux frais et sur les matériaux ayant subi l'essai de sorption agité expliqué précédemment dans cette section. Les matériaux ont été tamisés pour obtenir une granulométrie inférieure à 1,18 mm aux fins de l'essai.

Les extractions effectuées visent la séparation des groupes de composés suivants :

- Solubles et échangeables : 1 g d'échantillon sec est traité avec 8 ml de $MgCl_2$ (0,5 M, pH 7) pendant une heure à la température de la pièce.
- Phases solubles dans l'acide (carbonates ou spécifiquement adsorbés) : le résidu de la première étape est extrait avec 8 ml de NaO-acétique (1 M, pH 5) en agitant continuellement pendant 5 heures à la température de la pièce.
- Phases réductibles (oxydes et hydroxydes de Fe et Mn) : le résidu de la seconde étape est extrait avec 20 ml d'hydroxylamine hydrochlorure $NH_2OH-HCl$ (0,04 M) dans une solution d'acide acétique à 25 % (v/v) à $96\pm 3^\circ C$ en agitant occasionnellement pendant 6 heures.

Entre chaque extraction, une séparation des phases solides et liquides est effectuée par centrifugation à 4500 rpm pendant 5 minutes. Le surnageant est séparé à l'aide d'une micropipette et mis dans un tube de 50 ml en plastique. Le résidu est rincé deux fois avec 8 ml d'eau déionisée et centrifugé pendant 5 minutes. Le surnageant de rinçage est mélangé à l'extrait obtenu précédemment, acidifié et analysé tel que décrit dans la méthode d'analyse des échantillons liquides par ICP-AES (voir section 3.5.2).

3.5 Méthodes de caractérisation des échantillons liquides

Les méthodes d'analyses des eaux recueillies sont les analyses électrochimiques, les analyses élémentaires et les mesures de l'acidité et de l'alcalinité.

3.5.1 Analyses électrochimiques

Les analyses électrochimiques comprennent les mesures du pH, du potentiel d'oxydoréduction (Eh) et de la conductivité des échantillons liquides. Si ces analyses ne sont pas possibles dans un délai de 24h, les échantillons sont conservés au réfrigérateur jusqu'à leur analyse dans les deux semaines qui suivent.

pH

Une électrode de type Orion Triode 9157 avec compensation automatique de la température d'une incertitude absolue de 0,02 a été utilisée pour les mesures de pH, couplée à un appareil VWR SympHony SB90M5.

Eh

Le potentiel d'oxydoréduction est mesuré à l'aide d'une électrode et un appareil Benchtop Meter Orion 920A. Le Eh dépend des différents couples redox présents dans la solution (ex. : $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$) présents et de leur concentration. Une grande valeur de potentiel d'oxydoréduction signifie des valences plus élevées des métaux en solution et un milieu oxydant. Une valeur de 204 est ajoutée à la lecture de l'appareil pour effectuer une correction par rapport à la référence de l'électrode normale à l'hydrogène (ENH) (Skoog et Leary, 1992).

Conductivité

La conductivité est mesurée à l'aide d'un appareil portable Oakton Acorn CON 6 et consiste à appliquer une différence de potentiel dans une solution aqueuse (méthode APHA 2510, 1995). La capacité de la solution à conduire le courant est directement liée à la concentration d'espèces ioniques en solution. L'effet de la température est corrigé par le conductimètre; la gamme de mesure varie de 3,3 $\mu\text{S}/\text{cm}$ à 330 mS/cm et la précision est de $\pm 0,5\%$.

3.5.2 Analyses élémentaires

L'analyse chimique des échantillons liquides est effectuée par ICP-AES. Les échantillons sont d'abord filtrés avec des filtres de maille 0,47 μm , puis acidifiés avec 2% d'acide nitrique (HNO_3) pour la conservation à long terme. L'erreur relative de la quantification est d'environ 5%. Les éléments suivants sont analysés : aluminium (Al), arsenic (As), baryum (Ba), bismuth (Bi), calcium (Ca), cadmium (Cd), cobalt (Co), chrome (Cr), cuivre (Cu), fer (Fe), magnésium (Mg), manganèse (Mn), molybdène (Mo), sodium (Na), nickel (Ni), plomb (Pb), soufre (S), sélénium (Se), silicium (Si) et zinc (Zn).

3.5.3 Acidité et alcalinité

Les analyses d'acidité et d'alcalinité des eaux de rinçage ont été faites par titrage acide-base avec une burette jusqu'en novembre 2009, après quoi ils ont été effectués avec un titrateur automatique Titrino Plus 870 KF de Metrohm.

L'acidité d'une eau est une quantification de la réactivité de l'échantillon d'eau avec une l'ajout d'une base forte. Les acides minéraux forts, les acides faibles tels que les acides carbonique et acétique ainsi que les sulfates d'aluminium et de fer peuvent contribuer à la valeur totale de l'acidité de l'eau. Dans cette étude, l'hydroxyde de sodium (NaOH) est utilisé pour réagir avec les échantillons d'eau jusqu'à un pH de 8,3, où il est considéré que toutes les espèces acides de la solution sont neutralisées. L'acidité totale, exprimé en $\text{mg CaCO}_3/\text{L}$, a une erreur de 9% pour les échantillons ayant une acidité de l'ordre de 20 $\text{mg CaCO}_3/\text{L}$ et de 2% pour une acidité de l'ordre de 500 $\text{mg CaCO}_3/\text{L}$ (méthode APHA 2310, 1995).

L'alcalinité est quant à elle la capacité de l'échantillon d'eau à neutraliser l'ajout d'un acide fort. Elle dépend habituellement de son contenu en carbonates, en bicarbonates et en hydroxydes. Ces trois types de composés sont considérées totalement réagis lorsque de l'acide sulfurique (H_2SO_4) est ajouté à l'échantillon jusqu'à un pH de 4,5. L'alcalinité totale est elle aussi exprimée en $\text{mg CaCO}_3/\text{L}$ et est d'une précision de $\pm 1 \text{ mg CaCO}_3/\text{L}$ pour des mesures se situant entre 10 et 500 $\text{mg CaCO}_3/\text{L}$ (norme APHA 2320, 1995).

3.6 Résultats de la caractérisation des matériaux solides

Les principales caractéristiques physiques, chimiques et minéralogiques des matériaux contenus dans les mini-cellules d'altération et les colonnes sont présentées dans cette section.

3.6.1 Principales caractéristiques physiques

Les résultats de la distribution granulométrique, la densité relative des grains et la surface spécifique sont présentés dans les paragraphes suivants.

Distribution granulométrique et rapport de forme

La Figure 3-8 montre d'abord les courbes granulométriques des échantillons des colonnes et le Tableau 3.6 regroupe les principales informations tirées de celles-ci.

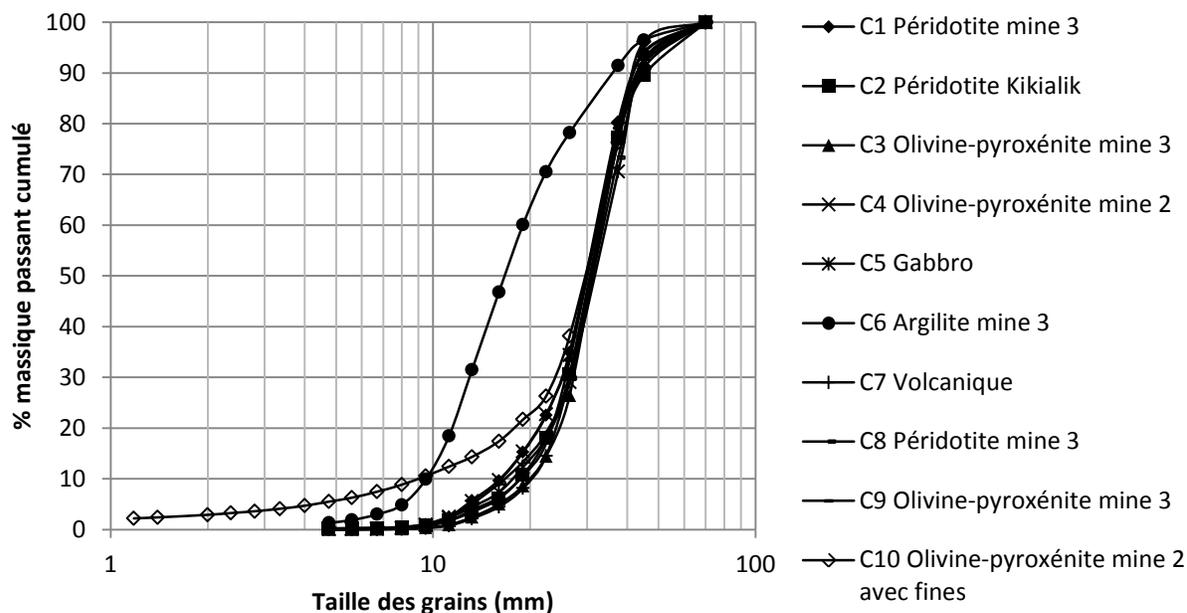


Figure 3-8: Distribution granulométrique des matériaux utilisés pour les essais en colonnes

Tableau 3.6: Paramètres obtenus de la distribution granulométrique des matériaux des colonnes

	D₁₀ (mm)	D₃₀ (mm)	D₅₀ (mm)	D₆₀ (mm)	C_u	C_c
C1	17	26	29,5	35	2,1	1,1
C2	19	26	31	32,5	1,7	1,1
C3	20	27,5	31	34	1,7	1,1
C4	17	26	30	32	1,9	1,2
C5	18	27	32	35	1,9	1,2
C6	9,5	13	17	19	2,0	0,9
C7	20	27	31	33	1,7	1,1
C8	17	27	32	34	2,0	1,3
C9	19	26	30	32,5	1,7	1,1
C10	9	24	29	32,5	3,6	2,0

Les colonnes sont constituées majoritairement de gravier grossier selon le système de classification USCS (ASTM D-2487) et les distributions granulométriques de leurs matériaux sont similaires à l'exception de la colonne C10 qui contient des traces de sable et silt (<6%). La colonne C6 contient un peu plus de gravier fin malgré une préparation semblable de l'échantillon en raison de la plus grande friabilité du matériau. Les D₁₀ varient de 9 à 20 mm, les D₃₀ de 13 à 27 mm, les D₅₀ de 17 à 32 mm et les D₆₀ de 19 à 35 mm. Les coefficients d'uniformité ($C_u = D_{60}/D_{10}$) sont semblables (1,7 à 2,1), sauf pour la colonne C10 où il est plus élevé (3,6) en raison de la présence de fines. Le coefficient de courbure ($C_c = D_{30}^2/(D_{10} \cdot D_{60})$) est aussi très semblable entre les matériaux (entre 0,9 et 1,3), sauf pour les matériaux de la colonne C10 où il est légèrement plus élevé (2,0).

Pour les matériaux contenus dans les colonnes, les rapports de forme (moyenne des plus grands côtés divisés par les plus petits) sont présentés à la Figure 3-9. On remarque que pour toutes les longueurs du plus grand côté (voir Annexe A.1), le matériau utilisé pour la colonne C6 (argilite) possède un beaucoup plus grand rapport de forme que les autres, soit 11 comparé à moins de 4. Son rapport de forme reflète bien l'aspect plane et allongé de ce type de roche, différent de celui des autres stériles qui sont de forme plus sphérique.

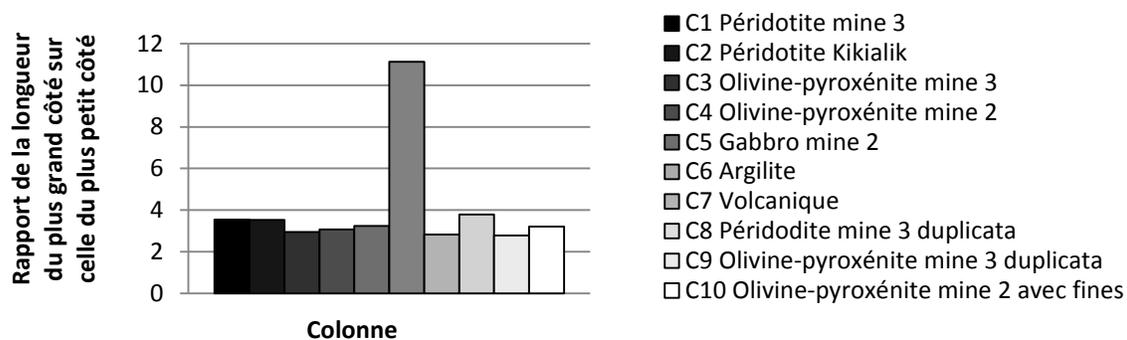


Figure 3-9: Moyenne des rapports de forme des matériaux utilisés pour les essais en colonnes pour chaque type de stérile

La distribution granulométrique des matériaux utilisés pour les essais en mini-cellules d'altération est présentée à la Figure 3-10. Les principaux paramètres tirés des courbes de distribution sont présentés au Tableau 3.7.

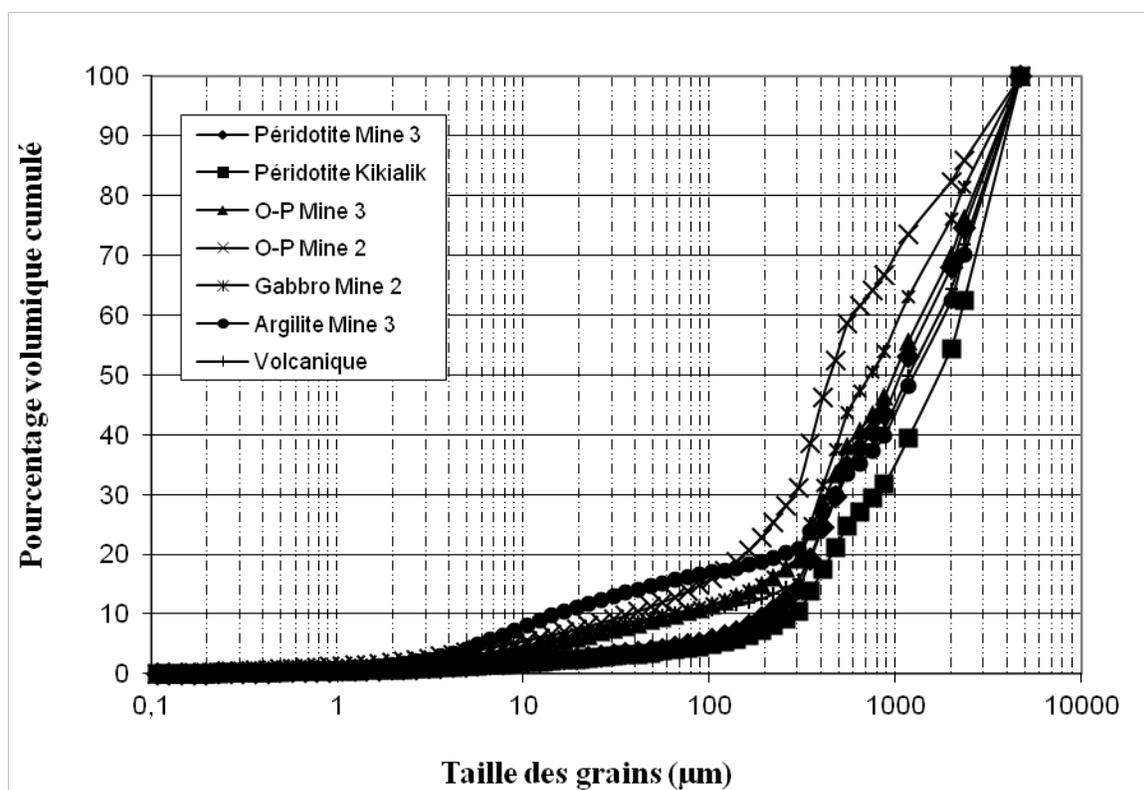


Figure 3-10: Distribution granulométrique des matériaux utilisés pour les essais en mini-cellules d'altération

Tableau 3.7: Paramètres obtenus de la distribution granulométrique des matériaux des mini-cellules d'altération

	D_{10} (μm)	D_{30} (μm)	D_{50} (μm)	D_{60} (μm)	C_u	C_c
Péridotite mine 3	210	480	1100	1600	7,6	0,69
Péridotite Kikialik	295	790	1750	2200	7,5	1,0
Olivine-pyroxénite mine 3	65	430	980	1400	21,5	2,0
Olivine-pyroxénite mine 2	38	295	440	590	15,5	3,9
Gabbro mine 2	62	390	740	1100	17,7	2,2
Argilite mine 3	15	470	1300	1800	120	8,2
Volcanique	66	490	1200	1700	25,8	2,1

Les matériaux des mini-cellules d'altération sont des sables contenant un peu de silt selon la classification USCS. Il est remarqué que la granulométrie est similaire pour tous les matériaux utilisés dans les mini-cellules d'altération, quoique l'olivine-pyroxénite mine 2 est légèrement plus fine et la péridotite Kikialik un peu plus grossière. Les coefficients d'uniformité sont semblables entre les types de stériles (7,5 à 25,8), sauf pour l'argilite (120) qui possède une granulométrie beaucoup plus étalée. Le même genre d'observation peut être fait pour le coefficient de courbure (0,69 à 3,9) qui est plus élevé pour l'argilite (8,2).

Densité relative des grains (D_r)

Les densités relatives des grains des matériaux utilisés dans les colonnes et dans les mini-cellules d'altération sont présentées au Tableau 3.8. Les valeurs de D_r des matériaux des colonnes et des mini-cellules sont très semblables, une différence maximale de 0,02 est observée entre les résultats d'un même type de stérile. Ces données peuvent être comparées aux résultats d'une étude effectuée sur 10 180 échantillons de roche stérile sur le site de la mine Raglan ayant un contenu en nickel inférieur à 0,1% (Nemcsok, 2009). On remarque une bonne concordance des résultats avec ceux de cette étude, où la volcanique et le gabbro ont des densités avoisinant 3 (moyennes respectives de 3,010 et 3,045 selon l'étude). Les échantillons de péridotite et d'argilite possèdent une densité relative inférieure d'environ 0,2 par rapport aux moyennes du site (2,987 et 2,982 selon l'étude).

Tableau 3.8: Densité relative des grains des stériles utilisés pour les essais en colonnes et en mini-cellules d'altération

Type de stérile	Mini-cellules d'altération Fraction 0-4,75mm	Colonnes Fraction 1,3-7 cm
Péridotite mine 3	2,7817	2,7647
Péridotite mine Kikialik	2,7231	2,7333
Olivine-pyroxénite mine 3	2,7974	2,7780
Olivine-pyroxénite mine 2	2,8225	2,8452
Gabbro mine 2	3,0154	3,0046
Argilite mine 3	2,7703	2,7908
Volcanique	2,9827	2,9829

Surface spécifique

Les résultats des surfaces spécifiques des mini-cellules d'altération et des colonnes sont présentés au Tableau 3.9. Les rapports de forme nécessaires à la méthode sont l'inverse des moyennes des rapports de forme montrés précédemment à la Figure 3-9. Ceux-ci ont été mesurés sur les matériaux des colonnes mais on estime qu'ils sont aussi valides pour les matériaux plus fins. L'argilite a un rapport de forme de 0,09 en raison de ses particules plates et allongées, tandis que les autres types de stériles sont plus sphériques et ont un rapport entre 0,28 et 0,35. Le facteur de rugosité est quant à lui déterminé avec les matériaux des mini-cellules d'altération pour que la surface spécifique calculée soit la même que celle trouvée avec l'analyseur. On constate que ce facteur est de 180 pour la péridotite de la mine Kikialik (les imperfections de surface seront abordées dans la section 3.6.3) et se trouve entre 5,8 et 13,4 pour les autres types de stériles. L'angularité des particules et la présence de minéraux en feuillets (phyllosilicates) contribuent grandement à l'obtention de plus grands facteurs de rugosité (et donc de surfaces spécifiques) pour les matériaux à l'étude. Ces derniers sont de l'ordre de grandeur du facteur de rugosité moyen de 7 applicable pour les particules fraîches d'une grande gamme de minéraux et des facteurs entre 50 et 200 qui ont déjà été déterminés pour des silicates primaires (White, 1995).

Tableau 3.9: Surface spécifique des échantillons des colonnes et des mini-cellules d'altération obtenues par l'analyseur et la méthode de White (1995)

Type de stérile	Mini-cellules d'altération			Colonnes		
	Ss analyseur (m ² /g)	Facteur de rugosité (λ)	Ss équation (m ² /g)	Colonne	Rapport de forme (α)	Ss équation (m ² /g)
Péridotite mine 3	1,349	13,4	1,349	C1	0,28	2,34E-03
				C8		2,32E-03
Péridotite mine Kikialik	15,46	180	15,46	C2	0,28	2,97E-02
Olivine-pyroxénite mine 3	1,049	8,9	1,049	C3	0,34	1,26E-03
				C9		1,27E-03
Olivine-pyroxénite mine 2	1,237	5,8	1,237	C4	0,33	8,91E-04
				C10		1,93E-03
Gabbro mine 2	1,233	7,3	1,233	C5	0,31	1,04E-03
Argilite mine 3	4,375	8,8	4,375	C6	0,090	5,71E-03
Volcanique	1,039	10,7	1,039	C7	0,35	1,38E-03

On remarque une différence de trois ordres de grandeur entre les surfaces spécifiques des matériaux des mini-cellules d'altération et des colonnes. On remarque que la surface spécifique de la péridotite de la mine Kikialik est supérieure à celle des autres matériaux (15,46 m²/g pour la mini-cellule d'altération et 0,0297 m²/g pour la colonne) en raison des croûtes d'altération présentes sur ses surfaces, comme il sera démontré à la section 3.6.3. L'argilite a aussi une surface spécifique un peu plus grande (4,375 m²/g pour la mini-cellule d'altération et 0,0057 m²/g pour la colonne) en raison de sa forme et de sa granulométrie plus fine. Les matériaux de la colonne C10 ont aussi une plus grande surface spécifique en raison de la présence de fines particules (0,00193 m²/g). Les valeurs des autres types de roche jouent entre 1 et 1,4 m²/g pour les stériles des mini-cellules d'altération et entre 8,91E-04 et 2,34E-03 pour les stériles des colonnes.

3.6.2 Principales caractéristiques chimiques

Une analyse élémentaire a été effectuée sur les matériaux utilisés pour les essais en colonnes et en mini-cellules d'altération. Les principaux résultats peuvent être trouvés aux Tableaux 3.10 et 3.11.

Tableau 3.10: Composition chimique des roches stériles utilisées pour les essais en colonnes (%)

Éléments	Péridotite mine 3	Péridotite Kikialik	Olivine-pyroxénite mine 3	Olivine-pyroxénite mine 2	Gabbro mine 2	Argilite mine 3	Volcanique
Al	2,02	2,07	1,87	2,37	8,02	9,08	5,85
Ca	1,65	1,10	0,669	3,21	7,62	0,576	7,95
Co	0,010	0,010	0,017	0,011	0,005	0,002	0,006
Cr	0,122	0,233	0,244	0,196	0,035	0,015	0,110
Cu	0,017	0,010	0,077	0,055	0,026	0	0,006
Fe	7,97	8,20	10,4	8,47	8,06	4,26	8,71
Mg	19,9	19,5	18,8	18,5	4,75	1,30	7,11
Mn	0,085	0,099	0,095	0,111	0,106	0,029	0,122
Ni	0,194	0,205	0,335	0,301	0,019	0,032	0,041
S	0,362	0,110	1,28	0,440	0,029	0,002	0,047
Ti	0,153	0,166	0,138	0,160	0,434	0,422	0,479
Zn	0	0	0	0	0,001	0	0

Les résultats montrent que les matériaux sont peu sulfureux. La teneur en soufre est plus élevée dans les olivine-pyroxénites et les péridotites (0,1 à 1,3%) que dans les autres types de stériles. De par la minéralogie retrouvée au site de la mine Raglan et parce que les matériaux étaient récemment produits lors de l'échantillonnage, il est supposé que la totalité du soufre dans les échantillons se trouve sous forme de sulfures. Le contenu en fer des échantillons varie de 8 à 10%, sauf pour l'argilite où il se rapproche de 4 à 5%. Parce que le rapport Fe :S est très différent de celui des sulfures (beaucoup plus de fer que de soufre), on estime que le Fe est surtout relié aux minéraux de la gangue. La teneur totale des éléments se trouvant habituellement dans les minéraux neutralisants, soient le calcium (Ca) et le magnésium (Mg), se situe généralement entre 15 et 22%, sauf pour l'argilite où elle est d'environ 2%.

Tableau 3.11: Composition chimique des roches stériles utilisées pour les essais en mini-cellules d'altération (%)

Éléments	Péridotite mine 3	Péridotite Kikialik	Olivine-pyroxénite mine 3	Olivine-pyroxénite mine 2	Gabbro mine 2	Argilite mine 3	Volcanique
Al	1,99	2,16	2,02	2,04	8,29	8,85	5,85
Ca	1,87	0,992	2,28	2,79	7,87	0,734	9,59
Co	0,013	0,014	0,013	0,015	0,005	0,003	0,007
Cr	0,186	0,256	0,236	0,177	0,045	0,028	0,121
Cu	0,050	0,041	0,061	0,110	0,033	0,006	0,018
Fe	9,04	8,98	9,53	9,76	8,83	4,57	9,20
Mg	19,4	19,3	18,0	18,8	4,91	1,34	7,01
Mn	0,096	0,115	0,092	0,105	0,124	0,047	0,144
Ni	0,323	0,264	0,245	0,427	0,026	0,046	0,045
S	0,600	0,160	1,01	0,803	0,439	0,014	0,154
Ti	0,151	0,173	0,140	0,149	0,449	0,459	0,475
Zn	0,041	0,036	0,015	0,031	0,188	0,003	0,030

De légères différences sont remarquées dans la composition chimique entre les matériaux des colonnes et des mini-cellules d'altération, mais aucune tendance générale n'est décelée (voir différences en Annexe A.2). Il est donc considéré que la granulométrie a peu d'influence sur la chimie dans cette étude. Des écarts sur la précision chimique peuvent aussi survenir en raison d'un effet de pépite ou d'autres manques par rapport à la méthode d'homogénéisation. Des études d'un autre matériau d'un gisement Ni-Cu ultramafique a toutefois montré une tendance à retrouver la magnétite dans les fractions plus grossières et la serpentine dans les fines (Heikkinen et Räisänen, 2008).

La Figure 3-11 montre la comparaison des teneurs en soufre et en nickel des stériles de cette étude avec les teneurs moyennes du site calculées dans l'étude de Rinker et al. (2003) et la moyenne théorique de la pentlandite.

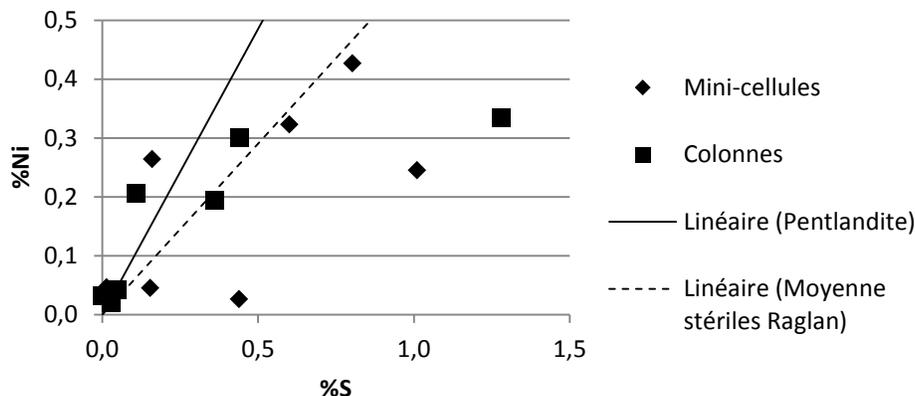


Figure 3-11: Comparaison des teneurs en soufre et nickel des stériles de cette étude avec les moyennes des stériles du site (Rinker et al., 2003) et les teneurs théoriques de la pentlandite

On remarque que la majorité des stériles possèdent un contenu en soufre plus élevé que celui de la pentlandite, et que celui-ci se rapproche de celui de l'étude de Rinker et al. (2003). Les deux points à l'extrême droite sur ce graphique sont les rapports de l'olivine-pyroxénite de la mine 3. Sa teneur en soufre élevée par rapport à la teneur en nickel pourrait provenir d'un plus grand rapport sulfures de fer : sulfures de nickel que les autres stériles. Aussi, les deux points à gauche du rapport de la pentlandite sont ceux de la péridotite de la mine Kikialik (C2). Son rapport Ni : S est presque 2 fois plus élevé que celui de la pentlandite. Il est donc probable que près de la moitié du nickel se trouvant dans ce stérile soit contenu autrement que sous forme de sulfure.

3.6.3 Principales caractéristiques minéralogiques

Les résultats des analyses minéralogiques des matériaux étudiés sont présentés dans cette section. Ils comprennent la microscopie optique, l'analyse par la diffraction des rayons X, la microscopie électronique à balayage et la microsonde électronique. Les résultats de calculs minéralogiques ont aussi complété la quantification obtenue par l'analyse DRX.

Microscopie optique

Des observations de sections polies de chaque type de stérile (monté en grains dans de la résine époxy) ont été effectuées par réflexion au microscope optique. Ces analyses montrent qu'en plus de la pentlandite ((Fe,Ni)₉S₈) et de la pyrite (FeS₂), de la pyrrhotite (Fe_{1-x}S) et de la chalcopyrite (CuFeS₂) sont présentes dans les stériles. Un peu de violarite (FeNi₂S₄) a aussi été observée dans les échantillons de péridotite des mines 3 et Kikialik. Un minéral contenant du chrome, la

ferrochromite (CrFe_2O_4), a aussi été décelé dans la péridotite de la mine 3. Quelques grains de sphalérite (ZnS) ont été observés dans la section polie relative à la péridotite de la mine Kikialik. Concernant les sulfures de fer, la pyrite est nettement dominante dans la péridotite de la mine Kikialik et la pyrrhotite est nettement dominante dans la péridotite de la mine 3 et les olivines-pyroxénites. La présence de pyrite et de pyrrhotite est plutôt partagée dans les autres stériles.

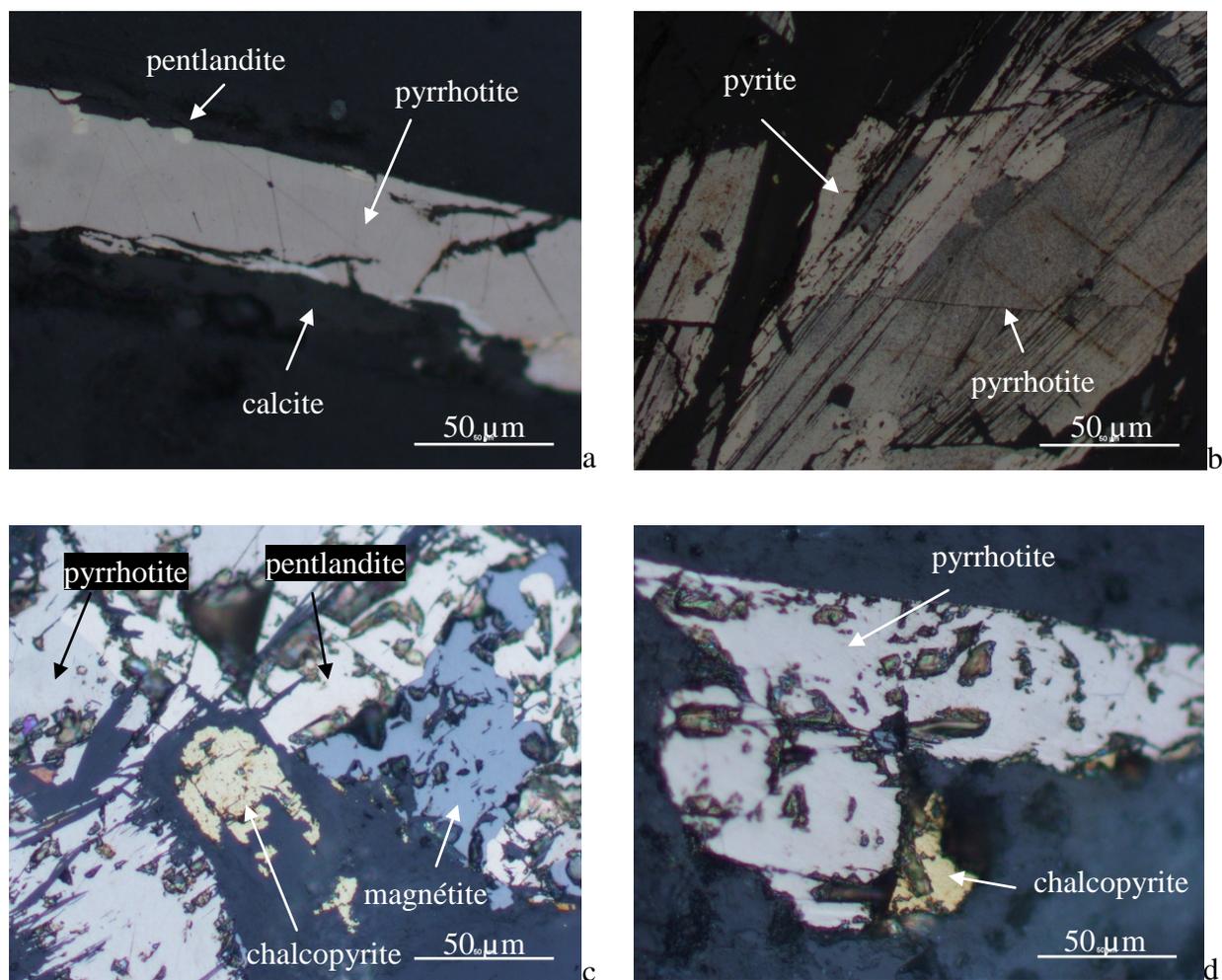


Figure 3-12: Photos prises au microscope optique en réflexion

Pour ce qui est des minéraux de la gangue, de la calcite (CaCO_3), qui est un carbonate ayant un pouvoir de neutralisation très important par rapport aux silicates (Kwong, 1993), n'a pas été détectée par DRX mais a été observée au microscope optique en réflexion et au MEB dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3. Les feldspaths plagioclases retrouvés dans le gabbro, l'argilite et la volcanique sont aussi plus précisément l'albite et l'oligoclase. La littérature confirme la

présence de serpentine sous forme d'antigorite dans les stériles (Lesher, 2007). Celle-ci, observée au MEB, contient toutefois une teneur en fer se trouvant à mi-chemin entre celles de la lizardite et de l'antigorite. Ces deux minéraux pourraient alors former une solution solide.

Quelques photos, montrant des exemples des sulfures retrouvés dans les stériles en microscopie optique, sont présentées à la Figure 3-12. La Figure 3-12a présente de la pyrrhotite contenant des inclusions de pentlandite et bordée par de la calcite dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3. On retrouve dans la Figure 3-12b de la pyrite et de la pyrrhotite contenues dans la péridotite de la mine Kikialik. La Figure 3-12c présente de la chalcopryrite, de la pyrrhotite, de la pentlandite et de la magnétite retrouvées dans l'olivine-pyroxénite de la mine 2. La Figure 3-12d montre quant à elle de la pyrrhotite et de la chalcopryrite observées dans la volcanique.

Analyse par diffraction des rayons X et calcul minéralogique

Les compositions minéralogiques des types de stériles utilisés lors des essais en mini-cellule d'altération et en colonne sont présentées respectivement aux Tableaux 3.12 et 3.13. Celles-ci ont été déterminées par DRX pour la plupart des minéraux et par calcul minéralogique pour les sulfures présents en faible proportion.

Les teneurs en sulfures ont d'abord été évaluées par calcul minéralogique selon les résultats ICP-AES (voir section 3.6.2) pour plus de précision et d'exactitude. Les observations au microscope optique ont servi à identifier les quatre principaux sulfures retrouvés dans les stériles : la pyrrhotite, la pentlandite, la chalcopryrite et la pyrite. Il a été considéré que tout le cuivre et le nickel des échantillons sont contenus respectivement dans la chalcopryrite et la pentlandite pour déterminer les teneurs de ces deux minéraux. Le ratio Ni :S de la péridotite de la mine Kikialik est toutefois beaucoup plus élevé que celui des autres stériles ; seulement le quart du Ni présent dans l'échantillon a donc été considéré compris dans la pentlandite (le Ni pouvant aussi être compris dans la violarite qui a un plus grand ratio Ni :S et dans des dépôts d'altération tel que montrés dans les résultats de la microscopie électronique). Toujours selon les observations au microscope optique, la péridotite de la mine 3 et l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 semblent contenir plus de pyrrhotite que de pyrite. On a donc considéré que le soufre n'entrant pas dans la composition de la chalcopryrite et de la pentlandite forme de la pyrrhotite pour ces trois types de

stériles et de la pyrite pour la péridotite de la mine Kikialik, le gabbro, l'argilite et la volcanique. Cela ne signifie toutefois pas qu'ils ne contiennent pas de ces deux minéraux simultanément.

On remarque que la pentlandite est le sulfure retrouvé en plus grande proportion dans tous les types de stériles, sauf pour l'olivine-pyroxénite de la mine 3 qui contient principalement de la pyrrhotite (2,33% et 1,89% respectivement dans la colonne et la mini-cellule d'altération). Les teneurs en pyrrhotite de la péridotite de la mine 3 et de l'olivine-pyroxénite de la mine 2 se trouvent quant à elles entre 0,24% et 0,74%. Peu de sulfures de fer sont observés au microscope dans la péridotite de la mine Kikialik, le gabbro de la mine 2, l'argilite de la mine 3 et la volcanique. D'ailleurs, pour ces types de stériles, le calcul minéralogique ne permet pas de déterminer leur présence dans les matériaux des colonnes, tandis qu'entre 0% et 0,71% de pyrite est calculé pour les matériaux des mini-cellules d'altération. Les teneurs en chalcopryrite des stériles sont quant à elles très faibles (0 à 0,32%). On remarque donc globalement que la péridotite de la mine Kikialik, le gabbro, l'argilite de la mine 3 et la volcanique contiennent moins de 1% de sulfures. Ces deux derniers, ainsi que l'échantillon de gabbro de l'essai en colonne en contiennent même de très minimes quantités (0,09% à 0,35%). Les échantillons de péridotite de la mine 3 et d'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 possèdent pour leur part entre 1,03% et 3,53% de sulfures. Pour six des sept types de stériles, la proportion de sulfures est plus grande pour les matériaux des mini-cellules d'altération que ceux des colonnes. Les mini-cellules d'altération étant constituées de particules fines récupérées du tamisat des matériaux des colonnes, il est donc possible que la roche se soit brisée davantage au niveau des sulfures lors du concassage, créant cette différence.

Tableau 3.12: Composition minéralogique des roches stériles utilisées pour les essais en mini-cellules d'altération

Méthode	Minéral et formule chimique	#U11602 Péridotite mine 3	#U11603 Péridotite Kikialik	#U11604 Olivine-pyroxénite mine 3	#U11605 Olivine-pyroxénite mine 2	#U11606 Gabbro mine 2	#U11607 Argilite Mine 3	#U11608 Volcanique
Analyse DRX	Quartz SiO ₂	1,02	2,29			4,54	36,32	4,4
	Magnétite Fe ₃ O ₄	11,92	7,51	10,59	19,83	2,04	0,99	1,56
	Albite NaAlSi ₃ O ₈					23,08	22,24	13,8
	Hornblende Ca ₂ [Mg ₄ (Al,Fe)]Si ₇ AlO ₂₂ (OH) ₂	2,44	5,29	3,02	4,32	34,51	1,78	46,13
	Augite (Ca,Na)(Mg,Fe,Al,Ti)(Si,Al) ₂ O ₆	9,16	2,1		13,76			
	Actinolite Ca ₂ (Mg,Fe) ₅ Si ₈ O ₂₂ (OH) ₂							
	Pigeonite (Mg,Fe,Ca)(Mg,Fe)Si ₂ O ₆							11,08
	Épidote Ca ₂ (Fe,Al)Al ₂ (SiO ₄)(Si ₂ O ₇)O(OH)					19,79		5,75
	Serpentine (Lizardite) Mg ₃ Si ₂ O ₅ (OH) ₄	20,84	22,67	11,53	19,42			
	Talc Mg ₃ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂			34,39				
	Muscovite KAl ₂ (Si ₃ Al)O ₁₀ (OH,F) ₂					4,17	29,92	2,2
Chlorite (Mg, Fe ²⁺) ₅ Al(Si ₃ Al)O ₁₀ (OH) ₈	52,18	59,69	37,46	38,83	10,34	8,69	12,85	
Calcul	Pyrite FeS ₂		0,1			0,71		0,17
	Pyrrhotite FeS	0,63		1,89	0,74			
	Chalcopyrite CuFeS ₂	0,14	0,12	0,18	0,32	0,10	0,02	0,05
	Pentlandite (Fe,Ni) ₉ S ₈	0,94	0,77	0,72	1,25	0,08	0,13	0,13

Tableau 3.13: Composition minéralogique des roches stériles utilisées pour les essais en colonnes

Méthode	Minéral et formule chimique	#U11602 Péridotite mine 3	#U11603 Péridotite Kikialik	#U11604 Olivine-pyroxénite mine 3	#U11605 Olivine-pyroxénite mine 2	#U11606 Gabbro mine 2	#U11607 Argilite Mine 3	#U11608 Volcanique
Analyse DRX	Quartz SiO_2	2,09	1,67			2,7	33,51	0,71
	Magnétite Fe_3O_4	13,2	7,22	9,55	12,9	1,14	0,6	0,72
	Albite $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$					25,17	19,84	18,92
	Hornblende $\text{Ca}_2[\text{Mg}_4(\text{Al},\text{Fe})]\text{Si}_7\text{AlO}_{22}(\text{OH})_2$	1,45	8,08	0,77	5,65	38,4		50,11
	Augite $(\text{Ca},\text{Na})(\text{Mg},\text{Fe},\text{Al},\text{Ti})(\text{Si},\text{Al})_2\text{O}_6$	7,89	3,11	5,13	30,6			
	Actinolite $\text{Ca}_2(\text{Mg},\text{Fe})_5\text{Si}_8\text{O}_{22}(\text{OH})_2$						1,48	
	Pigeonite $(\text{Mg},\text{Fe},\text{Ca})(\text{Mg},\text{Fe})\text{Si}_2\text{O}_6$							6,47
	Épidote $\text{Ca}_2(\text{Fe},\text{Al})\text{Al}_2(\text{SiO}_4)(\text{Si}_2\text{O}_7)\text{O}(\text{OH})$					18,29		6,13
	Serpentine (Lizardite) $\text{Mg}_3\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$	20,09	19,72	10,63	16,83			
	Talc $\text{Mg}_3\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$			42,47				
	Muscovite $\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH},\text{F})_2$					4,73	34,77	1,52
	Chlorite (Mg, Fe^{2+}) $5\text{Al}(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_8$	53,75	59,7	30,04	32,67	8,81	9,75	14,41
Calcul	Pyrite FeS_2							
	Pyrrhotite FeS	0,42		2,33	0,24			
	Chalcopyrite CuFeS_2	0,05	0,03	0,22	0,16	0,08		0,02
	Pentlandite $(\text{Fe},\text{Ni})_9\text{S}_8$	0,57	0,60	0,98	0,88	0,06	0,09	0,12

La gangue de tous les échantillons est composée en grande partie de silicates, incluant des phyllosilicates (serpentine, talc, muscovite, chlorite), un pyroxène (augite), une amphibole (actinolite) et un sorosilicate (épidote). Les échantillons de péridotite et d'olivine-pyroxénite contiennent entre 10 et 23% de serpentine et de 0 à 30% d'augite. Les péridotites et olivine-pyroxénites contiennent de 30 à 60% de chlorite, tandis que le gabbro, l'argilite et la volcanique en contiennent entre 8 et 15%. Dans les analyses quantitatives DRX, le rapport entre la chlorite et la serpentine a pu être mal évalué par TOPAS en raison de pics similaires dans leurs diffractogrammes. Le gabbro, l'argilite et la volcanique contiennent entre 13 et 26% d'albite et peuvent aussi contenir de l'oligoclase selon la littérature (Lesher, 2007). De l'hornblende est contenu dans le gabbro et la volcanique (34 à 50%) et est aussi présent à des teneurs inférieures à 8% dans les autres échantillons. Le gabbro comprend de 18 à 20% d'épidote et la volcanique de 5 à 7%. L'olivine-pyroxénite de la mine 3 possède de 34 à 43% de talc. L'argilite contient environ 30% de muscovite et environ 35% de quartz (tous deux présents à moins de 5% dans les autres échantillons). Les péridotites et olivine-pyroxénites contiennent de 7 à 20% de magnétite (présent à moins de 2% dans les autres échantillons).

Microscopie optique et microscopie électronique à balayage couplée à la microanalyse

Des observations en microscopies optique et électronique à balayage ont été effectuées dans le but de mieux cerner la minéralogie du nickel. Elles ont aussi permis de détecter des minéraux présents en faible quantité dans les stériles et non identifiés lors de la caractérisation par DRX.

Des dépôts d'altérations de couleurs rougeâtres, verdâtres ou blanchâtres sont abondants en surface des fragments de roche de la péridotite de la mine Kikialik. On retrouve parfois ceux-ci sur les surfaces des autres types de stériles, mais de façon beaucoup moins fréquente comparativement à ceux de ce type de stérile. La Figure 3-13 montre des photographies par caméra standard et au microscope électronique à balayage d'un dépôt d'altération rougeâtre de la péridotite de la mine Kikialik (coupe transversale). On observe dans celui-ci un profil de la surface vers l'intérieur de la roche formé de deux couches distinctes et dont la couche extérieure est très poreuse.

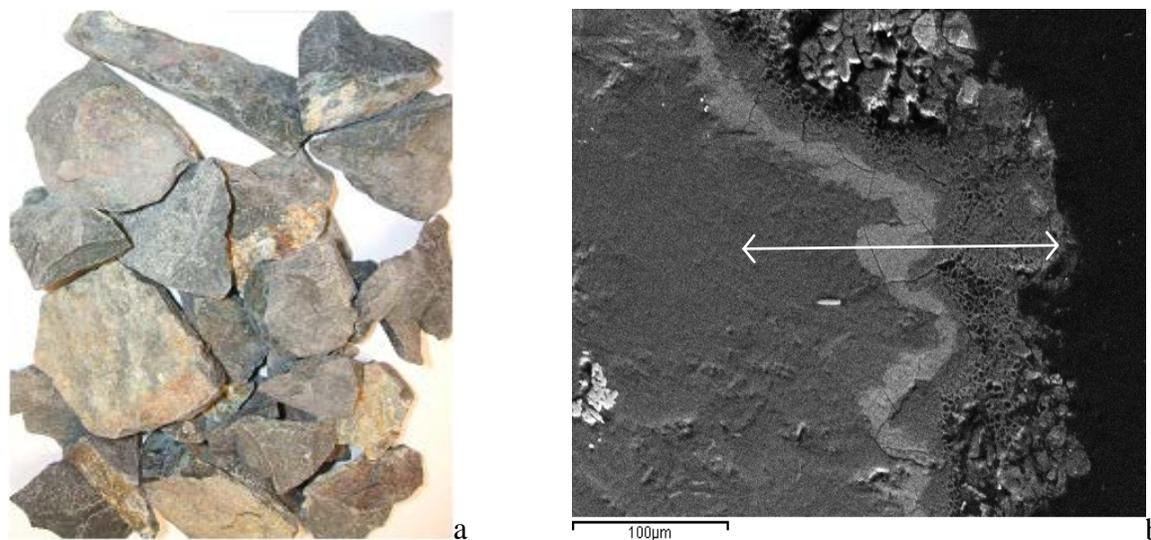


Figure 3-13: Photographies des altérations de la péridotite de la mine Kikialik a) surface des roches, b) coupe transversale par microscope électronique à balayage (où la surface du minéral se trouve à droite).

Des cartographies X de l'altération susmentionnée à la Figure 3-13b sont montrées à la Figure 3-14 pour six éléments chimiques (O, Mg, Al, Si, Fe, Ni). Sur ces cartographies, une plus grande luminosité représente une plus grande présence d'un élément chimique à cet endroit et une zone éteinte représente son absence.

On observe sur les cartographies X une gangue composée de serpentine (présence de O-Mg-Si) et probablement aussi de chlorite (présence de O-Mg-Al-Si-Fe), ainsi que les deux couches distinctes de la zone d'altération. La couche intérieure est enrichie en Fe et en Ni, et la couche extérieure l'est en Si et Ni. Pour mieux observer les tendances chimiques, une analyse linéaire a été effectuée sur le trait dessiné sur la Figure 3-13. Les résultats des concentrations élémentaires du centre du minéral vers l'extérieur sont montrés à la Figure 3-15.

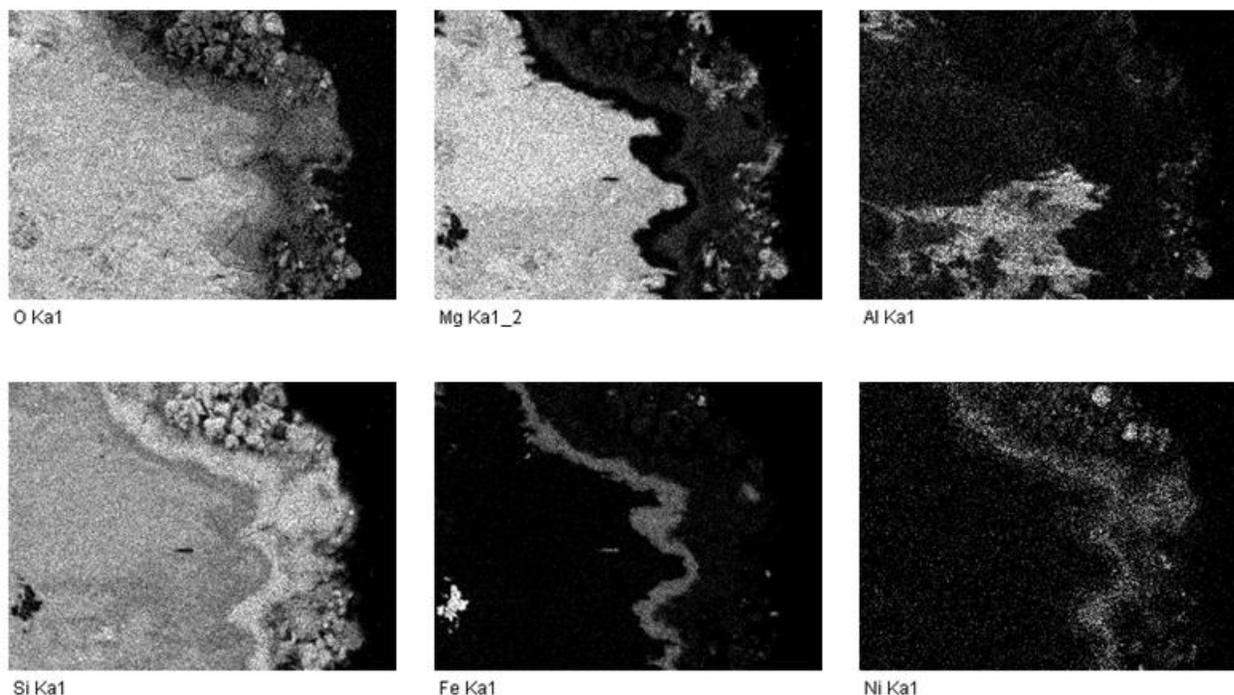


Figure 3-14: Concentrations élémentaires dans une coupe transversale d'un minéral de gangue de la péridotite de la mine Kikialik montré à la Figure 3-13b, du centre du minéral vers sa surface (points 1 à 20)

Dans ce graphique, on remarque notamment la couche interne d'altérations riche en O-Si-Fe et qui contient en moyenne 1,5% Ni. La présence d'oxydes et oxyhydroxydes de fer pourraient expliquer la forte présence de cet élément dans cette couche et la couleur rouge du dépôt. La couche externe est quant à elle composée de O-Mg-Si-Fe et contient en moyenne 4,1% Ni.

Il est à noter que l'observation de ce dépôt n'est qu'un exemple et n'est pas nécessairement représentatif de tous les dépôts d'altération présents sur les surfaces des roches de péridotite de la mine Kikialik. D'ailleurs, le dépôt observé est rougeâtre, mais des dépôts blanchâtres et verdâtres sont aussi présents et n'ont pas été observés au MEB. Vraisemblablement, la couleur du dépôt verdâtre pourrait provenir de la présence de sulfates de fer.

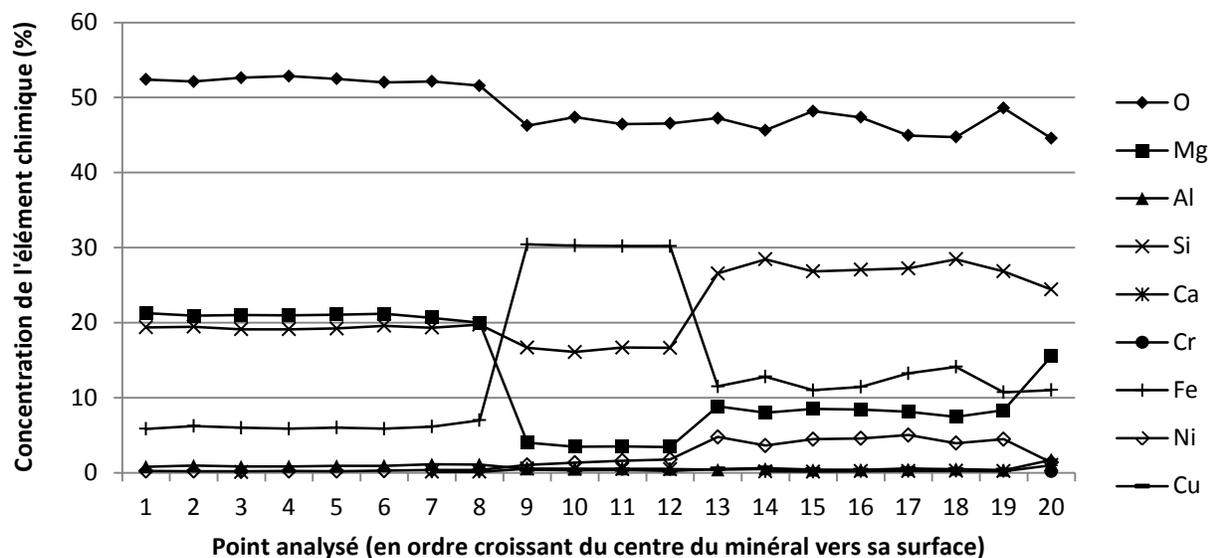


Figure 3-15: Profil linéaire des concentrations élémentaires dans une coupe transversale d'une roche de gangue de la péridotite de la mine Kikialik (points 1 à 8) et de ses deux couches de dépôts d'altérations (points 9 à 12 et 13 à 20)

Microsonde électronique

Les résultats des analyses à la microsonde électronique sont résumés brièvement à la Figure 3-16. En bref, 4 des 26 minéraux de pyrite observés sont nickélifères, le reste n'en contient pas ou moins que la limite de détection de 0,072%. Pour la pyrrhotite, la présence de nickel au-dessus de la limite de détection est plus fréquente et retrouvée pour 44 des 46 minéraux observés. La gangue semble quant à elle posséder quelques minéraux contenant une très faible proportion de nickel ; 14 parmi les 36 minéraux observés possèdent entre 0,038 et 0,2% de nickel. Ces résultats indiquent qu'une partie du nickel généré pourrait provenir, en plus de la pentlandite, de la pyrrhotite et dans une moindre mesure de la pyrite. Les résultats détaillés (par type de stérile et la présence d'autres métaux dans les minéraux) sont disponibles en Annexe A.3.

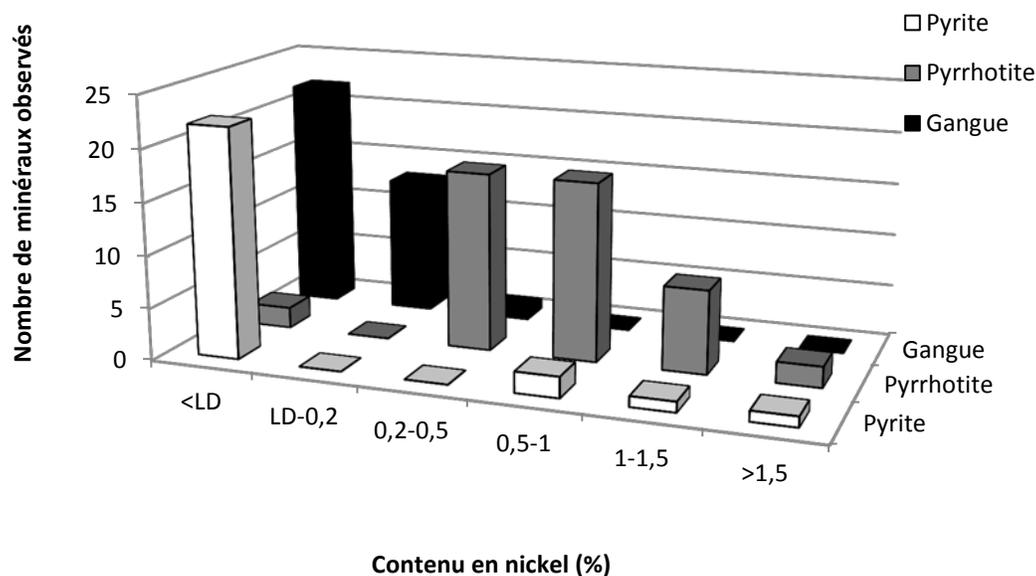


Figure 3-16: Résultats des observations de la teneur en nickel dans des grains de pyrite, de pyrrhotite et des minéraux de gangue, tous types de stériles confondus (LD = limite de détection)

3.6.4 Essais statiques

Les résultats des PA, PN, PNN et des rapports PN/PA sont résumés au Tableau 3.14. L'interprétation des résultats a été effectuée selon les critères mentionnés dans la section 3.4.4. On remarque que les PNN des matériaux des mini-cellules d'altération sont souvent supérieurs à ceux des colonnes en raison de leurs PN plus élevés. L'argilite de la mine 3, la volcanique et le gabbro de la mine 2 (de la colonne seulement) sont considérés non générateurs d'acidités en raison de leur teneur en soufre inférieure à 0,3%. Les matériaux sont pour la plupart non générateurs d'acidité. Le verdict de génération d'acidité de l'olivine-pyroxénite de la mine 2 est à la limite entre non générateur d'acidité et à potentiel incertain. Le verdict est pour sa part incertain pour les échantillons de gabbro de la colonne et d'olivine-pyroxénite de la mine 3 en raison de leur PNN qui se situe entre -20 et 20 kg CaCO₃/t et/ou leur rapport PN/PA qui se trouve entre 1 et 3.

Tableau 3.14: Résultats des essais statiques et verdicts de génération d'acidité

		Péridotite mine 3	Péridotite Kikialik	O-P mine 3	O-P mine 2	Gabbro mine 2	Argilite mine 3	Volcanique
Mini-cellules	PN	57,5	36,7	75,4	64,2	24	0	100,6
	%S	0,6	0,16	1,01	0,8	0,44	0,02	0,15
	PA	18,8	5	31,6	25,1	13,7	0,4	4,8
	PNN	38,7	31,7	43,8	39,1	10,3	-0,4	95,8
	PN/PA	3,1	7,3	2,4	2,6	1,8	0,0	21,0
	Verdict	Non générateur d'acidité	Non générateur d'acidité	Incertain	Incertain/non générateur	Incertain	Non générateur d'acidité	Non générateur d'acidité
Colonnes	PN	40,5	29,3	37,5	33,1	10,1	1,8	41,9
	%S	0,36	0,12	1,28	0,44	0,03	0,003	0,04
	PA	11,3	3,4	40	13,8	0,9	0,1	1,5
	PNN	29,2	25,9	-2,5	19,3	9,2	1,7	40,4
	PN/PA	3,6	8,6	0,9	2,4	11,2	18	27,9
	Verdict	Non générateur d'acidité	Non générateur d'acidité	Incertain	Incertain/non générateur	Non générateur d'acidité	Non générateur d'acidité	Non générateur d'acidité

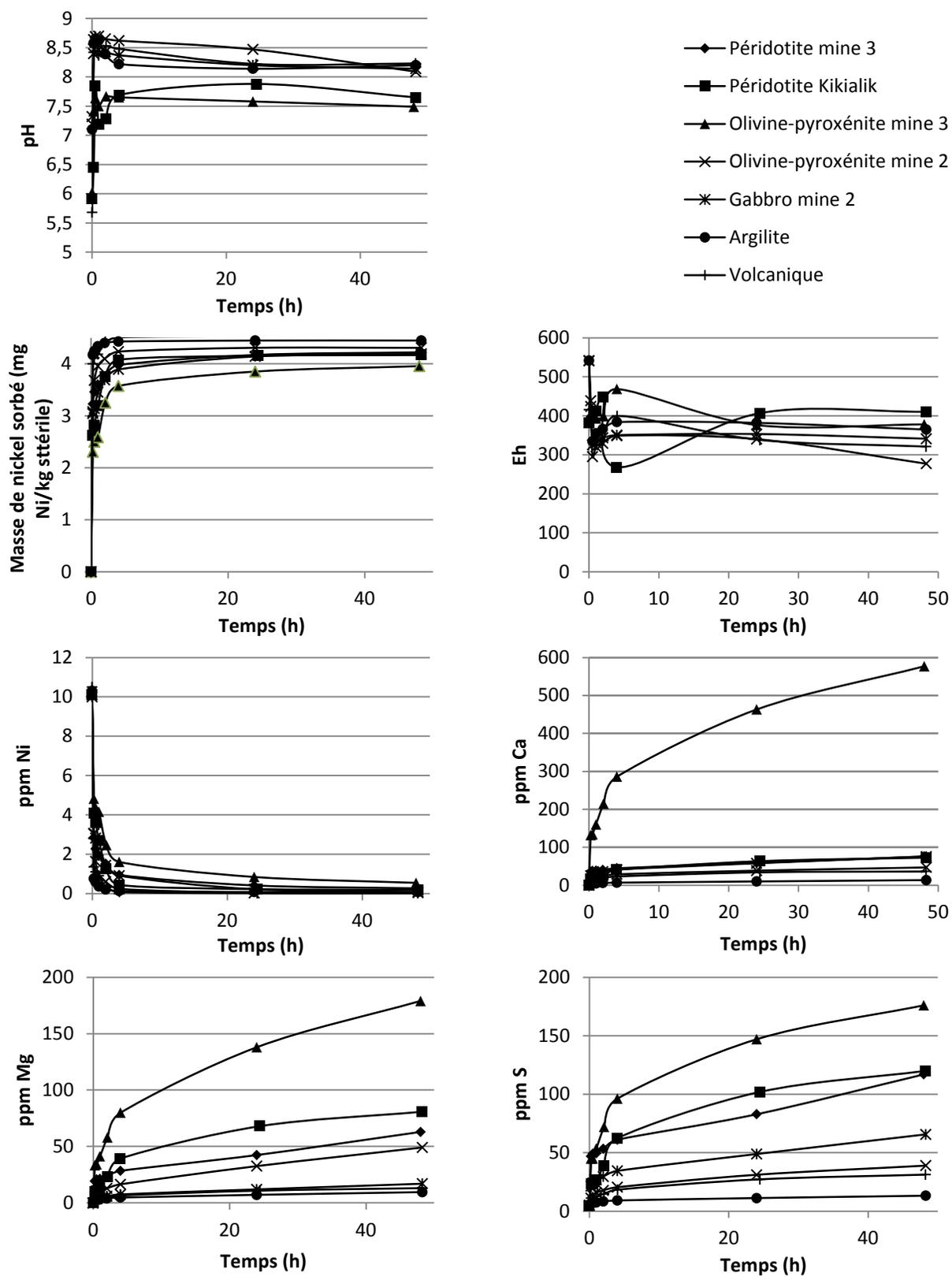
3.6.5 Évaluation du potentiel de sorption et de la forme du Ni sorbé

Les résultats des essais de sorption en bécher et en flacons agités sont présentés afin d'évaluer le potentiel de sorption des échantillons de stériles. Les résultats des extractions séquentielles visent ensuite à évaluer la forme sous laquelle le nickel est sorbé après les essais en flacons agités.

Essai de sorption en bécher

Les résultats de pH, de Eh, de concentrations en Ni, S, Ca et Mg et de masse de Ni sorbé par masse de stérile en fonction du temps sont présentés à la Figure 3-17. On remarque que le pH des solutions en contact avec la péridotite de la mine Kikialik et l'olivine-pyroxénite de la mine 3 se situent la plupart du temps entre 7,5 et 8, tandis qu'il est entre 8 et 8,7 pour les autres types de stériles. Les valeurs de Eh des lixiviats sont positives (entre 260 et 550 mV), signifiant que les conditions sont oxydantes.

Figure 3-17: Évolution des pH, Eh et concentrations ioniques des essais de sorption en béchers



Les concentrations de nickel chutent brusquement dans les 15 premières minutes de l'essai et se stabilisent dans les quatre premières heures pour atteindre à la fin de l'essai entre 0,19 et 0,55 ppm pour la péridotite des mines 3 et Kikialik et l'olivine-pyroxénite de la mine 3 et moins de 0,1 ppm pour l'olivine-pyroxénite de la mine 2, le gabbro, l'argilite et la volcanique. Entre 3,95 et 4,45 mg Ni/kg stérile a donc été sorbé au cours de l'essai. 95% du Ni a été sorbé par l'olivine-pyroxénite de la mine 3. Cette valeur se situe à plus de 97% pour les autres types des stériles. On remarque la production de beaucoup de produits d'altération (Ca, Mg et S) par l'olivine-pyroxénite de la mine 3. À la fin de l'essai, on atteint 577 ppm de Ca, 179 ppm de Mg et 176 ppm de S pour ce type de stérile et moins de 80 ppm de Ca, 81 ppm de Mg et 120 ppm de S pour les autres types de stériles.

Dans cette étude, on remarque que les valeurs de concentration en nickel selon le temps respectent la cinétique de sorption d'ordre 2 qui peut s'exprimer à l'aide de l'équation 3.5 (Gupta et Bhattacharyya, 2006).

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{ks_2q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad [3.5]$$

où t est le temps, q_e est la quantité sorbée par masse de solide à l'équilibre, q_t est la quantité sorbée par masse de solide au temps t et ks_2 est la constante du taux de sorption d'ordre 2. Le paramètre q_e a été estimé par la concentration de Ni dans les solutions à 48 heures. On remarque graphiquement à la Figure 3-18 la bonne concordance entre les points expérimentaux et les droites générées avec les paramètres donnés au Tableau 3.15; les coefficients de détermination sont aussi présentés dans ce tableau. Les valeurs de q_e ont été fonction du pourcentage de nickel sorbé et de la quantité de nickel totale initiale par masse de solide qui variait légèrement selon le type de stérile en raison de leur densité relative et de la concentration en Ni initiale de l'eau qui n'était pas parfaitement identique pour chaque type de stérile. Ceux-ci se trouvent entre 3,95 et 4,53 mg/kg. Ce qui détermine la vitesse de sorption est la constante ks_2 . Plus celle-ci est grande, plus la sorption sera rapide. On remarque que sa valeur est de 10,84 mg/kg/h pour l'argilite qui sorbe donc le nickel le plus rapidement. Elle est de 4,56 mg/kg pour la volcanique et entre 0,61 et 2,62 pour les autres types de stériles.

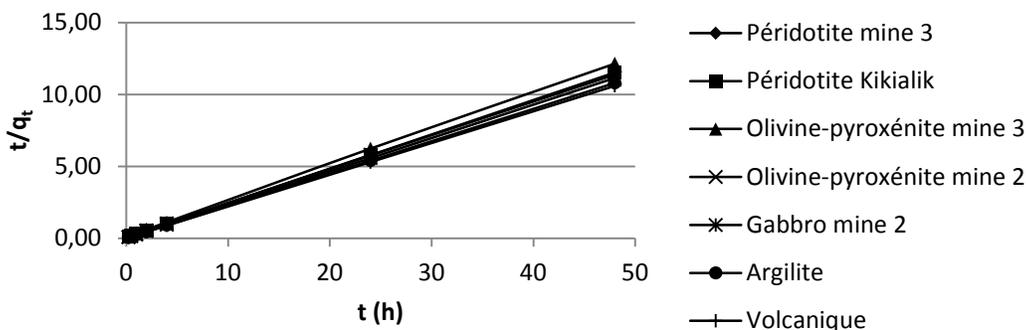


Figure 3-18: Linéarisation selon la cinétique de sorption d'ordre 2 de la sorption du nickel lors de l'essai en bécher

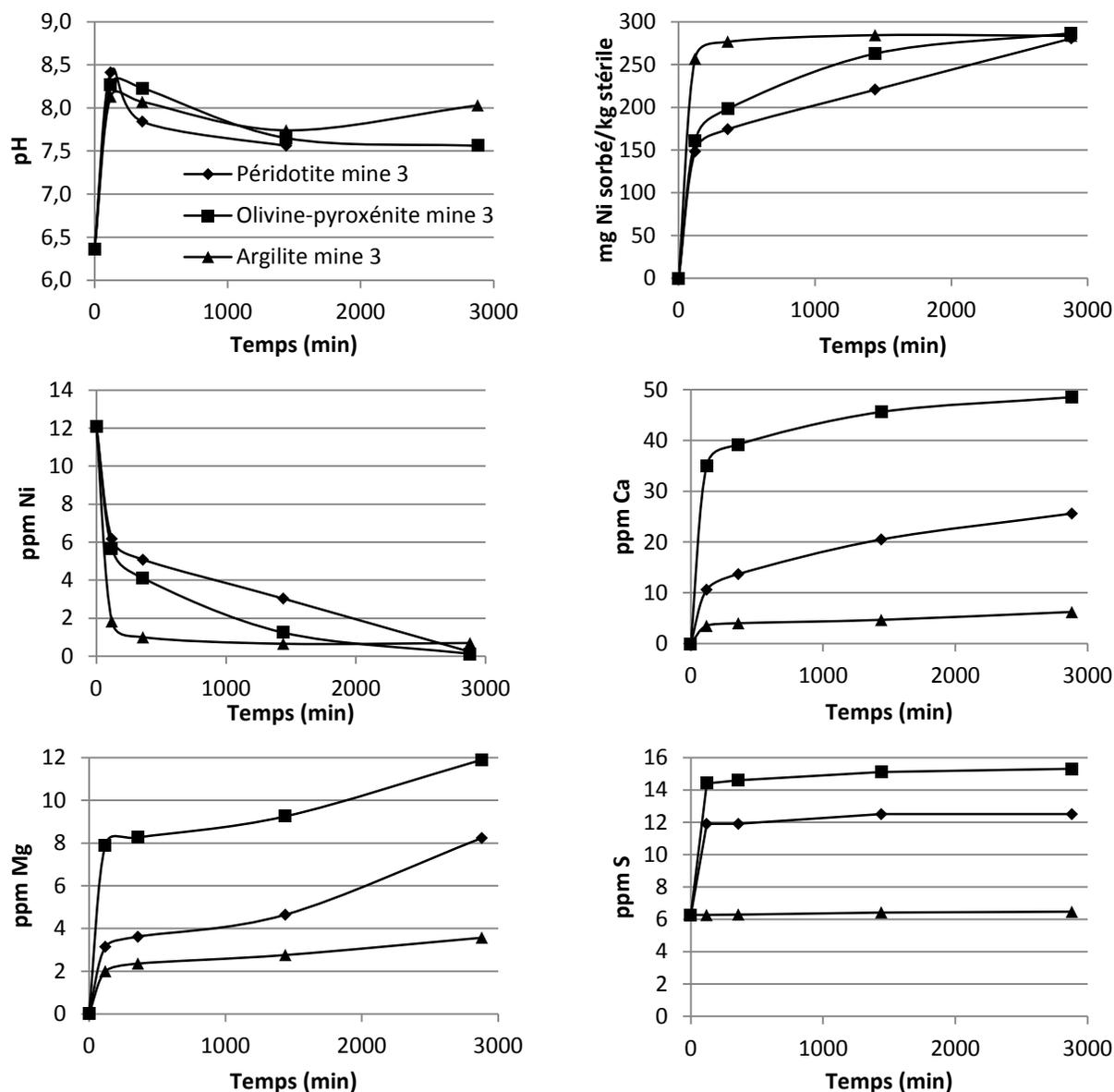
Tableau 3.15: Paramètres de la cinétique de sorption d'ordre 2 de la sorption du nickel lors de l'essai en bécher

Type de stérile	q_e (mg/kg)	ks_2 (mg/kg/h)	R^2 (-)
Péridotite mine 3	4,22	1,26	0,99997
Péridotite Kikialik	4,17	1,18	0,99999
Olivine-pyroxénite mine 3	3,95	0,61	0,99988
Olivine-pyroxénite mine 2	4,31	2,62	1,00000
Gabbro mine 2	4,19	1,06	0,99997
Argilite	4,45	10,84	1,00000
Volcanique	4,53	4,56	1,00000

Essai de sorption en flacon agité

Des essais de sorption supplémentaires avec un rapport liquide/solide plus élevé ont été effectués avec trois types de stériles ayant eu des comportements différents lors des essais de sorption en bécher : l'olivine-pyroxénite ayant eu le q_e et la constante de sorption les plus faibles, l'argilite ayant eu un q_e élevé et la constante de sorption la plus élevée, et la péridotite de la mine 3 ayant eu des valeurs de q_e et ks_2 dans la moyenne. Les résultats de pH, de Eh, de concentrations en Ni, S, Ca et Mg et de masse de Ni sorbé par masse de stérile en fonction du temps sont présentés à la Figure 3-19. Le pH initial de la solution de sulfates de nickel est de 6,36 et augmente au contact des roches pour se stabiliser à 8 pour l'argilite et à près de 7,6 pour la péridotite et l'olivine-pyroxénite.

Figure 3-19: Évolution des pH et des concentrations ioniques des essais de sorption en flacons agités



On remarque que la vitesse de sorption est plus grande pour l'argilite, suivi de l'olivine-pyroxénite et de la péridotite et que les concentrations en Ni en solution après 48 heures sont respectivement de 0,69 ppm, de 0,12 ppm et 0,23 ppm. Les produits d'altération (Ca, Mg, S) sont présents en beaucoup plus petite concentration que pour l'essai en bécher (<50 ppm chacun comparativement à plus de 100 ppm dans l'essai en bécher). Ceux-ci sont produits en plus grande quantité par la péridotite de la mine 3 (48,5 ppm Ca, 11,9 ppm Mg et 15,3 ppm S), suivi

par l'olivine-pyroxénite de la mine 3 (25,6 ppm Ca, 8,2 ppm Mg et 12,5 ppm S) et l'argilite (6,2 ppm Ca, 3,6 ppm Mg et 6,5 ppm S).

Comme pour l'essai en bécher, la cinétique de sorption qui correspond au comportement du nickel est d'ordre 2. Les paramètres de l'équation 3.5 ont été déterminés et sont présentés au Tableau 3.16. On remarque que la quantité de nickel sorbée à l'équilibre est beaucoup plus grande que pour les essais de sorption en bécher, soit de 280 à 287 mg/kg. La valeur de la constante de sorption est pour cet essai trois fois plus grande que pour l'essai en bécher pour l'argilite (36,78 au lieu de 10,84 mg/kg/h mais est inférieure pour la péridotite de la mine 3 (0,067 au lieu de 1,26) et l'olivine-pyroxénite de la mine 3 (0,16 au lieu de 0,61). La sorption s'est donc effectuée plus rapidement pour l'argilite et plus lentement pour la péridotite et l'olivine-pyroxénite de la mine 3. Ces résultats montrent que si une eau contaminée en nickel ne reste en contact que quelques heures avec les stériles (comme pour les essais en colonne et en mini-cellule d'altération et ou la percolation dans les haldes), il y a de meilleures chances de retrouver une eau moins contaminée si celle-ci était en présence d'argilite. La péridotite et l'olivine-pyroxénite contiennent respectivement 52 et 37% de chlorite qui est un minéral argileux ayant de fortes capacités de sorption en raison de sa grande surface spécifique, sa structure en couches et sa grande capacité d'échange ionique (Gupta et Bhattacharyya, 2006). Le potentiel de sorption de l'argilite est quant à lui avantage par sa surface spécifique qui est quatre fois plus grande que celle de la péridotite et de l'olivine-pyroxénite de la mine 3.

Tableau 3.16: Paramètres de la cinétique d'ordre 2 de la sorption du nickel lors de l'essai en flacons agités

Type de stérile	q_e (mg/kg)	ks_2 (mg/kg/h)	R^2 (-)
Péridotite mine 3	280,54	0,067	0,983
Olivine-pyroxénite mine 3	286,73	0,16	0,999
Argilite mine 3	283,52	36,78	1,000

Extractions séquentielles

Les extractions séquentielles ont été effectuées sur quatre types de stériles dans le but de déterminer la nature de leurs sites de sorption après un essai similaire à l'essai de sorption en

flacon agité. Les résultats des analyses sur les stériles avant et après qu'il y ait eu sorption du Ni sont présentés au Tableau 3.17. La différence entre les deux résultats correspond au nickel additionné à la phase solide au cours de l'essai de sorption. On remarque que pour tous les types de stériles testés, les portions de nickel initiales et ajoutées lors de l'essai de sorption associées aux phases réductibles sont plus grandes que les portions liées aux carbonates et associées aux phases solubles et échangeables. Une fraction de 40% du nickel extrait par l'argilite (0,0914 mg/kg) est reliée aux phases solubles et échangeables. Cette fraction représente entre 0,8 et 6,8% du nickel extrait par les autres types de stériles (entre 0,0096 et 0,0268 mg/kg) et représente une faible masse dans les matériaux frais (0,0055 et 0,0076 mg/kg). L'argilite contient donc une plus grande quantité de nickel facilement lixiviable.

Tableau 3.17: Résultats des extractions séquentielles sur les stériles avant et après la sorption de nickel (mg Ni/g stérile)

Type de stérile	État	Soluble et échangeable	Solubles à l'acide	Lié aux phases réductibles	Total extrait
Péridotite de la mine 3	Frais	0,0071	0,0491	0,5382	0,5943
	Avec Ni sorbé	0,0135	0,1826	0,8370	1,0331
	Différence	0,0064	0,1336	0,2988	0,4388
Péridotite de la mine Kikialik	Frais	0,0076	0,0335	1,1574	1,1985
	Avec Ni sorbé	0,0268	0,1202	1,3356	1,4827
	Différence	0,0192	0,0868	0,1782	0,2842
Olivine-pyroxénite de la mine 3	Frais	0,0055	0,0201	0,2914	0,3170
	Avec Ni sorbé	0,0096	0,1250	0,7200	0,8547
	Différence	0,0042	0,1049	0,4286	0,5377
Argilite de la mine 3	Frais	0,0066	0,0054	0,1390	0,1509
	Avec Ni sorbé	0,0914	0,0619	0,2099	0,3632
	Différence	0,0849	0,0566	0,0709	0,2123

Les portions de nickel solubles à l'acide (pouvant être liées aux carbonates) représentent entre 19 et 31% du nickel extrait et moins de 8% du Ni initial. Elles sont très faibles pour l'argilite (0,0054 avant et 0,0619 mg/kg après sorption), varient pour les autres stériles testés entre 0,0201 et 0,0491 mg/kg initialement et sont de l'ordre de 0,0868 à 0,1336 mg/kg après l'ajout de nickel.

On remarque que les teneurs en Ni initiales dans les phases réductibles (notamment liée aux oxydes et hydroxydes de fer et de nickel) comptent pour plus de 90% du nickel initialement présent. Ses teneurs initiales dans la péridotite de la mine Kikialik (1,1985 mg/kg) sont au moins deux fois plus grandes que celles des autres types de stériles, soit respectivement 0,5382, 0,2914 et 0,1390 mg/kg pour la péridotite, l'olivine-pyroxénite de la mine 3 et l'argilite. La quantité de Ni dans les phases réductibles est plus que doublée et passe à 0,7200 mg/kg après l'essai de sorption dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3, tandis que les valeurs sont plus faibles pour les autres types de stériles : 0,8370 mg/kg pour la péridotite de la mine 3, 1,3356 mg/kg pour la péridotite de la mine Kikialik et 0,2099 mg/kg pour l'argilite. Donc, une bonne proportion du nickel (40%) sorbé par l'argilite de la mine 3 peut être libéré facilement si les conditions le permettent. Pour la péridotite des mines 3 et Kikialik et l'olivine-pyroxénite de la mine 3, plus de 60% du nickel libéré dans ces étapes provient des phases réductibles.

3.6.6 Synthèse de la caractérisation

Une caractérisation détaillée des matériaux utilisés a été effectuée afin de mieux pouvoir éventuellement expliquer le comportement géochimique observé dans les essais en colonnes et en mini-cellules d'altération. Les résultats obtenus sont résumés au Tableau 3.18 et montrent que :

- Les stériles utilisés dans les essais en colonne sont pour la plupart des graviers grossiers et ceux qui composent les mini-cellules d'altération sont des sables graveleux contenant un peu de silt.
- La densité relative des grains des stériles est un peu plus élevée pour le gabbro et la volcanique (2,98 à 3,01) que pour les autres types de stériles (2,72 à 2,84).
- La surface spécifique des matériaux des mini-cellules d'altération évaluée à l'aide d'un analyseur de surfaces spécifiques est de l'ordre de 1,0 à 1,4 m²/g pour la plupart des types de stériles. Elle est cependant de 15,5 m²/g pour la péridotite de la mine Kikialik en raison de la présence des dépôts d'altération et de 4,4 m²/g pour l'argilite en raison de sa granulométrie et de sa forme. Les surfaces spécifiques des colonnes estimées par la méthode de White (1995) sont respectivement de $2,97 \cdot 10^{-2}$ et $5,71 \cdot 10^{-3}$ m²/g pour la péridotite de la mine Kikialik et l'argilite, tandis qu'elles varient pour les autres types de

roche entre $8,9 \cdot 10^{-4}$ et $2,3 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{g}$. La colonne C10 comprenant des fines a quant à elle une surface spécifique de $1,93 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{g}$.

- Les analyses chimiques montrent que le contenu en soufre des échantillons d'olivine-pyroxénite et de péridotite (0,16 à 1,28%) est généralement plus élevé que celui de l'argilite, du gabbro et de la volcanique (<0,5%). Le contenu en nickel suit aussi cette tendance (0,19 à 0,43% pour les péridotites et les olivine-pyroxénites et moins de 0,05% pour les autres types de stériles).
- Les analyses DRX montrent que la gangue est principalement composée de silicates (phyllosilicates, pyroxène, amphibole, sorosilicate). On retrouve aussi de la magnétite dans la péridotite et l'olivine-pyroxénite, de l'hornblende dans le gabbro et la volcanique et du quartz dans l'argilite. Des traces de calcite sont aussi présentes dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3. Le pouvoir neutralisant des stériles provient donc des traces de calcite et des silicates dont la serpentine est celui qui a le plus grand pouvoir de neutralisation (présente dans la péridotite et l'olivine-pyroxénite).
- Les analyses minéralogiques au MO et au MEB ont démontré que les principaux sulfures contenus dans les échantillons sont la pentlandite, la pyrrhotite, la pyrite et la chalcopirite. La pyrite est le sulfure de fer dominant dans la péridotite de la mine Kikialik et la pyrrhotite est le sulfure de fer dominant dans la péridotite de la mine 3 et l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3. Des traces de calcite ont aussi été retrouvées dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3.
- Les analyses à la MSE ont montré que plusieurs grains de pyrrhotite contiennent entre 0,2 et 1,5% Ni. Les minéraux de gangue et de pyrite seraient moins susceptibles de contenir du nickel.
- Des essais statiques effectués sur les stériles ont suggéré que les potentiels de génération d'acidité du gabbro de la mini-cellule d'altération et de l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 des colonnes et des mini-cellules d'altération sont incertains. Les autres matériaux sont non générateurs d'acidité selon cette méthode.
- Il a été déterminé à partir des essais de sorption en bécber et en flacons agités que les cinétiques de sorption de tous les types de stériles peuvent être exprimées par des

relations d'ordre 2 et que leur potentiel de sorption est relativement élevé. Lorsque 800 g de stériles sont mis en contact avec une solution de 350 mL contenant 10 mg Ni/L, entre 52 et 93% du nickel est sorbé dans les quinze premières minutes et entre 95 et 100% du nickel est sorbé après 48 heures. On remarque que la sorption est plus rapide pour l'argilite de la mine 3 que pour les autres types de stériles.

- Les extractions séquentielles ont montré que le nickel présent initialement dans l'échantillon et qui s'est ajouté à la phase solide par sorption est surtout présent sous forme réductible et lié aux oxydes de fer. Les quantités solubles et échangeables et liées aux carbonates sont pour leurs parts beaucoup plus faibles.

Tableau 3.18: Synthèse de la caractérisation physique, chimique et minéralogique des matériaux utilisés pour les essais en colonne et en mini-cellule d'altération

Caractérisation	Technique	Méthode	Résultat
Physique	Granulométrie	Tamis (particules grossières) Granulomètre au laser (particules fines: 0,05 μm à 879 μm)	Les matériaux des colonnes sont des graviers grossiers pour la plupart, tandis que ceux des mini-cellules d'altération s'apparentent plus à des sables contenant un peu de silt.
	Densité relative des grains	Pycnomètre à hélium	De 2,98 à 3,01 pour le gabbro et la volcanique et entre 2,72 et 2,84 pour les autres matériaux
	Surface spécifique	Analyseur (mini-cellule d'altération) Estimation théorique (colonne)	Colonnes : Selon White (1995) : $1,93 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{g}$ pour C10, $2,97 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2/\text{g}$ pour la péridotite de la mine Kikialik, $5,71 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{g}$ pour l'argilite et de 8,9 à $2,3 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{g}$ pour les autres matériaux. Mini-cellules d'altération : $15,5 \text{ m}^2/\text{g}$ pour la péridotite de la mine Kikialik, $4,4 \text{ m}^2/\text{g}$ pour l'argilite et de 1,0 à $1,4 \text{ m}^2/\text{g}$ pour les autres matériaux.
Chimique	ICP-AES	Digestion complète des stériles	S : 0,16 à 1,28% pour les péridotites et les olivine-pyroxénites, <0,5% pour les autres matériaux Ni : 0,19 à 0,43% pour les péridotites et les olivine-pyroxénites, <0,05% pour les autres matériaux

Tableau 3.18 : Synthèse de la caractérisation physique, chimique et minéralogique des matériaux utilisés pour les essais en colonne et en mini-cellule d'altération (suite)

Caractérisation	Technique	Méthode	Résultat
Minéralogique	DRX	Analyse des pics du diffractogramme pour identification et quantification	La gangue est principalement composée de silicates (phyllosilicates en particulier). On retrouve aussi de la magnétite dans la péridotite et l'olivine-pyroxénite, de l'hornblende dans le gabbro et la volcanique et du quartz dans l'argilite.
	MO	Observations en réflexion sur les sections polies	Les principaux sulfures sont la pentlandite, la pyrrhotite, la pyrite et la chalcopryrite. La calcite est présente en traces dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3.
	MEB-EDS	Analyse des électrons et rayons X émis par les minéraux en réponse à un bombardement d'électrons	Il y a présence de dépôts d'altération contenant du nickel sur les surfaces de la péridotite de la mine Kikialik.
	MSE-WDS	Analyse des rayons X émis par les minéraux en réponse à un bombardement d'électrons	On a retrouvé sur les sections polies plusieurs grains de pyrrhotite qui contiennent entre 0,2 et 1,5% Ni.
Essais statiques	Sobek et Sobek modifiée	Détermination du PN, du PA et du PNN pour conclure sur le potentiel de génération d'acidité	Le PGA de l'olivine-pyroxénite de la mine 3 est incertain, ainsi que celui du gabbro contenu dans la mini-cellule d'altération. Le PGA de l'olivine-pyroxénite de la mine 2 se trouve à la limite entre incertain et non générateur d'acidité, tandis que les autres matériaux sont non générateurs d'acidité selon cette méthode.
Sorption du nickel	Essais de sorption en bécher et en flacons agités	Détermination de la cinétique de sorption et de ses paramètres	Tous les types de stériles ont un potentiel de sorption du Ni élevé. La sorption correspond à une cinétique d'ordre 2. L'argilite de la mine 3 sorbe le Ni plus rapidement que les autres types de stériles.
	Extractions séquentielles	Détermination de la forme sous laquelle le nickel est sorbé	Le nickel présent initialement dans l'échantillon et qui s'est ajouté à la phase solide au cours de l'essai de sorption est surtout présent sous forme réductible (lié aux oxydes et hydroxydes de fer), sauf pour l'argilite dont la plupart est sous forme soluble et échangeable.

CHAPITRE 4 ESSAIS EN COLONNES : RÉSULTATS, INTERPRÉTATION ET DISCUSSION

Ce chapitre présente les résultats des essais cinétiques effectués au laboratoire avec les dix configurations de colonnes expliquées dans la section précédente. Dans ce qui suit, on retrouve les données des analyses effectuées sur les eaux de lixiviation des essais cinétiques ainsi que les résultats des essais de consommation d'oxygène effectués sur les matériaux contenus dans les colonnes. La détermination du taux de réaction spécifique (aussi appelé constante de réaction) maximal par l'essai de consommation d'oxygène est d'abord effectuée à l'aide d'un logiciel de modélisation des écoulements des fluides (Vadose/W). Les différents taux de réaction évalués dans les colonnes sont ensuite comparés, et les résultats sont interprétés pour déterminer les potentiels de génération de drainage minier acide et de drainage neutre contaminé à long terme de chaque type de stériles. Une discussion sur les principaux phénomènes entrant en jeu dans le comportement géochimique observé est finalement présentée.

4.1 Résultats des essais en colonnes

Le comportement géochimique des stériles a été évalué en colonnes à l'aide de deux méthodes: des essais cinétique (lixiviations) et des essais de consommation d'oxygène.

4.1.1 Lixiviations

Les résultats des analyses des lixiviats échantillonnés lors des essais cinétiques en colonne d'une durée d'un an sont présentés ici. Les paramètres suivants ont été analysés : pH, Eh, conductivité, acidité, alcalinité et concentration de certains éléments (ou composés) chimiques. Ces dernières sont présentées en milligrammes d'élément lixivié par kilogramme de stérile; comme la concentration en mg/l est utilisée à titre d'unité dans la réglementation, des valeurs typiques seront données à titre indicatif dans le texte. Seuls les principaux éléments en présence et suspectés de se solubiliser sont discutés dans ce chapitre.

Analyses électrochimiques

La Figure 4-1 présente les résultats de la variation du pH, du potentiel d'oxydoréduction (Eh) et de la conductivité de l'eau de lixiviation des essais en colonne. On observe que les pH de la plupart des lixiviats oscillent généralement entre 8,5 et 9,5. Ceux des colonnes C2 et C6

(composées de la péridotite de la mine Kikialik et de l'argilite de la mine 3) échappent à cette tendance et varient plutôt de façon générale à des pH plus neutres entre 7 et 8. La présence de dépôts sur les surfaces de la péridotite de la mine Kikialik et la minéralogie de l'argilite (forte présence de quartz et albite à potentiel de neutralisation nul) expliquent, à tout le moins en partie, cette différence.

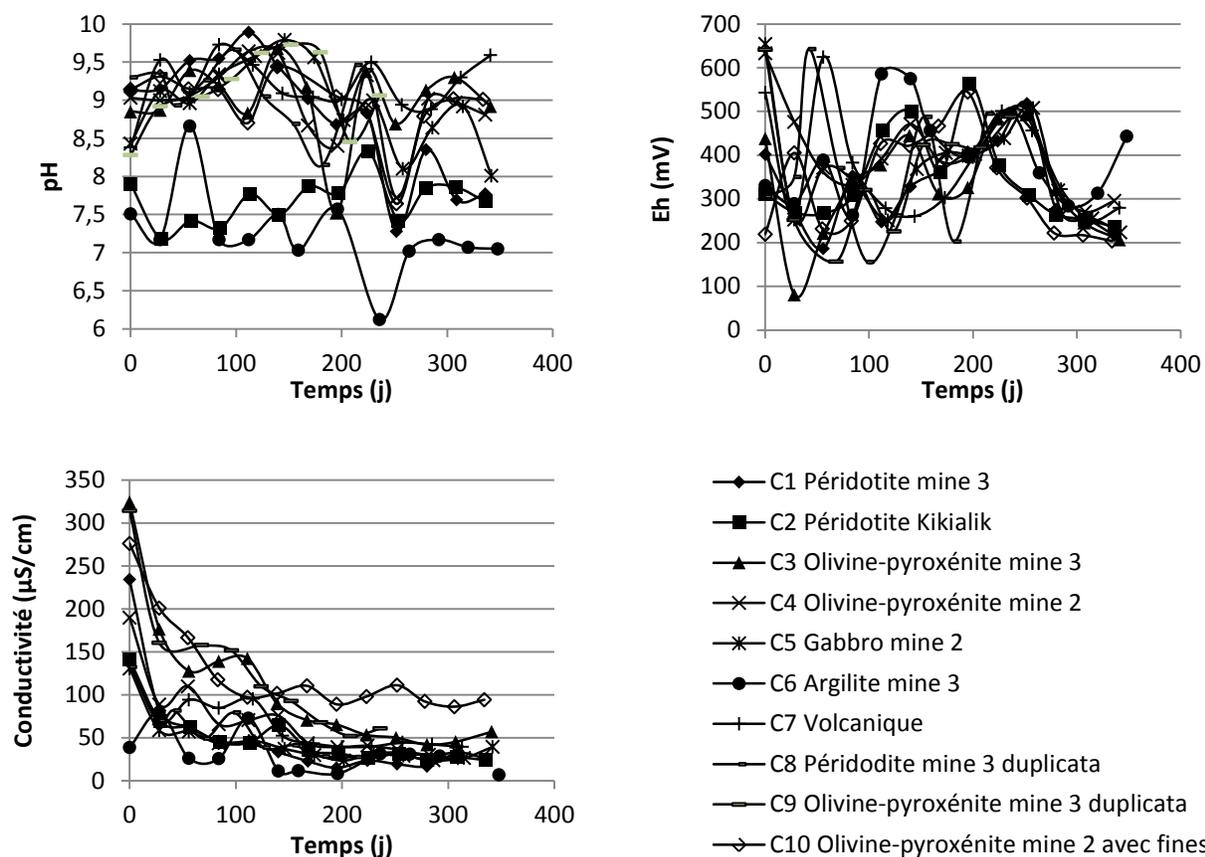


Figure 4-1: Résultats des analyses électrochimiques des lixiviats provenant des essais en colonnes (pH, Eh, conductivité)

Les pH des lixiviats sont pour la plupart supérieurs aux pH de l'eau déionisée utilisée, ces derniers étant en moyenne de $7,3 \pm 0,8$. Cette hausse est causée par la dissolution de minéraux neutralisants tels la serpentine (Bernier, 2005). Ce phénomène pourrait être relié à la présence de silicates alcalinoterreux fraîchement concassés exposant de nouvelles surfaces (Plante, 2010).

Les valeurs de Eh des lixiviats sont positives (généralement entre 200 et 500 mV), signifiant que les conditions sont oxydantes. Quant aux conductivités électriques, elles sont relativement basses

et se stabilisent après environ 150 jours à des valeurs inférieures à 50 $\mu\text{S}/\text{cm}$, sauf pour la colonne C10 où elles demeurent plus élevées (environ 100 $\mu\text{S}/\text{cm}$). Rappelons que cette dernière colonne contient des particules fines qui, ayant une surface spécifique supérieure, sont davantage réactives.

Acidité et alcalinité

Les résultats de l'acidité et de l'alcalinité des lixiviats sont présentés à la Figure 4-2. Les échantillons ne génèrent presque aucune acidité, sauf dans les lixiviats provenant des colonnes C2 et C6, où l'on observe une faible acidité ($< 5 \text{ mg CaCO}_3/\text{L}$). L'alcalinité des lixiviats se situe entre 0 et 20 $\text{mg CaCO}_3/\text{L}$. Elle est plus faible pour C2 et C6 et plus élevée pour C3 et son duplicata (C9), C7 et C10, ce qui concorde avec les mesures de pH.

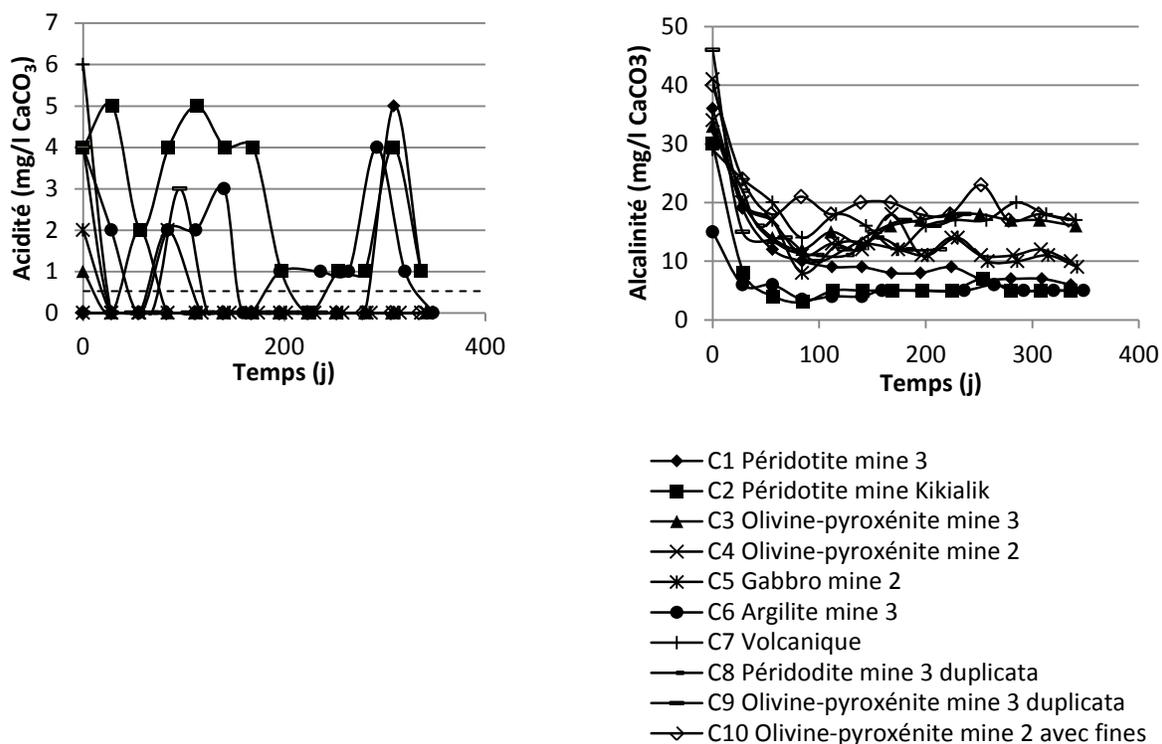


Figure 4-2: Résultats des mesures d'acidité et d'alcalinité des lixiviats provenant des essais en colonnes

Soufre

Le soufre présent dans l'eau collectée des colonnes serait vraisemblablement sous forme sulfate et proviendrait principalement de l'oxydation des sulfures. Dans la colonne C2 contenant de la péridotite de la mine Kikialik, il peut aussi provenir des dépôts d'altération qui recouvrent une bonne partie de la surface de la roche fraîchement concassée (cet aspect sera discuté plus loin). La Figure 4-3 montre les quantités de soufre produites par les différents matériaux pour chaque lixiviation. La colonne C10 en produit environ 2 mg S/kg de stérile par lixiviation en régime permanent, tandis que les autres types de stériles en produisent moins de 1 mg/kg, ce qui correspond à 7,5 mg/L.

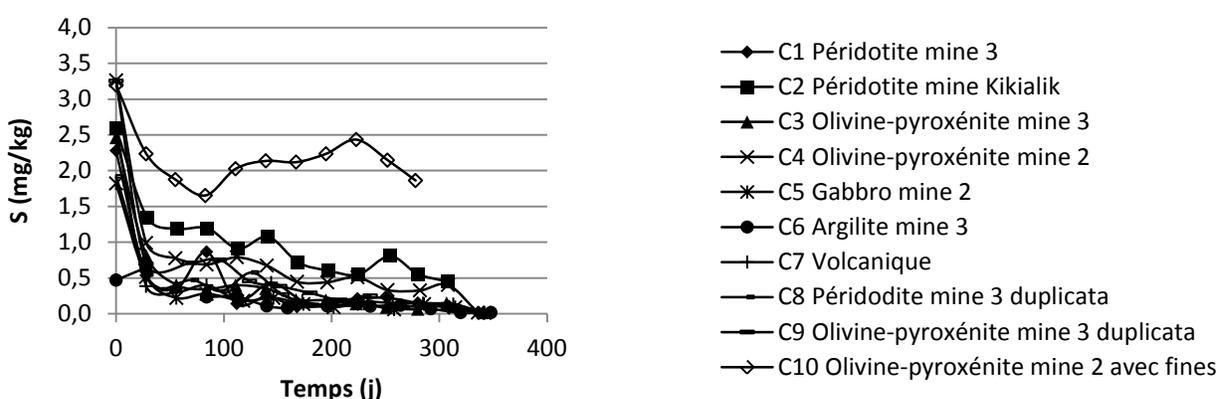


Figure 4-3: Variation des valeurs ponctuelles mesurées pour les concentrations en soufre

Fer et nickel

Du fer est lixivié de manière ponctuelle à de faibles concentrations par quelques colonnes (sous 0,025 mg de fer par kg de stériles). Ceci était prévisible en raison de la faible solubilité du fer à des pH près de la neutralité. Le fer qui aurait pu être lixivié par l'oxydation des sulfures ou la dissolution de minéraux neutralisants a probablement précipité dans les colonnes.

Quant au nickel, il est retrouvé en concentrations non négligeables dans le lixiviat d'une seule colonne : celui de la colonne C2, contenant de la péridotite de la mine Kikialik. Celle-ci lixivie du nickel à un taux relativement constant d'environ 0,02 mg/kg à chaque lixiviation, ce qui correspond à environ 0,02 ppm. On constate que le nickel est pratiquement absent des lixiviats de l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 et de la péridotite de la mine 3 et ce, même si leurs contenus en nickel et en soufre (donc en sulfures) sont semblables ou supérieurs à ceux de la péridotite de la mine Kikialik. La section 4.2 traitera plus en détails de ce qui pourrait expliquer

cette observation. Il est à noter que les concentrations de nickel dans les lixiviats de la colonne C2 tournent autour de 0,06 mg/L (maximum de 0,084 mg/L) et sont donc amplement sous la limite maximale moyenne de 0,5 mg/L émise par la Directive 019.

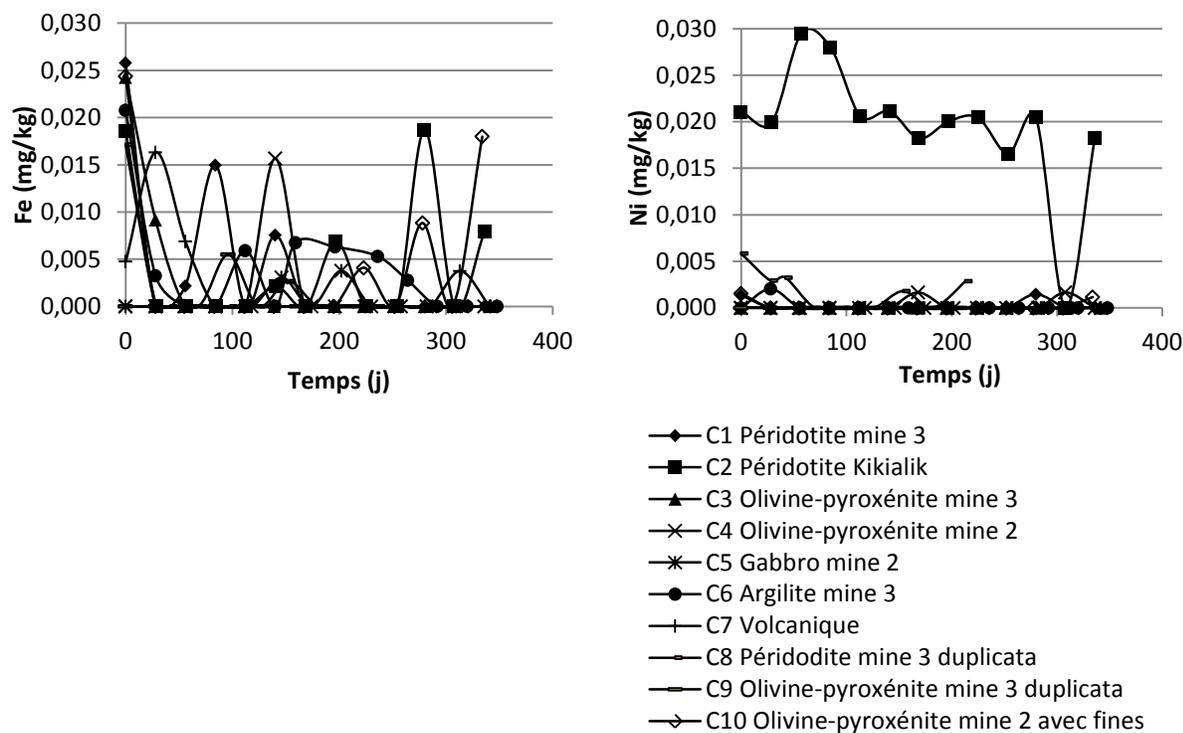


Figure 4-4: Variation des valeurs ponctuelles mesurées pour les concentrations en fer et en nickel

Calcium, magnésium, manganèse, silicium et aluminium

Le Ca, Mg, Mn, Si et Al retrouvés dans le lixiviat indiquent la dissolution de silicates, dont certains sont des minéraux acidivores. Dans les stériles de la mine Raglan, la réactivité des silicates est d'envergure moyenne à nulle pour neutraliser l'acidité (selon Lawrence et Scheske, 1997; les PN seront présentés au Tableau 4.2). Du calcium lixivié de l'olivine-pyroxénite de la mine 3 provient aussi de la calcite qui est présente en faible concentration dans la roche (<0,5%) et dont la réactivité et le pouvoir neutralisant sont largement plus élevés que ceux des silicates.

On remarque que parmi tous ces éléments, le calcium est produit en plus grande quantité. Ses concentrations se situent entre 0 et 3 mg/kg stériles par lixiviation en régime permanent. Les lixiviations les plus élevées de Ca sont générées par C4, C9 (son duplicata) et C10. C4 contient

une plus grande proportion d'augite, un pyroxène contenant du calcium qui peut lixivier de plus grandes concentrations massiques de Ca que de Mg (Sak, Fisher, Gardner, Murphy et Brantley, 2004). Pour ce qui est du magnésium, on le retrouve généralement à des concentrations inférieures à 1 mg/kg stériles dans les lixiviats des colonnes. Les plus hauts taux de lixiviation de Mg sont produits par C2, qui lixivie aussi les plus forts taux de S. Un peu plus bas que les taux de C2 suivent ceux des colonnes contenant l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 (C3, son duplicata C9 et C4). Dans ces matériaux, le Mg peut provenir de la serpentine, du talc (pour C3), de la chlorite et de l'hornblende. La colonne C10 produit beaucoup plus de Ca et de Mg que les autres colonnes, ce qui était attendu en raison de la présence de particules de plus petites dimensions, qui augmentent la surface spécifique qui est proportionnelle au taux de dissolution. Très peu de manganèse est libéré par les stériles de la mine Raglan (<0,002 mg/kg stériles).

Un graphique de la somme des éléments neutralisants (Ca+Mg+Mn) est aussi montré à la Figure 4-5. L'Al et le Si n'ont pas été comptabilisés dans ce graphique, puisqu'ils peuvent aussi provenir de l'albite qui possède un très faible pouvoir de neutralisation. Il est remarqué que C10 est la colonne qui produit le plus de ces éléments en solution en régime permanent, suivie de C3 (et son duplicata C9) et C7. Notez que C6 ne produit que très peu de ces éléments. Cette faible production est expliquée par sa minéralogie contenant essentiellement du quartz, de la muscovite et de l'albite, qui sont très peu ou pas réactifs et qui ne possèdent pratiquement pas de pouvoir neutralisant. La faible lixiviation de Ca et Mg par la colonne C6 est liée à sa faible alcalinité et son pH plus faible que celui des autres colonnes. On observe à l'opposé une forte lixiviation de ces éléments par les matériaux des colonnes C3 et C10, dont les lixiviats avaient un pH et une alcalinité plus élevées.

Les taux de lixiviation de l'aluminium en régime permanent sont faibles, variant entre 0,01 et 0,02 mg Al/kg stériles pour C5 (le gabbro) et C7 (le basalte), et sont négligeables pour les autres colonnes. Cet élément proviendrait surtout de l'hornblende ou de l'épidote. Le silicium est quant à lui produit entre 0,1 et 1,2 mg/kg de stériles. La colonne C6 (l'argilite) en lixivie de plus grandes quantités que les autres colonnes, probablement en raison de sa plus grande surface spécifique (voir Figure 3-9), de ses teneurs élevées en muscovite et chlorite et des conditions chimiques qui favorisent sa lixiviation (le pH de cette colonne est légèrement plus faible que celui des autres colonnes).

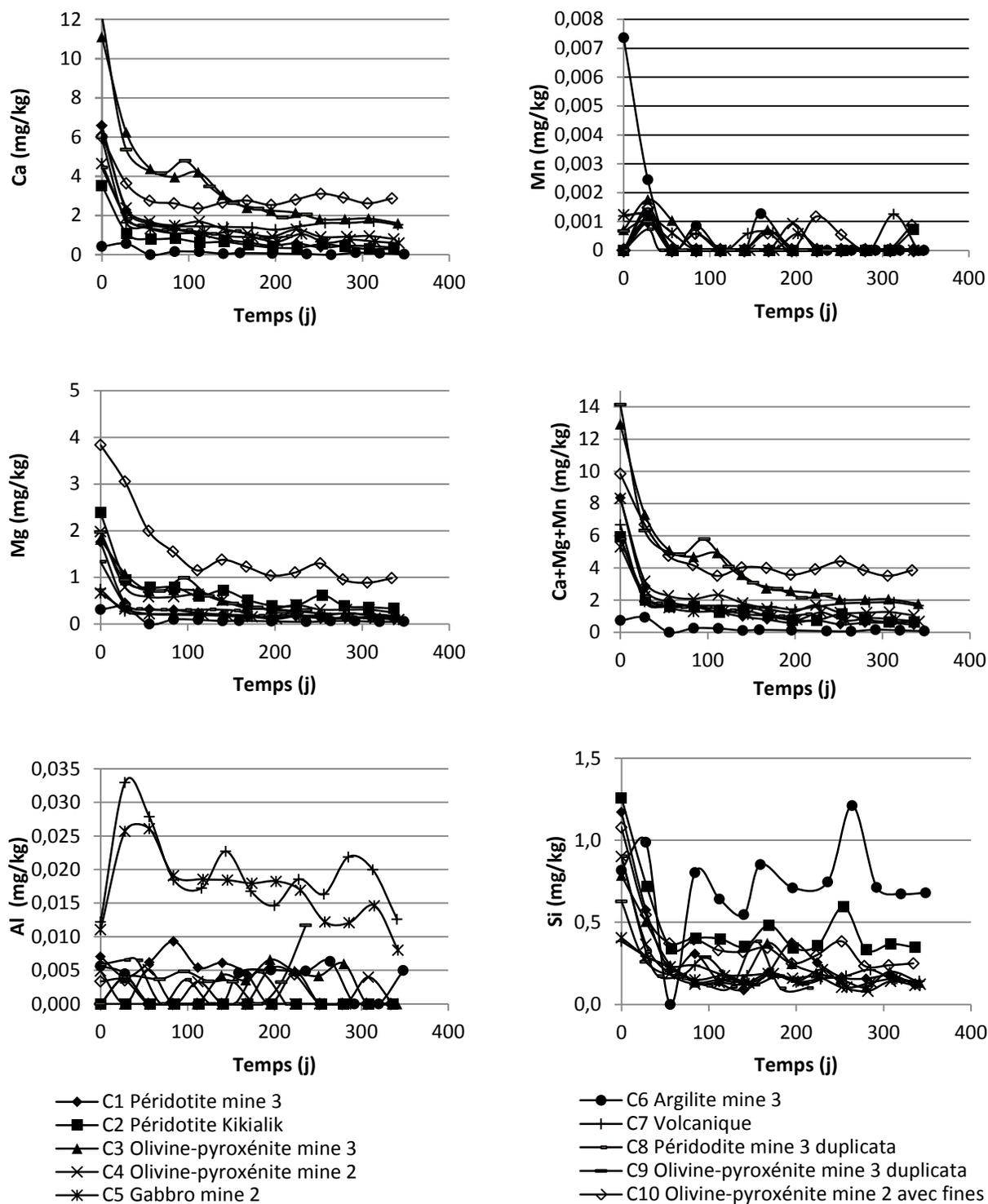


Figure 4-5: Variation des valeurs ponctuelles mesurées pour les concentrations en calcium, magnésium, manganèse, la sommation Ca+Mg+Mn, silicium et aluminium des essais en colonnes

Autres métaux

Les concentrations en métaux autres que le fer et le nickel dans les eaux de lixiviation issues des colonnes sont négligeables. Du zinc, du cuivre et du cobalt sont parfois mesurés, mais à des valeurs très près de la limite de détection de l'ICP-AES, et nettement sous les valeurs réglementaires. Pour ces raisons, ces résultats ne seront pas discutés davantage ici.

Relations d'oxydation et de neutralisation

La relation d'oxydation-neutralisation est un outil qui montre le lien entre la production de soufre (ou sulfates) provenant de l'oxydation des sulfures et la production d'éléments neutralisants provenant des minéraux acidivores. En d'autres termes, elle montre la réponse de la neutralisation d'un matériau donné à la production d'acidité qu'il génère. Celle-ci est représentée à la Figure 4-6 par les quantités cumulées de Ca+Mg+Mn par rapport à la quantité de soufre total produit au cours des essais cinétiques (plus d'information sur les relations d'oxydation-neutralisation peuvent être trouvées dans Benzaazoua, Bussière et Dagenais, 2001; Benzaazoua et al., 2004).

Des régressions linéaires ont été effectuées avec les résultats d'oxydation-neutralisation et leurs paramètres sont présentés au Tableau 4.1. Bien que la relation entre les taux d'oxydation et de neutralisation soit bien corrélée pour chaque colonne ($R^2 > 0,95$), les paramètres de régression varient d'une colonne à l'autre; les pentes des droites varient d'un peu plus de 1 à près de 13 mg Ca+Mg+Mn/mg S. On remarque que les pentes de C2 et C6 sont les plus faibles (1,36 et 1,24) et cette particularité coïncide avec le fait qu'elles avaient un pH plus faible que les autres colonnes. La pente la plus élevée est obtenue pour l'olivine-pyroxénite de la mine 3 (C3 avec 12,85 et C9 avec 8,19). Les colonnes C5 à C7 génèrent très peu de soufre, ce qui limite la précision de l'analyse et diminue la corrélation de leurs relations. Leurs pentes sont aussi relativement élevées (respectivement 6,49 et 6,80). La pente de la péridotite de la mine 3 est quant à elle de 3,95 pour C1 et 4,06 pour C8 et celle de l'olivine-pyroxénite de la mine 2 est de 3,06 pour C4 et de 1,87 pour C10. Les régressions ne passent pas par l'origine, car la production de Ca+Mg+Mn de la première lixiviation est plus élevée en raison de la mise en solution des espèces solubles et plus facilement lixiviables (Villeneuve, 2004). Cet effet disparaît après le premier cycle dans cette étude.

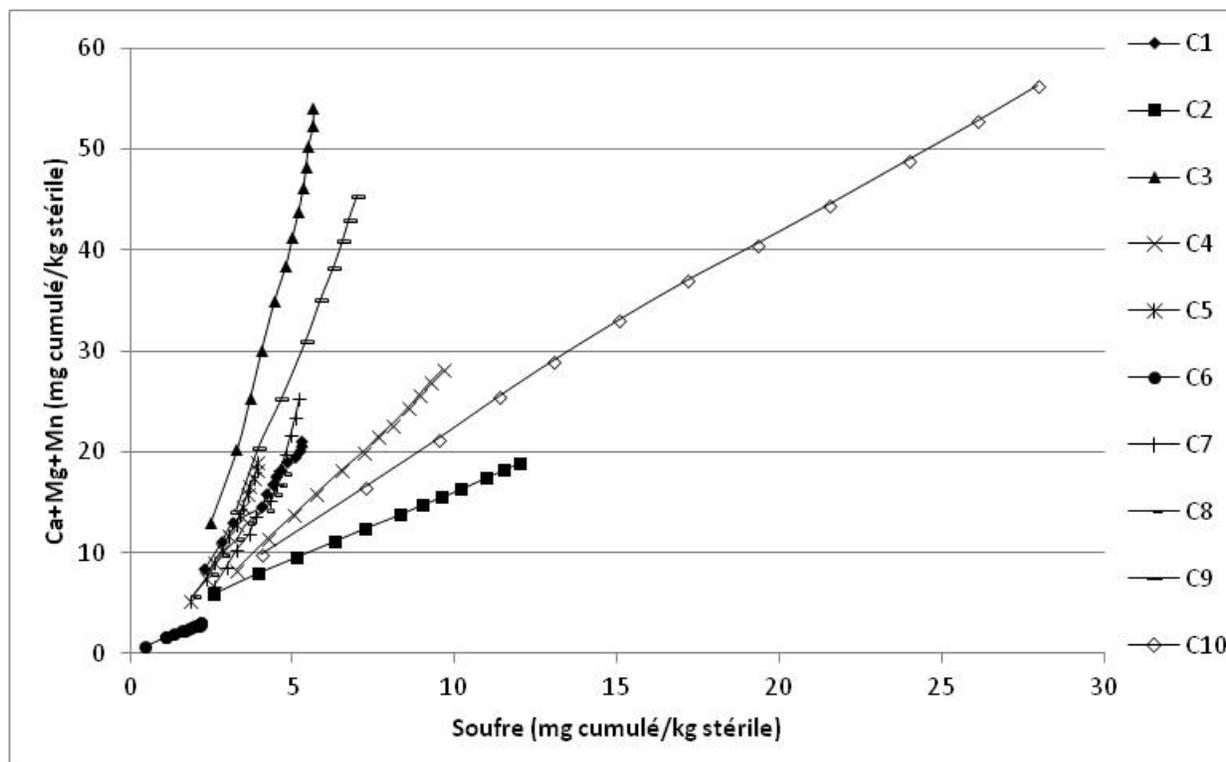


Figure 4-6: Courbes d'oxydation et de neutralisations de chaque colonne

Les résultats du Tableau 4.1 peuvent être comparés à d'autres valeurs observées dans la littérature. Toutefois, celles-ci ne sont habituellement pas obtenues sur des stériles en colonne. Une étude sur des résidus miniers carbonatés en mini-cellule d'altération a montré des pentes de la relation d'oxydation-neutralisation entre 1 et 1,25 (Benzaazoua et al., 2004). Des pentes entre 1,2 et 1,5 ont aussi été obtenues en cellule de terrains sur des stériles contenant des plagioclases calciques (Pépin, 2009). Une étude en mini-cellule d'altération sur le même type de matériel a toutefois montré des rapports plus élevés liés à une lixiviation préférentielle de Ca dans les stériles frais en raison des mécanismes de dissolution des plagioclases calciques (Plante, 2010). Leur dissolution est incongrue, libérant d'abord à la surface du minéral Al, Ca ou Na et enrichissant la surface du matériel en Si. La lixiviation préférentielle de certains éléments par les stériles de Raglan utilisés dans cette étude n'est donc pas exclue. Par exemple, comme il a été discuté à la section 2.1.1, la chlorite et la serpentine peuvent lixivier préférentiellement du Mg à leur surface.

Tableau 4.1: Paramètres des droites de régressions des relations d'oxydation et de neutralisation

Colonne	Pente	Ordonnée à l'origine	R ²	Particularités
C6 Argilite mine 3	1,24	0,22	0,987	pH plus faible/moins de neutralisation produite
C2 Péridotite mine Kikialik	1,36	2,51	1,000	
C10 Olivine-pyroxénite mine 2 avec fines	1,87	3,77	0,996	Présence d'augite-chlorite-serpentine
C4 Olivine-pyroxénite mine 2	3,06	-1,72	0,999	
C1 Péridotite mine 3	3,95	-0,34	0,986	Présence de chlorite-serpentine-augite
C8 Péridodite mine 3 duplicata	4,06	-1,95	0,991	
C5 Gabbro mine 2	6,49	-7,53	0,981	Présence d'horblende et d'épidote
C7 Volcanique	6,80	-12,25	0,959	
C9 Olivine-pyroxénite mine 3 duplicata	8,19	-12,61	0,998	Présence de calcite-talc-chlorite-serpentine
C3 Olivine-pyroxénite mine 3	12,85	-21,21	0,985	

Il est bien connu que lorsqu'ils sont présents, les carbonates sont les minéraux produisant le potentiel neutralisant le plus efficace. Par contre, ceux-ci n'ont pas été détectés par DRX, mais des traces de calcite ont été observées au microscope optique et au MEB dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3. On peut donc faire l'hypothèse que la plus grande partie du potentiel de neutralisation est contrôlé par les silicates (e.g. serpentine, Ca-plagioclase), particulièrement dans le cas d'une génération d'acidité lente, sur une longue période de temps ou si les particules des minéraux neutralisants sont fines (Jambor et al., 2007). Le PN théorique des minéraux neutralisants présents dans les stériles de Raglan sont présentés au Tableau 4.2 selon deux systèmes de classification (Lawrence et Scheske, 1997; Jambor et al., 2007). Dans celui-ci, on remarque que la majeure partie du pouvoir neutralisant des stériles de Raglan proviendrait de traces de calcite en raison de sa rapidité de réaction, ainsi que de la serpentine. Cependant, l'apport de la calcite est limité en raison de sa quantité et dépend de son épuisement dans la durée de l'essai. Par exemple, pour un échantillon en contenant 0,5%, elle apporte une contribution de 5 mg CaCO₃/kg.

Tableau 4.2: Potentiels de neutralisation de minéraux présents dans les stériles (Lawrence et Scheske, 1997; Jambor et al., 2007)

Classification	Minéral et formule chimique	Réactivité (Lawrence et Scheske, 1997)	PN (Jambor et al., 2007) (mg CaCO ₃ /kg)
Carbonate	Calcite CaCO ₃	Dissolution	1000
Phyllosilicate - serpentine	Lizardite (serpentine) Mg ₃ Si ₂ O ₅ (OH) ₄	Réactivité moyenne	32
Phyllosilicate - chlorite	Chlorite (Mg,Fe ²⁺) ₅ Al(Si ₃ Al)O ₁₀ (OH) ₈		6
Inosilicate - pyroxène	Augite (Ca,Na)(Mg,Fe,Al,Ti)(Si,Al) ₂ O ₆		5
	Pigeonite (Mg,Fe,Ca)(Mg,Fe)Si ₂ O ₆		
Inosilicate - amphibole	Hornblende Ca ₂ [Mg ₄ (Al,Fe)]Si ₇ AlO ₂₂ (OH) ₂		3
	Actinolite Ca ₂ (Mg,Fe) ₅ Si ₈ O ₂₂ (OH) ₂		
Phyllosilicate	Talc Mg ₃ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂	2	
Oxyde	Magnétite Fe ₃ O ₄	-	2
Sorosilicate	Épidote Ca ₂ (Fe,Al)Al ₂ (SiO ₄)(Si ₂ O ₇)O(OH)	Réactivité moyenne	1
Phyllosilicate - mica	Muscovite KAl ₂ (Si ₃ Al)O ₁₀ (OH,F) ₂	Réactivité très lente	1
Tectosilicate - Feldspath plagioclase	Oligoclase (Na,Ca)(Si,Al) ₄ O ₈	Réactivité lente	1,4
	Albite NaAlSi ₃ O ₈		~0
Tectosilicate - oxyde	Quartz SiO ₂	Inerte	0

Sommaire des résultats (tendances moyennes et taux de lixiviation)

La moyenne des mesures pour les paramètres électrochimiques, l'acidité et l'alcalinité dans les eaux de lixiviation issues des colonnes sont affichées au Tableau 4.3. Les taux de lixiviation des principaux éléments retrouvés dans les eaux de lixiviation sont aussi présentés au Tableau 4.4. On constate que les principaux éléments produits sont généralement, par ordre décroissant de taux de lixiviation, le Ca, le S, le Mg, le Si, l'Al, le Ni, le Fe et le Mn. Ces données ont été déterminées en considérant les valeurs sous la limite de détection équivalentes à la moitié de leur limite de détection respective.

À la lumière des résultats obtenus pour les colonnes standards (C1 à C7), on peut conclure qu'une faible lixiviation de sulfates est observée dans l'argilite, le gabbro et la volcanique (colonnes C5 à C7) en raison de leur très faible concentration en sulfures. Du silicium est aussi lixivié dans toutes les colonnes, confirmant la dissolution faible mais existante des silicates. Les taux des réactions de neutralisation sont très faibles dans l'argilite de la mine 3 (colonne C6), mais on remarque tout de même une lixiviation de Si de la muscovite et de Mg et Si de la chlorite. La faible réactivité dans cette dernière explique sa faible conductivité, sa faible alcalinité et son pH plus bas. Ce type de roche est d'ailleurs celui contenant le plus haut pourcentage de silicates ayant un potentiel de neutralisation presque nul, soit 53% de quartz et d'albite/oligoclase. De fortes concentrations de Ca sont produites par le gabbro de la mine 2 et la volcanique en raison de leurs fortes teneurs en hornblende et épidote (56%), ainsi que de plus faibles concentrations de Mg pouvant être produit par l'hornblende et la chlorite.

Une faible alcalinité et un pH plus neutre sont aussi observés dans les lixiviats de la péridotite de la mine Kikialik (colonne C2). Ceux-ci sont accompagnés par une forte lixiviation de sulfates et de nickel pouvant provenir de l'oxydation des sulfures. La lixiviation de Ni et de S par la dissolution des dépôts d'altération contenus dans ce type de roche n'est pas non plus exclue. Celle-ci est accompagnée par la plus forte lixiviation de Mg observée dans cette étude, produite par la chlorite et la lizardite qui composent 80% de ce type de stérile. Un plus faible taux de lixiviation de Ca a aussi lieu par la lixiviation d'hornblende et d'augite (11%).

Les seconds taux de lixiviation de sulfates les plus élevés sont produits par l'olivine-pyroxénite de la mine 2 (colonne C4), dont les taux de lixiviation moyen de Mg est le plus élevé, produit par la dissolution de lizardite, de chlorite et d'augite, qui le composent à 80%. On peut globalement regrouper les taux de réaction de C1 à C4, qui sont plus élevés, et ceux de C5 à C7 sont plus faibles.

Cette colonne (C4), ainsi que les colonnes C1, C3, C5 et C7, produisent toutefois plus de Ca que de Mg. La présence de calcite, qui réagirait plus rapidement que les silicates, n'est pas exclue pour expliquer ce phénomène, mais celle-ci n'a été observée au microscope que dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3 (colonne C3). Le Ca libéré par les colonnes C1 à C4 provient aussi de l'hornblende (présent à moins de 10% dans C1 à C4) et l'augite (présent à 30% dans C4 et à moins de 10% dans C1 à C3).

On observe une lixiviation de Ca, Mg et S plus grands dans la colonne C10 que dans les autres colonnes. Sa comparaison avec les autres colonnes ainsi que la comparaison des colonnes testées en duplicata seront effectuées dans la section suivante.

Tableau 4.3: Moyennes des résultats des analyses électrochimiques, des acidités et des alcalinités en régime permanent (lixiviations #3 à 13). Les écarts-types sont affichés entre parenthèses.

Colonne	pH	Eh (mV)	Acidité (mgCaCO ₃ /L)	Alcalinité (mgCaCO ₃ /L)	Conductivité (μS/cm)
C1	8,73 (0,87)	325,67 (100,99)	0,9 (1,5)	8,4 (1,7)	30,9 (14,6)
C2	7,71 (0,29)	353,99 (109,35)	2,5 (1,8)	4,9 (0,9)	37,7 (14,5)
C3	9,02 (0,57)	342,48 (99,01)	0,3 (0,6)	15,7 (2,0)	80,2 (38,5)
C4	8,96 (0,56)	383,49 (77,65)	0,0 (0,0)	12,7 (2,6)	54,5 (25,5)
C5	8,97 (0,58)	348,41 (90,35)	0,3 (0,6)	11,6 (2,5)	35,3 (10,6)
C6	7,23 (0,60)	414,47 (109,50)	1,5 (1,3)	4,9 (0,8)	25,4 (19,2)
C7	9,24 (0,29)	368,62 (118,08)	0,0 (0,0)	16,8 (2,4)	57,5 (23,8)
C8	9,03 (0,51)	373,81 (177,65)	0,0 (0,0)	12,6 (1,8)	49,3 (22,5)
C9	9,26 (0,45)	350,94 (121,42)	0,6 (1,1)	14,6 (2,8)	98,9 (42,8)
C10	8,67 (0,85)	332,44 (118,85)	0,0 (0,0)	18,9 (1,9)	105,8 (22,4)

Tableau 4.4: Taux de lixiviation des principaux éléments en régime permanent (lixiviations excluant les deux premières lixiviations) dans les essais en colonnes (mg/kg stérile/an)

Col.	Al	Ca	Fe	Mg	Mn	Ni	S	Si	Ca+Mg+Mn
C1	0,059	10,422	0,043	2,664	0,005	0,011	3,259	2,843	13,091
C2	0,025	7,387	0,056	7,713	0,005	0,280	13,058	5,654	15,105
C3	0,049	37,719	0,015	5,683	0,006	0,010	3,020	2,662	43,408
C4	0,033	17,006	0,033	5,964	0,005	0,012	7,024	1,981	22,975
C5	0,233	12,407	0,019	2,135	0,005	0,001	2,019	2,234	14,548
C6	0,048	0,959	0,043	0,814	0,007	0,011	1,386	9,480	1,780
C7	0,265	20,916	0,024	2,675	0,007	0,008	2,869	2,533	23,598
C8	0,047	17,115	0,016	4,037	0,005	0,023	4,884	2,424	21,156
C9	0,069	46,324	0,029	7,902	0,005	0,010	6,621	2,628	54,231
C10	0,030	39,267	0,050	17,736	0,007	0,009	31,256	4,474	57,011

4.1.2 Consommation d'oxygène

Dans cette section, les résultats bruts de diminutions des concentrations en oxygène obtenues lors des essais sont d'abord présentés. Une modélisation numérique de la colonne consommant le plus d'oxygène est ensuite effectuée avec le logiciel Vadose/W afin de déterminer la constante de réaction maximale des stériles.

Résultats de consommation d'oxygène

De façon générale, l'essai de consommation d'oxygène vise à évaluer la réactivité (oxydation des sulfures) des différents stériles étudiés. Dans le cadre de ce travail, 8 essais de consommation ont été réalisés. Les résultats des essais de consommation d'oxygène où une baisse de concentration d'oxygène (faible mais significative) a été mesurée sont présentés à la Figure 4-7; le reste des résultats peuvent être trouvés à l'Annexe B.1. De faibles baisses de la concentration d'oxygène ont été mesurées dans C1, C2 et C10. La diminution de la concentration d'oxygène la plus prononcée a été mesurée dans la colonne C3 contenant l'olivine-pyroxénite de la mine 3. On note que c'est aussi la colonne qui contient la plus grande quantité de sulfures.

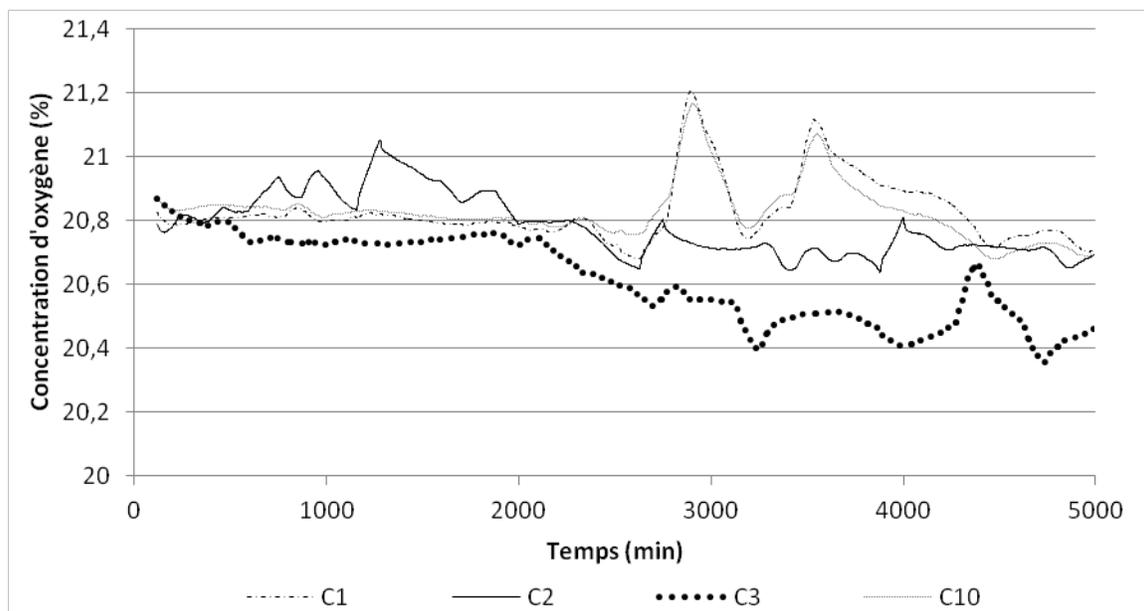


Figure 4-7: Variations des concentrations d'oxygène dans les colonnes lors des essais de consommation d'oxygène

À noter que des mesures de la température ambiante ont été prises lors des essais des colonnes C3, C4 et C5. Il a été constaté que celle-ci engendre de légères fluctuations (max. 0,5%) dans les lectures de concentration d'oxygène (par exemple, les pics retrouvés dans les courbes de la Figure 4-7). Cet effet a d'ailleurs été relevé par d'autres chercheurs dans la littérature (e.g. Tibble, 1997). Bien qu'on y retrouve ces légères fluctuations, les tendances moyennes sont à peu près les mêmes. L'effet de la température a donc été négligé dans les analyses subséquentes.

Procédure d'évaluation de la consommation d'oxygène avec VADOSE/W

Pour simuler les essais de consommation d'oxygène, une modélisation unidimensionnelle a été effectuée en régime transitoire à l'aide du logiciel Vadose/W version 7.17 (Geo-Slope International, 2007) afin d'estimer la constante de réaction pour le pire cas (i.e. celui de la colonne la plus réactive). Les paragraphes suivants portent sur la procédure de la modélisation effectuée avec les données de la colonne C3, les résultats ainsi que leur interprétation.

Le logiciel Vadose/W modélise avec la méthode des éléments finis le transport de l'eau et du gaz en milieu saturé et non saturé, le transfert de chaleur, les interactions sol-atmosphère et les échanges avec les milieux environnants (Wilson, 1990; Wilson, Fredlund et Barbour, 1994). Il permet aussi de simuler la diffusion et la consommation de l'oxygène dans les milieux poreux réactifs, tels que ceux utilisés dans cette étude. La première et la deuxième loi de Fick sont utilisées pour prédire la diffusion de l'oxygène à travers les phases gazeuses et aqueuses (calculé selon les caractéristiques hydriques), ainsi que sa consommation.

Lors des essais de consommation d'oxygène, on pose l'hypothèse que la diffusion de l'oxygène est le processus qui contrôle sa migration. Dans les équations décrivant le phénomène, la variation de la concentration, dans le temps et dans l'espace, est reliée au coefficient de diffusion effectif du matériau D_e . La méthode de Collin et Rasmuson (1988) est intégrée dans le logiciel VADOSE/W pour définir le paramètre D_e . Celui-ci dépend de la porosité, du degré de saturation, de la tortuosité et du coefficient de diffusion de l'élément dans un milieu libre (sans obstruction). La dissolution de l'oxygène dans la phase aqueuse (en fonction de la température) est également tenue en compte dans les calculs.

Le flux d'oxygène circulant à travers le matériau granulaire est également influencé par la réactivité du matériau (ex. matériau contenant des minéraux sulfureux). Lorsque le milieu est

réactif, l'évaluation du flux d'oxygène doit tenir compte de deux phénomènes, soient sa diffusion et sa consommation. La deuxième loi de Fick peut être combinée à une réactivité de premier ordre (Elberling et Nicholson, 1996; Yanful, Simms et Payant, 1999) pour représenter la réaction d'oxydation des minéraux sulfureux (Mbonimpa, Aubertin, Dagenais, Bussière, Julien et al., 2002b; Mbonimpa, Aubertin, Aachib et Bussière, 2003), tel que montré à l'équation 4.1. Dans cette équation, θ_{eq} est la teneur en air équivalente ($m^3 \cdot m^{-3}$), $C_{O_2}(z,t)$ est la concentration en oxygène dans la phase gazeuse à un temps t et à une position z , K_r est la constante de réaction effective de premier ordre ($m^3 \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$ ou $g^3 \cdot g^{-3} \cdot s^{-1}$), K_r^* est la constante de réaction apparente ($K_r = \theta_{eq} \cdot K_r^*$) ($m^3 \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$ ou $g^3 \cdot g^{-3} \cdot s^{-1}$), D_e est le coefficient de diffusion effectif ($m^2 \cdot s^{-1}$), et D^* est le coefficient de diffusion apparent ($m^2 \cdot s^{-1}$) (avec $D_e = \theta_{eq} D^*$).

Dans VADOSE/W, la réactivité des matériaux s'exprime avec un temps de demi-vie apparent $t^*_{1/2}$ dans l'évaluation de la constante de réaction apparente de premier ordre K_r^* , montrée à l'équation 4.2. Le temps de demi-vie représente le temps nécessaire pour que la moitié de la matière réactive ait réagi (à $t=t^*_{1/2}$, $C_{O_2}=C_{O_2,initiale}/2$).

$$\frac{\partial}{\partial t}(\theta_{eq} C_{O_2}) = \frac{\partial}{\partial z} \left(D_e \frac{\partial C_{O_2}}{\partial z} \right) - K_r C_{O_2} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\theta_{eq} D^* \frac{\partial C_{O_2}}{\partial z} \right) - \theta_{eq} K_r^* C_{O_2} \quad [4.1]$$

$$K_r^* = \ln(2) / t^*_{1/2} \quad [4.2]$$

La constante de réaction K_r de l'olivine-pyroxénite de la mine 3 placé dans la colonne se calcule avec l'équation 4.3, où la teneur en air équivalente θ_{eq} est déterminée à partir de l'équation 4.4. Dans cette équation, θ_a est la teneur en air, θ_w la teneur en eau et H la constante de Henry (Aubertin, Aachib et Authier, 2000). Les valeurs de θ_a et θ_w sont les moyennes retrouvées dans les stériles de la colonne au cours de l'essai (calculés par Vadose/W).

$$K_r = \theta_{eq} \cdot K_r^* \quad [4.3]$$

$$\theta_{eq} = \theta_a + H\theta_w \quad [4.4]$$

La modélisation du comportement de la colonne C3 avec VADOSE/W est effectuée en deux étapes. La première consiste à obtenir les conditions initiales pour démarrer l'analyse en régime transitoire. Pour ce faire, on pose les deux hypothèses suivantes :

- La concentration d'oxygène est de 270 g/m^3 et est uniforme dans toute la colonne ;

- Les teneurs en eau initiale de l'essai de consommation sont celles obtenues par la modélisation une heure après que la nappe phréatique ait été déplacée du haut vers la base de la colonne.

La première hypothèse s'appuie sur le fait que l'essai a débuté immédiatement après que la colonne ait été remplie et vidée d'eau distillée. Donc, l'air est nouvellement entré dans la colonne et devrait avoir à peu près les caractéristiques de l'air ambiant, à condition que le matériau à l'intérieur de la colonne ne soit pas trop réactif (ce qui est le cas ici) et que la diffusion d'air dans la colonne soit terminée. La concentration d'oxygène de 270 g/m^3 correspond à la concentration d'oxygène de l'air atmosphérique à pression normale et à une température de 22°C (valeur considérée représentative pour nos essais). La deuxième hypothèse se veut représentative du temps nécessaire entre le début de la vidange et le début de l'essai. De plus, étant donné que les matériaux sont grossiers, ils retiennent peu l'eau et l'équilibre hydrostatique est supposé être obtenu rapidement.

L'atteinte de l'état hydrique non saturé dans VADOSE/W est essentiellement fonction de la courbe de rétention d'eau (CRE) des stériles (évaluée à l'aide du modèle Kovács modifié en Annexe B.2 (Aubertin, Mbonimpa, Bussière et Chapuis, 2003) et dont la teneur en eau résiduelle a été fixée à 0,01) et des conditions non saturées (succion) dans la colonne. Rappelons que la CRE représente l'état de saturation d'un matériau en fonction de la succion. On pose dans ce travail que la teneur en eau à saturation est égale à la porosité totale du matériau qui est de 0,50, hypothèse acceptable pour les matériaux grossiers (Peregoedova, 2011). De plus, les fonctions de perméabilité ont été prédites à l'aide de la méthode de Fredlund et Xing (1994) et une conductivité hydraulique à saturation en eau de 0,22 m/s déterminée avec le modèle Kozeny-Carman modifié (KCM) (Aubertin, Bussière et Chapuis, 1996; Mbonimpa, Aubertin, Chapuis et Bussière, 2002a). Ces fonctions (CRE et fonctions de perméabilité) sont présentées à la Figure 4-8.

La deuxième étape est la modélisation des essais de consommation d'oxygène, où la colonne devient un système fermé et où la concentration d'oxygène diminue en raison de la consommation par les minéraux sulfureux. Les conditions hydriques et les concentrations d'oxygène initiales de l'étape 2 représentent les conditions finales de l'étape 1. Le flux d'oxygène vers l'extérieur de la colonne est alors fixé à zéro et la baisse de concentration

d'oxygène est ajustée en modifiant K_r^* par essais et erreurs jusqu'à l'obtention d'une courbe se juxtaposant le plus possible avec les mesures prises au laboratoire (Mbonimpa et al., 2002b; Gosselin, 2007)

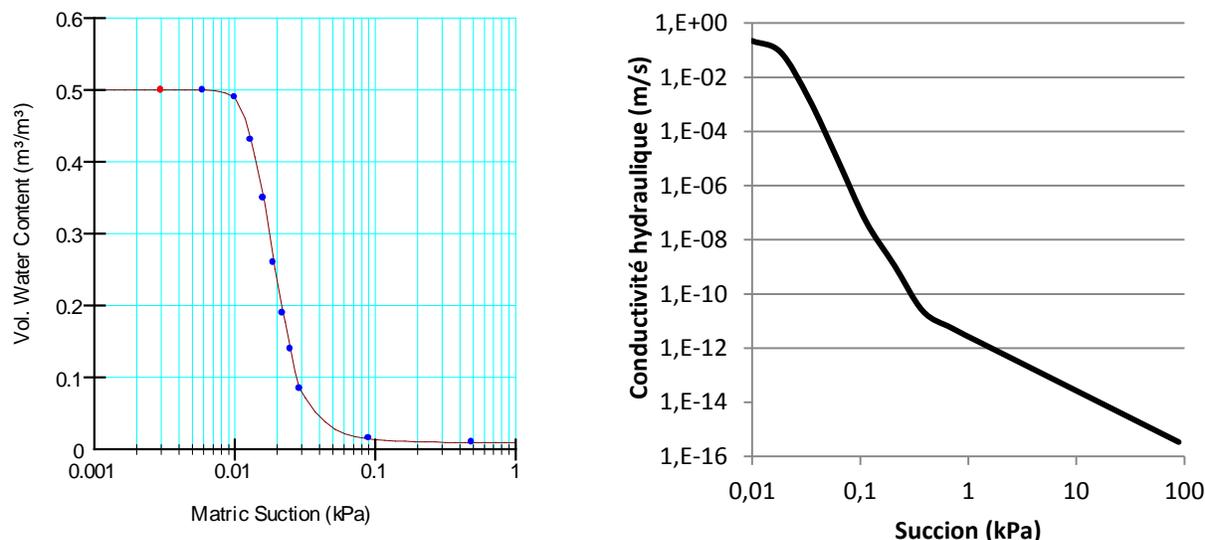


Figure 4-8: Courbe de rétention d'eau et fonction de perméabilité utilisées dans la modélisation par Vadose/W pour la colonne d'olivine-pyroxénite de la mine 3

La dernière étape consiste à modéliser une colonne dont le haut est ouvert et ayant le K_r^* trouvé précédemment. Elle vise à déterminer la quantité d'oxygène consommée par les stériles qu'on fixe équivalente au flux entrant dans la colonne en régime permanent.

Résultats obtenus avec VADOSE/W

Le schéma du modèle numérique utilisé dans VADOSE/W est montré à la Figure 4-9 où l'espace occupé par les stériles est en jaune et le réservoir d'air est en vert. Ce modèle est constitué de 20 éléments, dont les 2 supérieurs composent le compartiment d'air seulement et les 18 suivants représentent les stériles avec leur porosité de mise en place. Un résumé des différents paramètres d'entrée des deux étapes de la modélisation de l'essai de consommation d'oxygène de la colonne C3 est présenté au Tableau 4.5.

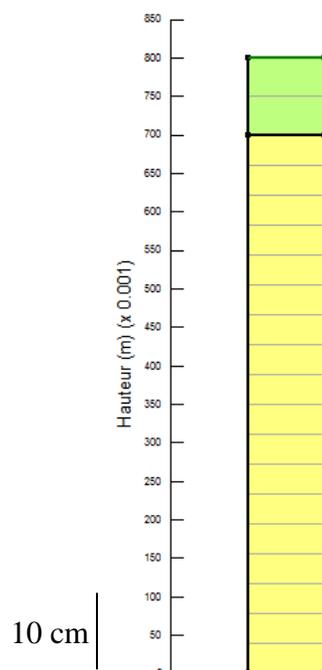


Figure 4-9: Colonne C3 modélisée avec le logiciel VADOSE/W pour l'interprétation des essais de consommation d'oxygène sur l'olivine-pyroxénite de la mine 3

Tableau 4.5: Paramètres d'entrée des étapes 1 et 2 la simulation 1D dans VADOSE/W

Entrées	Étape 1	Étape 2
Fichier source	C3 initial	C3 cons O2
Durée de la simulation	1 h	4 j
Pas de temps	73 s	0,08 j
Type d'éléments	Quadrilatères (intégration d'ordre 4)	
Nombre d'éléments	20	
Hauteur de chaque élément (m)	0,04	
Nombre de nœuds	42	
Conditions frontières	<p>Le niveau de la nappe phréatique se situe initialement à la surface des stériles et descend rapidement au niveau de la base de la colonne. La température est de 22°C. La concentration d'oxygène est de 20,9% (270 g/m³) dans les vides.</p>	<p>Le niveau de la nappe phréatique se situe au niveau de la base de la colonne. La température est de 22°C. Le flux d'oxygène est nul à la base et au haut de la colonne.</p>

La concordance des résultats obtenus au laboratoire et avec la simulation sont présentés à la Figure 4-10. Les résultats de cette modélisation ont donné un temps de demi-vie apparent $t_{1/2}^*$ correspondant à 0,2068 ans pour la réactivité des stériles contenus dans la colonne C3, ce qui donne une constante de réaction apparente K_r^* de $0,00918 \text{ j}^{-1}$ si la réaction d'oxydation des sulfures est d'ordre 1 et que les hypothèses mentionnées précédemment sont respectées. Les paramètres nécessaires au calcul de K_r sont présentés au Tableau 4.6. Les valeurs moyennes de θ_w et de θ_a dans les stériles lors de la modélisation ont été déterminées par Vadose/W. θ_w est négligeable dans le calcul de θ_{eq} qui équivaut à θ_a , d'une valeur de 0,490 (calculé selon l'équation 4.4). La valeur de K_r calculée avec l'Équation 4.3 est donc de $0,00450 \text{ j}^{-1}$. On estime le résultat significatif de l'ordre de grandeur de la réactivité des matériaux de la colonne C3. Pour fins de comparaison, le K_r obtenu est 10 fois plus petit que celui obtenu par Song et Yanful (2010) pour des stériles humides ($0,0460 \text{ j}^{-1}$) contenant 14 fois plus de soufre (17,6%) principalement présent sous forme de pyrite.

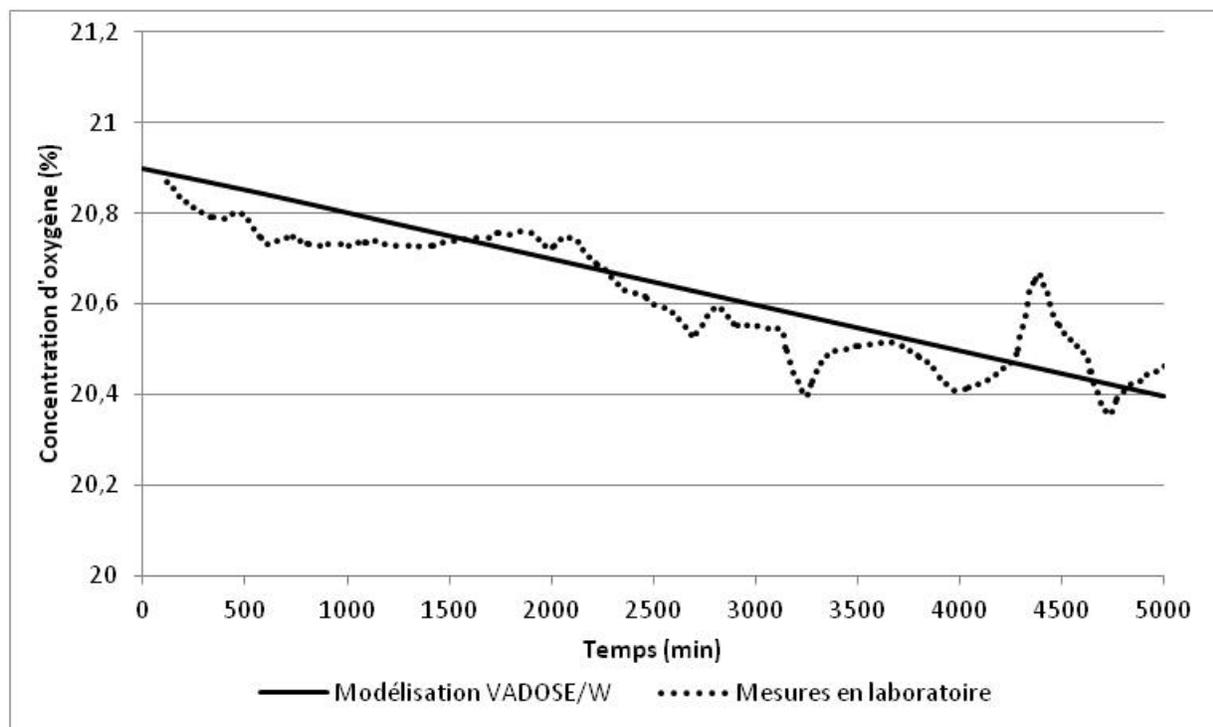


Figure 4-10: Comparaisons des concentrations d'oxygène à la hauteur de la sonde (0,8 m) selon les données prises en laboratoire et la modélisation VADOSE/W pour la colonne C3

Tableau 4.6: Paramètres nécessaires au calcul de K_r

Paramètre	Valeur
K_r^* (j^{-1})	0,00918
K_r (j^{-1})	0,00450
θ_{eq} (-)	0,490
θ_a moyen dans la colonne (-)	0,490
θ_w moyen dans la colonne (-)	0,0103
H (-)	0,03
Porosité n (-)	0,50

Un graphique des concentrations d'oxygène sur la hauteur totale de la colonne pour différents temps est montré à la Figure 4-11. On constate que la concentration d'oxygène diminue faiblement, de manière relativement uniforme dans le temps. Aussi, pour un temps donné supérieur à zéro, la concentration d'oxygène diminue légèrement dans la partie de la colonne où il y a des stériles (0,7 à 0 mètre) et elle est à peu près constante dans le réservoir d'air (0,7 à 0,8 mètre).

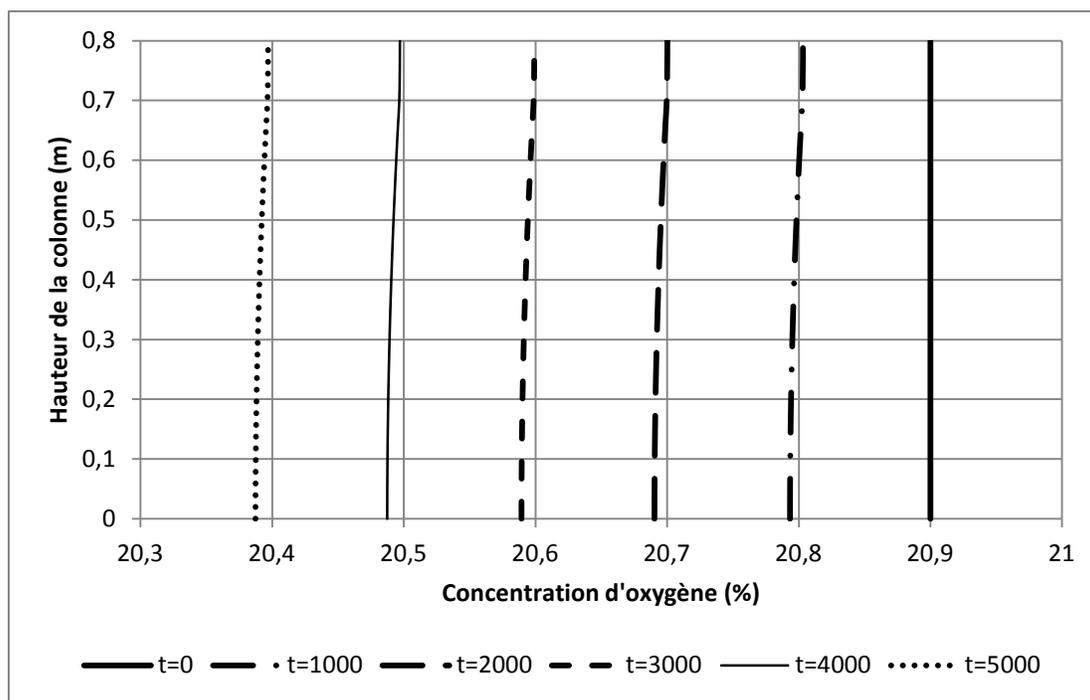


Figure 4-11: Concentrations d'oxygène modélisées avec le logiciel VADOSE/W sur la hauteur de la colonne C3 pour différents temps t (min)

La dernière partie de l'analyse consistait en une modélisation de la colonne sans couvercle afin d'évaluer le flux d'oxygène à la surface. Ce flux d'oxygène est estimé à $0,042 \text{ g O}_2/\text{m}^2/\text{j}$ ou $0,96 \text{ mol}/\text{m}^2/\text{an}$. Ce flux correspond à une consommation d'oxygène en régime permanent de $16 \text{ mg O}_2/\text{kg}$ stérile/an.

4.2 Interprétation des résultats et discussion

Dans les prochains paragraphes, une comparaison des différents résultats est d'abord présentée : la comparaison des colonnes standards et de leurs duplicatas (C1-C8 et C3-C9) vise à confirmer la reproductibilité des essais cinétiques; la comparaison des colonnes contenant un même matériau de granulométries différentes (C4-C10) montre l'effet de la présence de fines sur les essais cinétiques; et la comparaison entre l'évaluation de l'oxydation par la qualité des lixiviats et par les essais de consommation d'oxygène présentent les différences entre ces deux techniques. Une discussion sur le comportement géochimique observé dans les essais en colonnes est ensuite effectuée.

4.2.1 Comparaison des différents taux

Les taux de réaction des minéraux composants les stériles ont été obtenus à l'aide de différentes approches et pour différentes configurations dans cette étude. Cette section porte sur la comparaison des résultats obtenus en lien avec les similitudes ou les différences des matériaux utilisés ou des essais effectués. La reproductibilité des essais cinétiques en colonnes est d'abord abordée avec l'analyse des colonnes C1 et C3 et de leurs duplicatas C8 et C9 respectivement. L'effet de l'emploi de matériaux de distributions granulométriques différentes et de la présence de particules fines dans les essais cinétiques en colonnes est ensuite discuté avec la comparaison des colonnes C4 et C10. Les taux de production de sulfates des essais cinétiques sont finalement comparés aux taux de consommation d'oxygène de la colonne C3.

Reproductibilité des essais en colonnes

Une méthode statistique simple (similaire à celle proposée par Demers et Bussière, 2008; Demers et al., 2010a) a été utilisée afin d'analyser la reproductibilité des résultats provenant de deux colonnes en duplicata. Cette analyse vise à confirmer l'hypothèse que les résultats des deux essais sont identiques (ou proviennent de la même population). Étant donné le nombre limité de données utilisées, une méthode dérivée de la loi de Student présentée à l'équation 4.5 est utilisée,

où \bar{x} est la moyenne de l'échantillon, μ est la moyenne de la population, σ est l'écart-type et n est le nombre de données.

$$t = \frac{\bar{x} - \mu}{\sigma/\sqrt{n}} \quad [4.5]$$

La comparaison des résultats des deux colonnes est effectuée en prouvant que la différence entre les moyennes des deux ensembles de données est nulle, soit :

$$\mu_1 - \mu_2 = \mu_d = 0 \quad [4.6]$$

Un test bilatéral et des intervalles de confiance de 95 et 99% ont été utilisés pour l'étude. Le choix de l'intervalle de 95% est basé sur le théorème de Tchebycheff qui stipule que $\frac{3}{4}$ des mesures seront à l'intérieur de l'intervalle ± 2 écart-types autour de la moyenne, ce qui correspond au test bilatéral à 95%. Les résultats de ± 3 écart-types, représentant $\frac{8}{9}$ des mesures, sont aussi utilisés avec le test bilatéral à 99%. Le test effectué repose sur l'équation suivante :

$$\left| t = \frac{\bar{d} - 0}{\sigma/\sqrt{n}} \right| < t \text{ tabulé pour un intervalle de confiance donné} \quad [4.7]$$

où \bar{d} est la moyenne de la différence entre les résultats des deux ensembles de données, n est le nombre d'ensembles de données et σ est l'écart-type des différences. La comparaison des paramètres géochimiques obtenus des lixiviations des colonnes dupliquées ont été évalués avec l'équation 4.7. Les résultats relatifs aux colonnes 1 et 8 sont présentés au Tableau 4.7 et ceux des colonnes 3 et 9 au Tableau 4.8. On remarque dans ces tableaux qu'un seul paramètre ne se trouve pas à l'intérieur de l'intervalle de confiance de 95%, soit l'alcalinité des colonnes 1 et 8. Toutefois, ce paramètre ne présente pas une très grande disparité, car il est retrouvé à l'intérieur de l'intervalle de confiance de 99%. Seulement 1 des 20 paramètres testés se trouve alors légèrement à l'extérieur de l'intervalle de confiance choisi. Les critères utilisés pour confirmer la reproductibilité des essais cinétiques des colonnes 1 et 3 par les colonnes 8 et 9 sont donc à peu de chose près totalement respectés. Il est donc justifiable dans cette étude de ne pas faire tous les essais en duplicata ou triplicata. On peut assumer que lorsque les colonnes sont mises en place de façon méticuleuse, les résultats d'une seule colonne sont suffisants pour évaluer le comportement environnemental d'un matériau donné. La même observation a été faite par Demers et al. (2010a) pour des colonnes constituées de rejets de concentrateur.

Tableau 4.7: Statistiques de la loi de Student des paramètres géochimiques des colonnes 1 et 8 (contenant de la péridotite de la mine 3)

Paramètre	Moyenne	Écart-type	Degrés de liberté	t calculé	t tabulé (95%)	À l'intérieur de l'intervalle de confiance de 95%?	t tabulé (99%)	À l'intérieur de l'intervalle de confiance de 99%?
pH (-)	0,152	0,400	8	1,142	2,306	oui	3,355	oui
Eh (mV)	-31,267	190,204	8	-0,493	2,306	oui	3,355	oui
Conductivité ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	1,483	39,787	8	0,112	2,306	oui	3,355	oui
Alcalinité (mg/kg CaCO_3)	-2,444	2,744	8	-2,673	2,306	non	3,355	oui
Al (mg/kg/an)	0,020	0,074	7	0,752	2,365	oui	3,499	oui
Ca (mg/kg/an)	-4,243	6,896	7	-1,740	2,365	oui	3,499	oui
Mg (mg/kg/an)	-1,012	1,453	7	-1,969	2,365	oui	3,499	oui
Ni (mg/kg/an)	-0,022	0,030	7	-2,126	2,365	oui	3,499	oui
S (mg/kg/an)	-0,973	3,104	7	-0,886	2,365	oui	3,499	oui
Si (mg/kg/an)	0,853	2,296	7	1,051	2,365	oui	3,499	oui

Tableau 4.8: Statistiques de la loi de Student des paramètres géochimiques des colonnes 3 et 9 (contenant de l'olivine-pyroxénite de la mine 3)

Paramètre	Moyenne	Écart-type	Degrés de liberté	t calculé	t tabulé (95%)	À l'intérieur de l'intervalle de confiance de 95%?	t tabulé (99%)	À l'intérieur de l'intervalle de confiance de 99%?
pH (-)	-0,127	0,514	8	-0,740	2,306	oui	3,355	oui
Eh (mV)	-36,578	116,06	8	-0,945	2,306	oui	3,355	oui
Conductivité ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	2,389	18,331	8	0,391	2,306	oui	3,355	oui
Alcalinité (mg/kg CaCO_3)	0,046	0,012	8	-0,325	2,306	oui	3,355	oui
Al (mg/kg/an)	-0,016	0,049	7	-0,924	2,365	oui	3,499	oui
Ca (mg/kg/an)	5,441	9,000	7	1,710	2,365	oui	3,499	oui
Mg (mg/kg/an)	0,553	1,869	7	0,837	2,365	oui	3,499	oui
Ni (mg/kg/an)	0,000	0,000	7	-	2,365	oui	3,499	oui
S (mg/kg/an)	-1,083	1,974	7	-1,551	2,365	oui	3,499	oui
Si (mg/kg/an)	0,949	1,633	7	1,644	2,365	oui	3,499	oui

Effet de la présence de fines

Les colonnes C4 et C10 contenaient un échantillon du même type de stériles, soit l'olivine-pyroxénite de la mine 2. La colonne C4 ne contenait pas de particules de taille inférieure à 1,3 cm, tandis que celles-ci constituaient 20% de la masse de la colonne C10. Leur présence pourrait avoir un impact sur le comportement hydrogéologique (voir section 3.6) et géochimique lors des essais en colonnes. Plus spécifiquement :

- La nature des matériaux peut différer selon la distribution granulométrique et plus précisément la proportion de la fraction fine : la partie fine de C10 représentative des échantillons des mini-cellules d'altération (<0,45mm) représente environ 5% de sa masse et contient 0,80% S; la fraction entre 1,3 et 7 cm contient 0,44% S. La colonne C10 contient alors légèrement plus de sulfures que C4.
- La présence de fines particules augmente la rétention d'eau et diminue la conductivité hydraulique. D'ailleurs, la conductivité hydraulique de la colonne C10, estimée à l'aide d'un modèle prédictif (voir Annexe B.2) est 3 fois plus faible que celle de la colonne C4. Aussi, lors du démantèlement, les matériaux de la colonne C4 étaient totalement secs, tandis que ceux au bas de la colonne C10 étaient encore humides. Il a aussi été observé au démantèlement que bien que la colonne C10 ait été initialement remplie de manière homogène, les 30 à 40 centimètres supérieurs ne contenaient presque plus de fines. Leur migration vers la moitié inférieure de la colonne s'est donc produite avec le temps, affectant le comportement hydrogéochimique des stériles dans cette colonne.
- La surface spécifique (estimée à partir de la granulométrie) de la colonne C10 équivaut à 2,16 fois celle de C4 (respectivement $1,93 \cdot 10^{-3}$ et $8,91 \cdot 10^{-4}$ m²/g, voir section 3.6.1). La fraction de particules fines représente donc 50% de l'ensemble de la surface de contact. Pour la même masse de roches, la surface spécifique augmente exponentiellement alors que la taille des particules décroît (Price et Kwong, 1997). Comme les réactions d'oxydation et de neutralisation sont des réactions essentiellement de surface, on doit s'attendre à des réactivités différentes entre les deux colonnes.

Les résultats des essais cinétiques des colonnes C4 et C10 sont comparés au Tableau 4.9. Celui-ci inclut aussi les résultats de la colonne C10 où les taux de réaction ont été normalisés par

rapport à la surface spécifique lorsque pertinent (en fonction du rapport des surfaces spécifiques des colonnes, qui est de 2,16).

Tableau 4.9: Moyennes des résultats électrochimiques, de l'alcalinité et des taux de lixiviation des éléments (en mg/kg stérile/an) pour les colonnes C4, C10, et C10 normalisés

	Moyennes par lixiviation				Moyennes par masse de stérile par unité de temps (mg/kg/an)			
	pH	Eh (mV)	Alcalinité (mgCaCO ₃ /L)	Conductivité (μS/cm)	Ca	Mg	S	Si
C4	8,96	383,49	12,73	54,45	17,006	5,964	7,005	1,981
C10	9,26	350,94	14,57	98,89	39,267	17,736	31,256	4,474
C10 normalisés	-	-	-	45,72	18,156	8,200	14,452	2,069

Tableau 4.10: Statistiques de la loi de Student des paramètres géochimiques des colonnes 4 et 10 contenant de l'olivine-pyroxénite de la mine 2 de granulométries différentes

Résultats		Moyenne	Écart-type	Degrés de liberté	t calculé	t tabulé (95%)	À l'intérieur de l'i.de c. de 95%?	t tabulé (99%)	À l'intérieur de l'i.de c. de 99%?
Résultats bruts	pH	0,215	0,699	12	1,108	2,179	oui	3,055	oui
	Eh (mV)	80,51	135,8	12	2,137	2,179	oui	3,055	oui
	Alcalinité (mg/kg CaCO ₃)	-5,462	3,573	12	-5,511	2,179	non	3,055	non
Résultats bruts (C4) et normalisés (C10)	Conductivité (μS/cm)	8,998	23,593	11	1,321	2,201	oui	3,106	oui
	Ca (mg/kg/an)	-0,177	5,653	11	-0,109	2,201	oui	3,106	oui
	Mg (mg/kg/an)	-2,542	2,259	11	-3,898	2,201	non	3,106	non
	S (mg/kg/an)	-6,723	4,834	11	-4,818	2,201	non	3,106	non
	Si (mg/kg/an)	0,062	0,681	11	0,317	2,201	oui	3,106	oui

On constate une plus grande similarité des résultats de C4 avec les résultats normalisés de C10. La loi de Student a été utilisée pour mieux comparer les tendances (voir Tableau 4.10). Les pH, Eh, ainsi que la conductivité et les taux de lixiviation de Ca et de Si (ces trois derniers étant normalisés pour C10) sont semblables. Toutefois, l'alcalinité, ainsi que les taux de lixiviation de Mg et de S (tous normalisés pour C10) demeurent plus élevés que pour la colonne C4.

Les taux de lixiviation observés dans la colonne C10 normalisés, supérieurs à ceux de la colonne C4, pourraient être expliqués par sa teneur en sulfures légèrement plus élevée en raison des fines particules. L'effet des particules fines sur la rétention d'eau est un autre effet qui n'est pas intégré dans la normalisation par la surface spécifique et qui peut influencer le comportement de la colonne. Les plus grandes concentrations de Ca et de Mg normalisés dans les lixiviats issus de la colonne C10 sont produites en réponse à de plus importants taux d'oxydation, engendrant aussi davantage de neutralisation de la part de l'augite, de l'hornblende, de la chlorite et de la serpentine. Ces résultats montrent l'importance de la granulométrie dans le comportement hydrogéochimique des colonnes et qu'une normalisation par rapport à la surface spécifique (tous les autres paramètres étant similaires) peut permettre de ramener les résultats sur une même base.

Comparaison des taux de lixiviation du soufre et de consommation d'oxygène

Les résultats des essais cinétiques (en particulier pour le relargage de sulfates) et de consommation d'oxygène de la colonne C3 sont présentés au Tableau 4.11. Pour ce faire, une estimation de la production de soufre sous forme de sulfates a été calculée à partir de la consommation d'oxygène en utilisant les coefficients stœchiométriques de la réaction d'oxydation chimique directe de la pyrrhotite (voir section 2.1.1). Cette comparaison peut être faite seulement si l'oxygène est le seul agent oxydant, ce qui est réaliste à des pH près de la neutralité (Nicholson et al., 1988), et s'il n'y a pas de rétention des sulfates dans la colonne, ce qui est probable dans les conditions géochimiques retrouvées dans les colonnes (voir aussi la section 4.2.3 sur la modélisation géochimique). Avec cette méthode, le taux de lixiviation de soufre de la colonne C3 serait de 17,1 mg S/kg stérile/an. On remarque que la lixiviation de soufre (moyenne de 3,00 mg S/kg stérile/an) est entre cinq et six fois plus élevée, mais du même ordre de grandeur que la production de soufre convertie de l'essai de consommation d'oxygène.

Quelques facteurs ont influencé ces résultats en raison des caractéristiques des essais effectués. Une première différence est la période temporelle requise pour leur réalisation. L'essai de consommation d'oxygène donne la réactivité sur la période testée (dans les 5000 minutes suivant un drainage, soit environ 3 jours et demi), tandis que l'essai cinétique (teneur en soufre dans le lixiviat) mesure la réactivité moyenne entre deux lixiviations. De plus, un seul essai de consommation d'oxygène a été réalisé alors que les analyses des 13 lixiviations ont été utilisées

pour le calcul de la réactivité à partir de la concentration en S dans les lixiviats. La précision de l'essai de consommation d'oxygène est d'ailleurs influencée par les fluctuations de température.

Tableau 4.11: Comparaison des résultats de lixiviation de S et de consommation d'oxygène de la colonne C3

Colonne	Baisse de la concentration d'oxygène au niveau du senseur (%)	Consommation d'oxygène (mg O ₂ /kg stérile/an)	Conversion de la consommation d'oxygène en production de S par la pyrrhotite (mg S/kg stérile/an)	Taux de lixiviation de S moyen lors des essais cinétiques (mg S/kg stérile/an)
C3	0,50	16	17,1	3,000

Des essais en colonnes semblables à ceux de cette étude ont été effectués par d'autres chercheurs sur des stériles miniers et ont montré une bonne concordance entre les taux de lixiviation de sulfates et la consommation d'oxygène de stériles (Song et Yanful, 2010). Par ailleurs, Anderson et al. (1999) a obtenu des taux d'oxydation semblables pour la méthode avec mesure de la production de sulfates dans les lixiviats et la méthode consommation d'oxygène pour des stériles contenant de la pyrite, mais des taux obtenus par consommation d'oxygène trois fois plus élevés que les taux de production de sulfates pour des stériles contenant de la pyrrhotite. Ce phénomène pourrait être expliqué par un délai dans la lixiviation de sulfates provenant de la pyrrhotite attribué à l'oxydation partielle du soufre et la formation subséquente d'une couche riche en soufre à la surface de la pyrrhotite formée avant l'atteinte du régime pseudo-permanent de lixiviation des différents éléments du minéral (Nicholson et Scharer, 1994; Kwong, 1995; Janzen, 1996). La présence de soufre élémentaire et de minéraux riches en soufre (telle la marcassite) ont aussi été observés sur la surface de la pyrrhotite oxydée par d'autres auteurs (Steger, 1982; Jambor, 1994). L'âge des stériles peut donc faire la différence dans le rapport Fe :S des taux de réaction de la pyrrhotite. Elberling et Nicholson (1996) ont, pour leur part, observé des réactivité similaires de la pyrrhotite par la consommation d'oxygène et la lixiviation de sulfates *in situ* de résidus exposés aux conditions environnementales depuis plusieurs années. Les comportements de ces deux essais observés pour la pyrite et la pyrrhotite contenus dans un matériel frais montrent l'importante influence des processus géochimiques qui surviennent dans les systèmes, telles les séquences de réactions et les différences entre les réactions primaires et secondaires (Anderson et al., 1999).

En résumé, les essais de consommation d'oxygène procurent une évaluation des taux d'oxydation réaliste. De plus, l'avantage de cette approche est qu'elle est indépendante des réactions géochimiques complexes se produisant lors des processus d'oxydation des minéraux sulfureux.

4.2.2 Potentiel de génération de DMA et de DNC à long terme

On a pu observer à travers les résultats des essais en colonnes que les stériles échantillonnés ne sont pas générateurs de drainage minier acide à court terme, et que seul la péridotite de la mine Kikialik produit du Ni de façon significative (mais inférieure aux critères réglementaires). Par contre, d'autres méthodes d'analyses peuvent être utilisées afin de déterminer si, à long terme, les stériles peuvent être problématiques.

Potentiel de génération de DMA

À partir des résultats des essais en colonnes, il a été remarqué que les stériles de Raglan ne sont pas générateurs d'acidité à court terme, les lixiviats demeurant à pH neutres. Ces résultats ne signifient toutefois pas qu'une génération d'acidité à long terme est impossible. Pour effectuer des prédictions à long terme, une ou des méthodes d'interprétation doivent être utilisées. Plusieurs de ces méthodes ont été testées sur des rejets miniers près de la zone d'incertitude des essais statiques ou à l'intérieur de celle-ci (Villeneuve, Bussière, Benzaazoua et Aubertin, 2009). Parmi les outils disponibles, deux approches ont été sélectionnées pour cette étude : la méthode des relations d'oxydation et de neutralisation (Benzaazoua et al., 2001; Benzaazoua et al., 2004; Hakkou et al., 2008; Villeneuve et al., 2009; Plante, 2010) et l'estimation des temps nécessaires à l'épuisement du PN et du PA (White et Jeffers, 1994; Villeneuve et al., 2009). Les méthodes utilisées reposent sur les hypothèses suivantes : l'environnement géochimique (pH, Eh, température, le ratio entre les produits d'oxydation et de neutralisation) est constant et les taux de réaction de S ainsi que la moyenne des taux produits de réaction de neutralisation demeurent stables. De plus, les résultats des essais en colonnes sont utilisés dans les méthodes d'interprétation, et incluent donc tous les phénomènes géochimiques qui se produisent dans celles-ci (oxydation, neutralisation, précipitation, sorption, etc.).

La construction des relations d'oxydation-neutralisation est effectuée avec les droites de la Figure 4-6 extrapolées. Les points projetés dans le graphe représentent les teneurs initiales en S (mg/kg) et en Ca+Mg+Mn (mg/kg) de la composition solide des stériles. Si un point (concentration

initiale du solide) se retrouve au dessus de l'extrapolation de la relation oxydation et neutralisation du même matériau, le stérile n'est pas considéré générateur d'acidité à long terme, puisqu'il possède plus de pouvoir neutralisant que de potentiel d'acidité provenant des sulfures. Si le point se situe sous la droite d'extrapolation, le stérile est potentiellement générateur d'acidité à long terme. Dans ce cas, les minéraux neutralisants vont agir jusqu'à leur disparition, après quoi la production d'acidité ne sera plus restreinte. On remarque à la Figure 4-12 que les points des concentrations chimiques initiales des stériles sont tous au-dessus des relations d'oxydation et de neutralisation des lixiviats. Donc, les stériles échantillonnés ne sont pas considérés générateurs de drainage minier acide à long terme selon cette méthode.

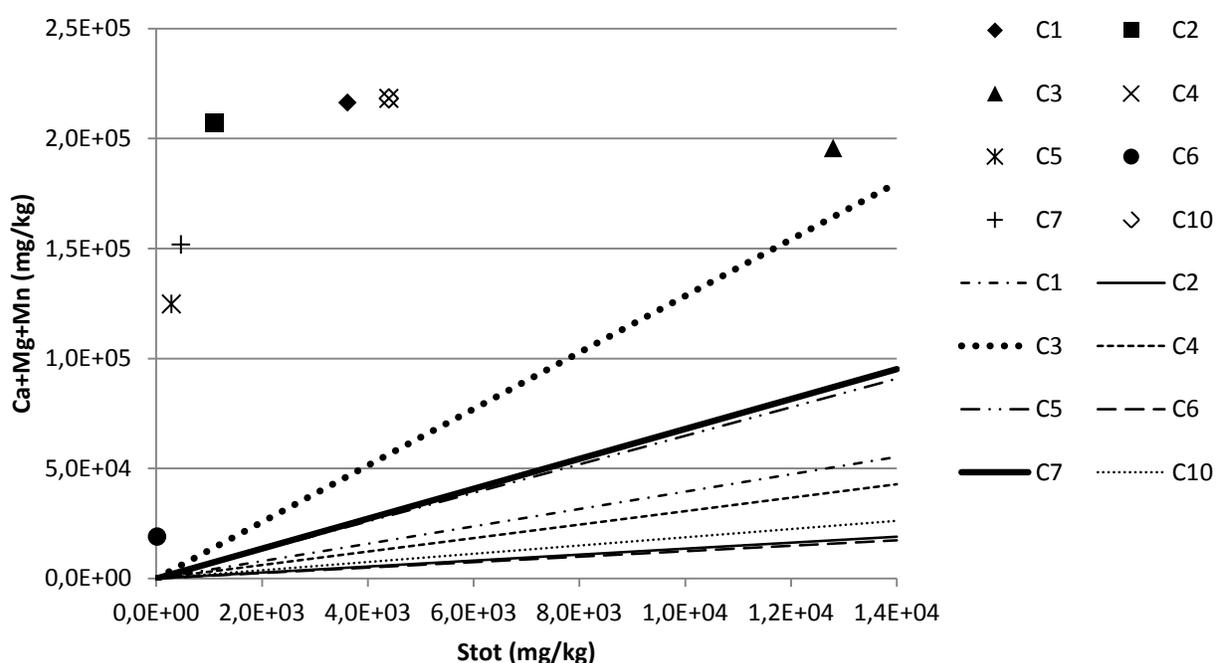


Figure 4-12: Extrapolation des relations d'oxydation et de neutralisation des sept types de stériles

Pour donner une idée du temps nécessaire à la production de toute l'acidité par les échantillons de la présente étude, l'épuisement des principaux éléments représentant l'oxydation (S) et la neutralisation (Ca+Mg+Mn) pour la durée totale des essais cinétiques en colonnes sont montrés au Tableau 4.12. On remarque que la proportion de soufre restante dans l'échantillon solide est inférieure aux proportions des éléments neutralisants (Ca+Mg+Mn). Moins de 2% de la quantité totale de soufre a été lixiviée lors de l'année d'essais, sauf pour la colonne C6 qui possède une très faible concentration de soufre.

Tableau 4.12: Épuisements du soufre, du calcium, du magnésium et du manganèse dans les stériles pour la durée totale des essais cinétiques en colonnes (1 an).

Colonne	% restant				
	S _{total}	Ca+Mg+Mn	Ca	Mg	Mn
C1 Péridotite mine 3	99,80	99,99	99,86	100,00	100,00
C2 Péridotite Kikialik	98,18	99,99	99,87	99,99	100,00
C3 Olivine-pyroxénite mine 3	99,94	99,96	98,97	99,99	100,00
C4 Olivine-pyroxénite mine 2	99,71	99,98	99,91	99,99	100,00
C5 Gabbro mine 2	98,25	99,98	99,97	99,99	100,00
C6 Argilite mine 3	81,56	99,97	99,95	99,98	99,99
C7 Volcanique	98,60	99,98	99,96	99,99	100,00
C8 Péridodite mine 3 duplicata	99,81	99,99	99,87	100,00	100,00
C9 Olivine-pyroxénite mine 3 duplicata	99,92	99,97	99,15	99,99	100,00
C10 Olivine-pyroxénite mine 2 avec fines	99,06	99,96	99,84	99,99	100,00

Les temps nécessaires à l'épuisement de la totalité du potentiel de génération d'acidité (Temps PA) et de neutralisation (Temps PN) des stériles des différentes colonnes ont aussi été calculés selon la norme ASTM D 5744-07. Si le temps de consommation du PN est inférieur à celui du PA, l'échantillon aura un potentiel de génération d'acidité, et vice-versa. Les temps d'épuisement sont calculés selon les formules suivantes :

$$\text{Temps PA} = S_{\text{stériles}}/R_S \quad [4.8]$$

$$\text{Temps PN} = \text{PN}/(R_{\text{Ca}}+R_{\text{Mg}}) \quad [4.9]$$

où $S_{\text{stériles}}$ est la concentration initiale de soufre sous forme de sulfures dans le stérile (mg S/kg stérile; voir Tableau 3.9), PN est le potentiel de neutralisation initial du stérile évalué avec la méthode de Sobek modifiée (kg CaCO₃/t rejet; voir Tableau 3.13), R_S est le taux de production de soufre en régime permanent (mg S/kg/an; voir Tableau 4.4), R_{Ca} est le taux de production de calcium en régime permanent (kg CaCO₃/t/an) et R_{Mg} est le taux de production de magnésium en régime permanent (kg CaCO₃/t/an) (White et Jeffers, 1994; Villeneuve et al., 2009). Les taux de lixiviation de Ca et Mg exprimés en mg/kg stérile/an au Tableau 4.4 ont été multipliés par la masse molaire du CaCO₃ et divisés par 1000 fois leur propre masse molaire pour être transposés en kg CaCO₃/t/an (ex. $R_{\text{Ca}} = 10,4 \text{ mg Ca/kg/an} \cdot 100,09 \text{ mg CaCO}_3/(40,08 \text{ mg Ca} \cdot 1000) = 2,6 \cdot 10^{-2} \text{ kg CaCO}_3/\text{t/an}$).

On obtient au Tableau 4.13 des valeurs de Temps PN - Temps PA négatives pour l'olivine-pyroxénite de la mine 3 (C3 et C9) et de la mine 2 (C4, mais pas pour C10), signifiant qu'elles ont un potentiel de génération d'acidité à long terme selon la méthode. Celles-ci sont aussi négatives pour la péridotite de la mine 3 (C1 et C8), mais beaucoup plus rapprochées de zéro.

Tableau 4.13: Données nécessaires au calcul et résultats des temps nécessaires à la lixiviation de toute l'acidité (temps PA) et du potentiel de neutralisation (temps PN) et leur soustraction

#Col.	S _{stériles} (mg S/kg stérile)	Temps PA (ans)	PN (kgCaCO ₃ /t)	R _{Ca} (kg CaCO ₃ /t/an)	R _{Mg} (kg CaCO ₃ /t/an)	Temps PN (ans)	Temps PN - Temps PA (ans)
C1	3620	1111	40,5	2,60E-02	1,10E-02	1094	-17
C2	1100	84	29,3	1,84E-02	3,18E-02	584	500
C3	12800	4239	37,5	9,42E-02	2,34E-02	319	-3920
C4	4400	626	33,1	4,25E-02	2,46E-02	493	-133
C5	290	144	10,1	3,10E-02	8,79E-03	255	111
C6	20	14	1,8	2,39E-03	3,35E-03	313	299
C7	470	164	41,9	5,22E-02	1,10E-02	662	498
C8	3620	741	40,5	4,27E-02	1,66E-02	682	-59
C9	12800	1933	37,5	1,16E-01	3,25E-02	253	-1680
C10	4400	141	33,1	9,81E-02	7,30E-02	193	52

Les conclusions de ces deux méthodes ne sont donc pas les mêmes, et leur zone d'incertitude n'est pas connue. Leur principale différence est que les relations d'oxydation-neutralisation considèrent que le PN provient de la totalité du Ca, du Mg et du Mn contenu dans les minéraux neutralisants des stériles, tandis que la norme ASTM considère le PN de la méthode Sobek modifiée. Or, il s'avère que cette méthode (Sobek modifiée) ne considère pas le plein potentiel de la neutralisation par des silicates (Kwong et Ferguson, 1997; Bouzahzah, Benzaazoua, Bussière et Plante, 2011). Les deux méthodes considèrent aussi que les taux de Ca+Mg (celui de Mn étant négligeable) seront constants de manière temporelle, tandis que les stériles de cette étude contiennent des silicates qui réagissent de manière incongruente et peuvent préférentiellement lixivier du Ca dans les premiers cycles (Plante, Benzaazoua et Bussière, 2010a). Les résultats de ces méthodes sont comparés à ceux des essais statiques (voir section 3.6.4) au Tableau 4.14. On remarque que les 2 types de stériles dont le verdict de PGA est incertain d'après les essais statiques (olivine-pyroxénite des mines 2 et 3) sont générateurs d'acidité d'après la méthode des temps d'épuisement. Ceux-ci, ainsi que la péridotite de la mine

3, sont générateurs d'acidité d'après la méthode des temps d'épuisements, et aucun n'est générateur d'acidité selon la méthode des relations d'oxydation-neutralisation. On peut toutefois considérer que la méthode des temps d'épuisement donne un scénario pessimiste et que la méthode des relations d'oxydation-neutralisation est probablement plus près de la réalité quant au potentiel de génération d'acidité pour des matériaux dont la neutralisation provient de minéraux silicatés.

Tableau 4.14: Évaluation du potentiel de génération d'acidité à long terme selon les trois méthodes

Paramètre	Essais statiques	Relations d'oxydation-neutralisation	Temps d'épuisement
C1 Péridotite mine 3	non	non	oui (de peu)
C2 Péridotite East Lake	non	non	non
C3 Olivine-pyroxénite mine 3	incertain	non (de peu)	oui
C4 Olivine-pyroxénite mine 2	incertain	non	oui
C5 Gabbro mine 2	non	non	non
C6 Argilite	non	non	non
C7 Volcanique	non	non	non
C10 Olivine-pyroxénite mine 2 avec fines	incertain	non	non

Potentiel de génération de DNC

Après avoir déterminé que les stériles ont un potentiel de génération d'acide de nul à incertain (cas du stérile olivine-pyroxénite de la mine 3), il est pertinent de se pencher sur leur potentiel de génération de contaminants à pH neutre.

À partir des résultats de qualité d'eau obtenus lors des essais en colonne, parmi les espèces chimiques dont les concentrations maximales sont réglementées par la Directive 019 et le REMM, on constate que seul le nickel est relargué de manière non négligeable et ce, par seulement un type de stérile : la péridotite de la mine Kikialik. En dessinant le graphique des quantités cumulées de nickel en fonction du temps (voir la Figure 4-13), on peut remarquer une quasi linéarité dans la production de nickel.

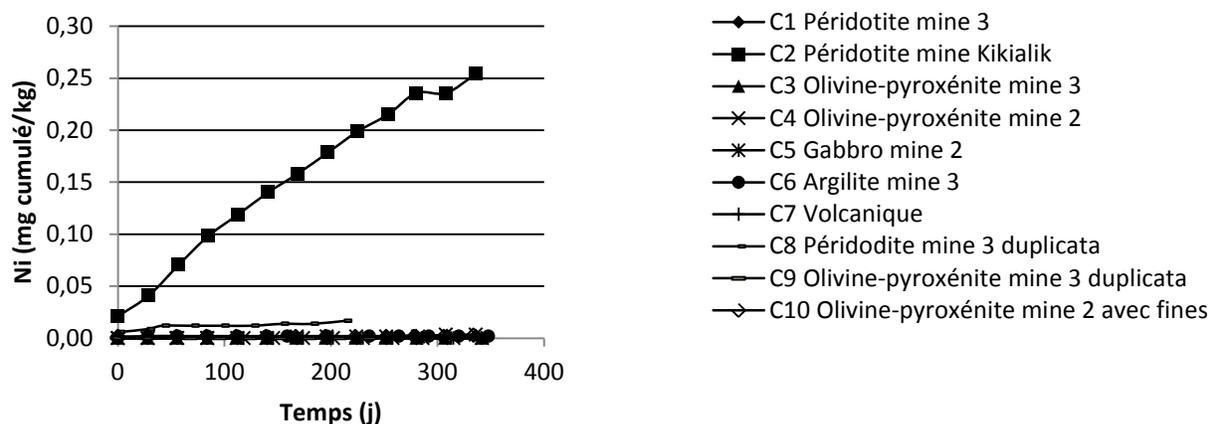


Figure 4-13: Charge cumulée de nickel des lixiviats des essais en colonnes

Lorsque l'on approxime les données de la colonne C2 à la Figure 4-13 par une relation linéaire, on obtient une pente équivalente à son taux de lixiviation moyen qui est de 0,280 mg Ni/kg stérile/an ($R^2=0,993$). Pour visualiser davantage ces résultats, posons l'hypothèse que ce taux reste stable dans le temps et que 3% du nickel que possède la roche soit disponible, alors plus de 200 ans seraient nécessaires avant l'arrêt de la contamination par le nickel.

De plus, les rapports Ni/S des matériaux des colonnes C1, C3, C4 et C10 qui contiennent des quantités de Ni du même ordre grandeur ou plus grandes que celles de la colonne C2 sont présentés au Tableau 4.15. On remarque que le plus petit rapport est obtenu par l'olivine-pyroxénite de la mine 3 (0,3). On peut utiliser dans l'Équation 4.10 ce rapport pour estimer que la quantité de nickel hypothétiquement mise en solution par les stériles serait équivalente à 30% de la quantité de soufre lixiviée (qui est le rapport Ni/S le plus faible, soit celui de l'olivine-pyroxénite de la mine 3).

$$Ni^{2+}_{\text{moyen généré estimé}} = S_{\text{moyen lixivié}} \cdot 30\% \quad [4.10]$$

On remarque au Tableau 4.15 que la valeur trouvée à partir de l'équation 4.10 pour C2 (4,03 mg Ni/kg stérile/an) est 14 fois plus élevée que le taux de lixiviation de l'essai en colonne (0,280 mg Ni/kg stérile/an). Le taux prédit pour la colonne C10 est quant à lui le plus élevé (9,65 mg Ni/kg stérile/an) et ceux des autres colonnes sont inférieurs à 2,17 mg Ni/kg stérile/an. Dans nos essais en colonne, les concentrations en nickel se trouvaient presque toujours sous la limite de détection lors de l'expérimentation et on observe ici que si le nickel était libéré de manière proportionnelle

au soufre, il serait mesurable dans les lixiviats des colonnes C1 à C4 et C10. Aussi, si on considérait que tout le soufre lixivié lors de l'essai en colonne était lié à la pentlandite et qu'aucun phénomène n'empêchait la libération du nickel, ces concentrations seraient entre 0,6 et 4,8 mg/L, soit au-dessus de la Directive 019. Des types de stériles autres que la péridotite de la mine Kikialik pourraient donc aussi avoir un potentiel de contamination en nickel même si cette contamination n'a pas été observée dans les lixiviats. Les différences entre les taux et concentrations théoriques et ceux observés dans les essais en colonne sont reliés aux autres phénomènes qui peuvent soit retenir le Ni (sorption et précipitation par exemple) ou au fait qu'une source de S n'est pas liée à la génération de Ni.

Tableau 4.15: Estimés de la production de Ni maximale et à partir de l'équation 4.10

Colonne	Type de stériles	Rapport Ni/S	Ni généré à partir de l'équation 4.10 (mg/kg stérile/an)
C1	Péridotite mine 3	0,5	1,01
C2	Péridotite Kikialik	1,9	4,03
C3	Olivine-pyroxénite mine 3	0,3	0,93
C4	Olivine-pyroxénite mine 2	0,7	2,17
C10	Péridotite mine 3	0,7	9,65

4.2.3 Discussion sur les phénomènes géochimiques impliqués

Lors des essais en colonnes, plusieurs phénomènes géochimiques peuvent se produire, affectant ainsi la production ou l'atténuation de la contamination. Les principaux sont l'oxydation des sulfures et leur potentiel de passivation, la dissolution de minéraux neutralisants, la sorption et la précipitation de contaminants. La combinaison de ces phénomènes donnera une certaine qualité d'eau à l'effluent final des colonnes. Dans ce qui suit, on tente d'évaluer certains phénomènes en présence (précipitation, et sorption) et leur importance dans les colonnes testées.

Précipitation de minéraux secondaires

Le logiciel PHREEQC (Parkhurst et Appelo, 1999) a été utilisé pour modéliser les conditions d'équilibre thermodynamiques de la 7^e lixiviation des colonnes 1 à 7; ce cycle est considéré représentatif du comportement géochimique des colonnes après l'atteinte d'un pseudo-équilibre.

Ce modèle permet de calculer l'activité des ions et leur spéciation pour une gamme de conditions (température, pression, concentration, pH, Eh). Ces résultats sont ensuite utilisés pour calculer l'indice de saturation d'une variété de minéraux, ainsi que pour évaluer la distribution des éléments entre les phases gazeuse, liquides et solides. Ce type de modèle est communément utilisé pour mieux comprendre le comportement géochimique de résidus miniers (Blowes, Ptacek, Jambor et Weisener, 2003; Villeneuve, Bussière, Benzaazoua, Aubertin et Monroy, 2003; Bussière, Benzaazoua, Aubertin et Mbonimpa, 2004; Plante et al., 2010a). Dans cette étude, la modélisation a permis d'évaluer quels minéraux secondaires sont en conditions de précipitation à partir des conditions et des concentrations ioniques des lixiviats.

Les résultats ont principalement montré qu'il y a précipitation d'oxydes, d'hydroxydes et d'oxyhydroxydes de fer dans C6 (contenant l'argilite de la mine 3), qui est la seule ayant une concentration en Fe au-dessus de la limite de détection. Parmi les minéraux susceptibles de se former, mentionnons l'hématite (Fe_2O_3), la magnétite (Fe_3O_4), la lépidocrocite (FeOOH), la goethite (FeOOH) et la ferrihydrite ($\text{Fe}(\text{OH})_3$). La concentration du nickel est plus élevée pour le lixiviat #7 de C2, et selon les résultats de la modélisation, celui-ci demeure en solution. La précipitation de Ni_2SiO_4 est obtenue dans les colonnes C4 et C8 qui ont une concentration de Ni pratiquement équivalente à la limite de détection de l'analyse. La précipitation de $\text{Ni}(\text{OH})_2$ semble probable dans les colonnes C1, C2, C3 et C4 étant donné les pH plus élevés, la présence de sulfures de nickel et la lixiviation de soufre qui provient de l'oxydation des sulfures, mais n'est pas obtenue dans les résultats de la modélisation. Comme mentionné dans le chapitre 2, le nickel est un élément pouvant être soluble à des pH neutres (<8), et sa précipitation en oxyhydroxydes est très probable à des $\text{pH} > 8$ et effective à des $\text{pH} > 8,5$. Les résultats ne montrent pas de précipitation de sulfates, ni d'aucun autre minéral soufré, ce qui confirme que l'évaluation des taux d'oxydation des sulfures avec les taux de lixiviation de S est adéquate. La précipitation de quelques minéraux contenant du Ca ou du Mg, liés à du Al, Fe, Mg et/ou Si, est aussi suggérée pour les colonnes C3, C5, C6 et C7, ce qui n'a pas empêché d'obtenir de bonnes relations d'oxydation et de neutralisation (voir Tableau 4.1). Le Tableau 4.16 présente un sommaire des résultats des modélisations des conditions d'équilibre géochimique.

Tableau 4.16: Propriétés des 7^e lixiviats issus des colonnes et minéraux précipités selon la modélisation avec le logiciel PHREEQC

#Colonne	Propriétés du lixiviat #7										Minéraux secondaires précipités		
	pH	Eh	Al (ppm)	Ca (ppm)	Fe (ppm)	Mg (ppm)	Mn (ppm)	Ni (ppm)	S (ppm)	Si (ppm)	Oxydes, hydroxydes et oxyhydroxydes de Fe	Minéraux contenant du Ca	Minéraux contenant du Mg
C1	9,02	363,2	0,012	1,72		0,45			0,271	0,53			
C2	7,87	362		1,41		1,47		0,052	2,05	1,38			
C3	9,17	311,2	0,01	6,72		0,963	0,002		0,552	1,05		x	x
C4	8,67	386,8		3,27		1,17		0,005	1,35	0,569			
C5	9,56	405,7	0,058	2,82		0,489			0,437	0,608		x	x
C6	7,03	456,6	0,011	0,201	0,016	0,162	0,003		0,196	2,02	x	x	x
C7	9,04	302,7	0,055	4,55		0,59	0,002		0,598	0,607		x	

Rétention du nickel dans les stériles

La présence de sulfates dans le lixiviat confirme qu'il y a oxydation de sulfures et en conséquence qu'il y a génération de métaux (Fe, Ni) sous forme ionique. On s'attarde ici au cas du nickel, qui peut être lixivié ou retenu au sein des stériles à travers certains phénomènes. En plus de sa potentielle précipitation que les modélisations d'équilibre thermodynamique n'ont pas permis de prédire, la sorption peut aussi causer sa rétention dans les stériles. D'ailleurs, les essais effectués dans la section 3.6.5 ont montré que tous les types des stériles de cette étude avaient un certain potentiel de sorption et ont donc un certain potentiel pour retenir le nickel qu'ils génèrent. Celle-ci est toutefois un phénomène réversible selon l'évolution des conditions géochimiques. Les roches ayant retenu du nickel par sorption et contribué à atténuer la contamination de l'eau peuvent donc, quelques temps plus tard, contribuer à sa contamination. Des études ont toutefois démontré que la stabilité du Ni sorbé peut augmenter avec le temps (Scheckel et al., 2000). La sorption du Ni est aussi un phénomène d'une capacité limitée : un matériau sorbera le Ni un certain temps, jusqu'à ce que ses sites de sorption soient saturés. Un exemple de ce cas est les

stériles de la mine Tio qui génèrent du DNC en nickel. Ce DNC n'est toutefois pas produit par les stériles frais qui possèdent une meilleure capacité à retenir le Ni (Plante et al., 2010b), alors que les stériles âgés produisent plus de Ni en solution que les matériaux frais (Pépin, 2009) en raison de la saturation des sites de sorption.

Tableau 4.17: Points de charge nulle de certains minéraux présents dans les stériles

Famille	Minéral et formule chimique	pH de point de charge nulle (-)	Source
Phyllosilicate - serpentine	Lizardite (serpentine) $Mg_3Si_2O_5(OH)_4$	11,3	(Edwards, Kipkie et Agar, 1980)
Carbonate	Calcite $CaCO_3$	8,5-10,5	(Marsden et House, 2006)
Oxyde	Magnétite Fe_3O_4	6,5	(Marsden et House, 2006)
Phyllosilicate - chlorite	Chlorite $(Mg,Al,Fe)_6(Si,Al)_4O_{10}(OH)_8$	4,7	(Alvarez-Silva, Uribe-Salas, Mirnezami et Finch, 2010)
Phyllosilicate - mica	Muscovite $KAl_2(Si_3Al)O_{10}(OH,F)_2$	3,6	(Marsden et House, 2006)
Inosilicate - pyroxène	Augite $(Ca,Na)(Mg,Fe,Al,Ti)(Si,Al)_2O_6$	2,7-3,5	(Marsden et House, 2006)
Inosilicate - amphibole	Hornblende $Ca_2[Mg_4(Al,Fe)]Si_7AlO_{22}(OH)_2$	2,6	(Rattanakawin, Supapia, Phuvichit et Panjasawatwong, 2010)
Feldspath plagioclase	Albite $NaAlSi_3O_8$	2,6	(Churchill, Teng et Hazen, 2004)
Tectosilicate - oxyde	Quartz SiO_2	1,5-2,5	(Marsden et House, 2006)
Phyllosilicate	Talc $Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$	1,5-3,6	(Marsden et House, 2006)

Tel que mentionné dans le Chapitre 2, le Ni^{2+} peut être sorbé sur les surfaces chargées négativement, c'est-à-dire sur les minéraux dont le pH de point de charge nulle est inférieur au pH de la solution en présence. Les points de charge nulle de plusieurs minéraux présents dans la gangue des stériles de la mine Raglan sont présentés au Tableau 4.17. Parmi ceux-ci, on remarque que seules la serpentine (présente entre 11 et 20% dans les échantillons de péridotite et d'olivine-pyroxénite) et la calcite (présente en traces) possèdent un pH de point de charge nulle trop élevé pour sorber le nickel.

Les oxydes, hydroxydes et oxyhydroxydes de fer qui précipitent en conditions de DNC (voir modélisations PHREEQC) et qui composent la roche (comme la magnétite qui compose entre 0,5 et 13% des stériles) peuvent contrôler la mobilité du nickel par adsorption, co-précipitation ou par

substitution du fer dans leur structure cristalline (Alpers, Blowes, Nordstrom et Jambor, 1994; Jambor et Blowes, 1998; Heikkinen et Räsänen, 2008). Dans ce mémoire, les résultats des extractions séquentielles (voir section 3.6.5) ont montré la rétention de Ni par les phases réductibles, qui peuvent notamment, en conditions de DNC, être composées de précipités de fer se formant à la surface de sulfures de fer altérés (Plante, 2010). Des études ont aussi montré que la présence de sulfates dans l'eau interstitielle et un pH neutre sont deux facteurs liés à l'augmentation de la sorption de Ni sur les minéraux secondaires contenant du fer (Swedlund et Webster, 2001; Heikkinen et Räsänen, 2008).

Donc, la sorption est un phénomène présent dans les essais en colonnes. La présence du phénomène est attendu dans nos essais en colonne étant donné les résultats obtenus dans les essais de sorption en batch et les résultats obtenus dans la littérature. La sorption réduit ou empêche à court terme la lixiviation du nickel et a contribué à empêcher dans cette étude l'estimation à long terme du potentiel des stériles à générer du DNC. Le seul type de stérile lixiviant du nickel était la péridotite de la mine Kikialik, qui présente certaines caractéristiques que les autres stériles échantillonnés n'ont pas. Ces caractéristiques sont expliquées à la section suivante.

Particularités de l'échantillon de péridotite de la mine Kikialik

Lors des essais en colonnes, le nickel produit par les réactions d'oxydation des sulfures de toutes les colonnes a précipité, co-précipité ou a été sorbé dans les stériles, le retenant pratiquement totalement dans la phase solide. Seulement une colonne n'a pas permis la rétention de tout le nickel produit : la colonne C2, contenant la péridotite de la mine Kikialik.

La lixiviation de nickel par cette colonne peut être expliquée par : i) la présence de nickel lixiviable dans la roche, ii) du pH des lixiviats d'environ 7,71 qui est favorable à la solubilité du nickel et des limites de la sorption du nickel. Le nickel en solution de ce type de stérile peut, contrairement aux autres, provenir de deux sources : des sulfures de nickel et des dépôts d'altérations qui recouvrent une partie de la surface des roches (une analyse MEB d'un de ces dépôts a d'ailleurs montré qu'il pouvait contenir jusqu'à 5% Ni en surface, section 3.6.3). On ne connaît toutefois pas la stabilité du nickel dans les dépôts d'altération. La présence de soufre sous forme de sulfates lixiviable par les dépôts d'altération et aussi possible, mais rien ne le

prouve à part le fait qu'une analyse sur le stérile total ayant montré que les sulfates constituaient 4% du soufre total de l'échantillon.

Les dépôts d'altération peuvent créer une surface non favorable à la sorption du nickel. Toutefois, le rapport molaire de Ni/S lixivié est d'environ 1:85 et est donc beaucoup plus grand que celui de la pyrrhotite qui se rapproche de 1:1. Il est alors très possible qu'une partie du nickel ait été tout de même retenue par sorption dans les stériles sur les surfaces fraîches des roches concassées.

4.3 Synthèse des essais en colonnes

Dans ce chapitre, des essais cinétiques et de consommation d'oxygène ont été effectués sur des colonnes contenant des échantillons de différents types de stériles provenant de plusieurs mines. Les principaux constats que l'on peut tirer de ces essais sont les suivants (voir Tableau 4.18) :

1. Les données électrochimiques des lixiviats ont montré des pH neutres (7,23 pour C6, 7,71 pour C2 et de 8,67 à 9,24 pour les autres colonnes), des conductivités faibles et des concentrations faibles en métaux.
2. La majorité des stériles échantillonnés ne sont pas générateurs de drainage minier acide ni à court, ni à long terme, à l'exception de la colonne C3 (l'olivine-pyroxénite de la mine 3) qui se situe dans une zone d'incertitude quant à son potentiel à générer du DMA. L'argilite de la mine 3, le gabbro de la mine 2 et la volcanique contiennent trop peu de soufre pour acidifier l'eau, tandis que les échantillons de péridotite et d'olivine-pyroxénite de la mine 2 contiennent suffisamment de minéraux acidivores pour neutraliser l'acidité générée par l'oxydation des sulfures (notamment la serpentine, la chlorite, l'augite, l'hornblende et le talc).
3. Les résultats des méthodes d'évaluation du PGA à long terme divergent pour certains matériaux. On pense que la méthode de White et Jeffers (1994) est pessimiste puisqu'elle utilise le PN déterminé par la méthode de Sobek modifiée par Lawrence et Wang (1997) et que cette méthode ne considère pas le plein potentiel de neutralisation des silicates.
4. Six des sept types de stériles ne sont pas générateurs de drainage neutre contaminé à court terme, sauf la péridotite de la mine Kikialik qui lixivie en moyenne 0,280 mg Ni/kg stérile/an lors des essais cinétiques d'une durée d'un an. La péridotite de la mine 3 ainsi

que l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 contiennent des concentrations de soufre et de nickel semblables ou supérieures à celles de la péridotite de la mine Kikialik, mais ne génèrent pas de nickel à court terme.

5. On ne peut pas statuer sur le potentiel des stériles de générer du DNC à long terme en raison de la rétention du nickel dans la phase solide par sa sorption sur les surfaces des stériles qui peut contrôler sa génération pour une durée inconnue.
6. Les essais de consommation d'oxygène ont montré que l'olivine-pyroxénite de la mine 3, qui est le matériau le plus sulfureux, est aussi celui qui a le taux de consommation d'oxygène le plus élevé. Sa constante de réactivité K_r est de $0,00450 \text{ j}^{-1}$ et sa consommation d'oxygène est estimée à $16 \text{ mg O}_2/\text{kg stérile/an}$ ($0,96 \text{ mol/m}^2/\text{an}$), ce qui correspond à un taux de lixiviation de sulfates par la pyrrhotite de $17,1 \text{ mg O}_2/\text{kg stérile/an}$.
7. Avec les colonnes C1 et C3 et leurs duplicatas C8 et C9, il a été vérifié que tous les paramètres mesurés dans les essais en colonnes sont reproductibles lorsqu'ils sont évalués avec la loi de Student et un intervalle de confiance de 95%, sauf l'alcalinité. Ainsi, il n'est pas nécessaire de réaliser des essais en duplicata de façon systématique pour obtenir des résultats statistiquement valables.
8. La présence de fines particules ($<1,3 \text{ cm}$) dans la colonne C10 a permis de déterminer que celles-ci entraînent une plus grande réactivité par rapport à la colonne standard C4. D'une part, la surface spécifique est plus que doublée ($1,93 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{g}$ pour C10 et $8,91 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{g}$ pour C4). D'une autre part, les taux sont plus élevés même avec une normalisation par rapport à la surface spécifique, étant donné que les fines particules retiennent aussi mieux l'humidité qui est un réactif de la réaction d'oxydation des sulfures. D'autant plus, la migration de la quasi-totalité des fines vers la moitié inférieure de la colonne a été observée avec le temps lors des essais cinétiques. Les pH et Eh étaient cependant similaires pour les deux colonnes, mais l'alcalinité de C10 (avec fines) demeurait plus élevée.
9. La présence de sulfates et les conditions oxydantes des lixiviats de la péridotite de la mine 3 et de l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 montrent que l'oxydation des sulfures survient bel et bien dans les échantillons.

10. Dans les colonnes C1 à C4, le nickel peut être mis en solution par l'oxydation des sulfures de nickel (pentlandite et violarite). Les sulfures de fer nickélifères, comme la pyrrhotite identifiée au chapitre 3, peuvent aussi apporter une contribution à la présence de nickel en solution. Dans la péridotite de la mine Kikialik, il est possible que du nickel soit lixivié des dépôts d'altération formés, observés au MEB à la section 3.6.3.

11. Les conditions des lixiviats de toutes les colonnes favorisent la précipitation du fer en oxydes et oxyhydroxydes. Les lixiviats des colonnes C1 (péridotite de la mine 3), C3 et C4 (olivine-pyroxénite des mines 3 et 2) possèdent des conditions idéales pour la précipitation du nickel, ainsi que sa sorption dans les minéraux de gangue. Le pH de la colonne C2 ne permet que la sorption du nickel, et celle-ci est limitée par la présence de dépôts d'altérations sur une bonne proportion de ses surfaces.

Tableau 4.18: Synthèse des essais en colonnes : caractéristique des stériles utilisés, des essais cinétiques et de consommation d'oxygène ainsi que des phénomènes de rétention du nickel supposés dans ces essais

Échantillon	Caractéristiques des stériles	Essais cinétiques	Essais de consommation d'oxygène	Phénomènes de rétention du Ni
Péridotite de la mine 3 (C1-C8)	0,362% S 0,194% Ni	pH 8,73		Sorption Précipitation
Péridotite de la mine Kikialik (C2)	0,110 % S 0,205 % Ni Présence d'altérations contenant du Ni	Lixiviation de Ni (0,279 mg/kg/an) pH plus bas (7,71)		Peu de sorption
Olivine-pyroxénite de la mine 3 (C3-C9)	1,28 % S 0,335 % Ni	pH 9,02	Plus grande réactivité (16 mg O ₂ /kg stérile/an)	Sorption Précipitation
Olivine-pyroxénite de la mine 2 (C4-C10)	0,440 % S 0,301 % Ni	pH 8,96		Sorption Précipitation
Gabbro de la mine 2 (C5)	Peu sulfureux	pH 8,97		Phénomènes absents car matériaux probablement non générateurs
Argilite de la mine 3 (C6)	Peu sulfureux Potentiel de sorption plus élevé	pH le plus bas (7,23)		
Volcanique (C7)	Peu sulfureux	pH 9,24		

CHAPITRE 5 ESSAIS EN MINI-CELLULES D'ALTÉRATION ET ÉVALUATION DE L'EFFET DE LA TEMPÉRATURE

Dans le chapitre précédent, le comportement géochimique des stériles de la mine Raglan a été évalué à l'aide d'essais en colonne à température ambiante, ce qui a permis de mieux connaître le potentiel de génération de contaminants des différentes roches stériles à l'étude dans ce projet et d'expliquer les processus de production et d'atténuation de cette contamination. Cependant, à la mine Raglan, les températures dominantes dans les haldes et dans les remblais de stériles sont généralement plus froides. En effet, comme il a été mentionné à la section 2.4, la température minimale du pergélisol est de $-6,9^{\circ}\text{C}$ et la température moyenne de l'air est de $-10,3^{\circ}\text{C}$. Des températures plus froides peuvent même persister une bonne partie de l'année à l'intérieur des aires d'entreposage des stériles en raison des courants de convection qui refroidissent les haldes à stériles durant la saison froide (e.g. Pham, Sego, Arenson, Blowes et Smith, 2008; NEDEM, 2009). L'évaluation du comportement géochimique des roches stériles provenant du site Raglan serait donc incomplète sans qu'on y examine l'effet des températures plus froides sur celui-ci.

5.1 Résultats des essais en mini-cellules d'altération

Cette section regroupe les résultats des essais en mini-cellules d'altération réalisés à différentes températures (voir Tableau 5.1). Globalement, 31 lixiviations ont été effectuées à l'étape 1 (22°C), 15 à l'étape 2 (10°C), 10 à l'étape 3 (-6°C) et 11 à l'étape 4 (où la température de chaque cycle était alternée entre 22 et -18°C).

Tableau 5.1: Caractéristiques des essais en mini-cellules

Étape	Température ($^{\circ}\text{C}$)	Numéros de lixiviation	Nombre de lixiviations	Temps (jours)
1	22	0 à 30	31	0 à 117
2	10	33 à 47	15	125 à 175
3	-6	48 à 57	10	176 à 210
4	Alternance de cycles à température ambiante (22) et de gel (-18)	62 à 72	11	225 à 264

Tel qu'expliqué à la section 3.3, à l'étape 4, la température de -18°C a remplacé la température -6°C fixée au départ en raison de problèmes techniques. Il a été considéré que malgré cette

modification, le but premier qui est d'observer l'effet des cycles de gel et de dégel est tout de même atteint. De plus, il est important de noter que 8 jours séparent les étapes 1 et 2 et qu'il y a aussi eu un arrêt de 15 jours entre les étapes 3 et 4. Le Tableau 5.1 présente un résumé des étapes, de leurs nombre de lixiviations et de leurs durées.

5.1.1 Caractéristiques des lixiviats

On présente dans les paragraphes suivants les caractéristiques des lixiviats récupérés des essais en mini-cellules d'altération, pour les différentes étapes successives.

Analyses électrochimiques

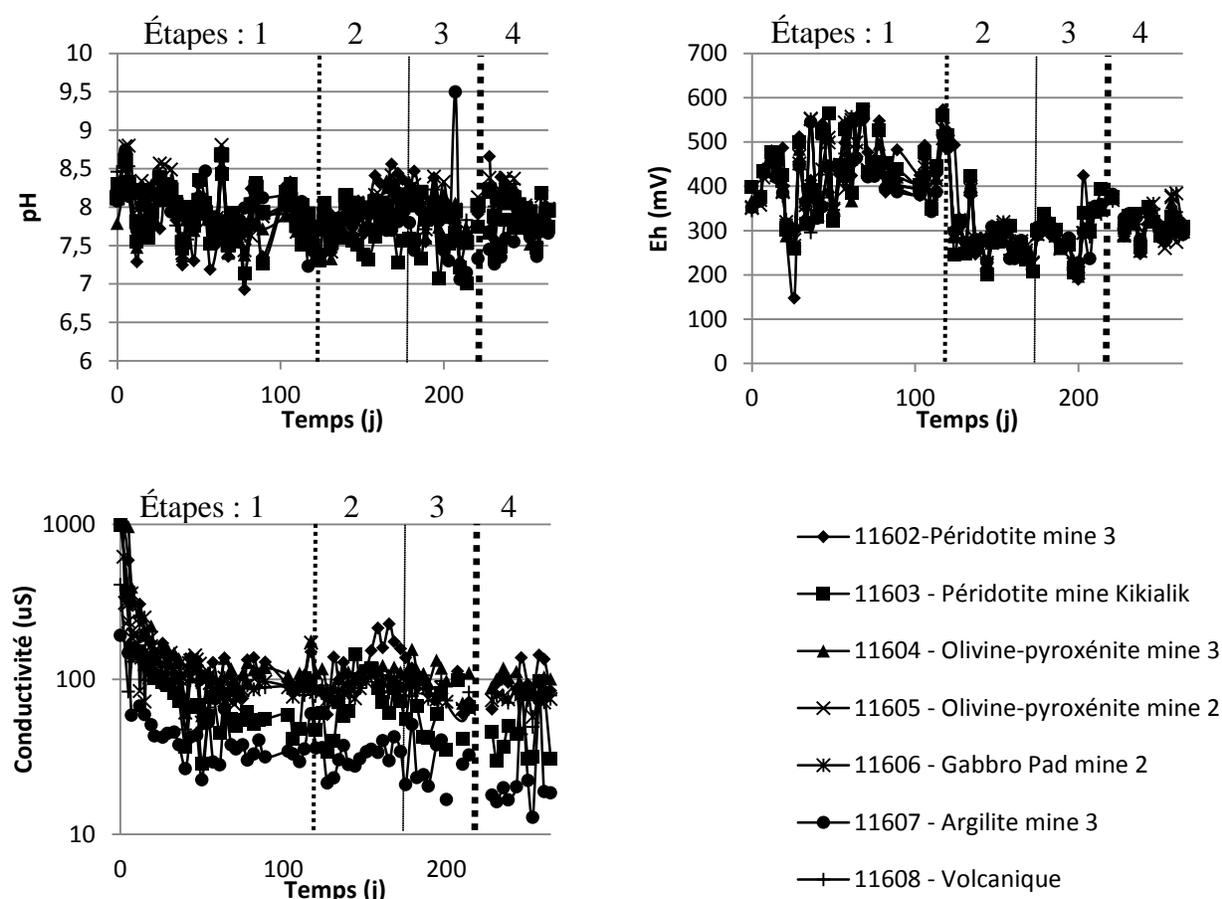


Figure 5-1: Résultats des analyses électrochimiques dans les eaux issues des essais en mini-cellules d'altération (pH, Eh, conductivité)

La Figure 5-1 regroupe les résultats des analyses électrochimiques effectuées sur les lixiviats. Les pointillés sur la figure séparent les différentes étapes de l'essai. Les moyennes des pH de chaque mini-cellule d'altération pour chaque étape oscillent entre 7,89 et 7,91. Les Eh des lixiviats sont par contre plus faibles aux étapes 2 et 3 (279 et 285 mV) qu'à l'étape 1 (426 mV), où les conditions sont plus oxydantes. La valeur moyenne de Eh à l'étape 4, de 312 mV se trouvent entre ceux-ci. Les moyennes des conductivités électriques de l'ensemble des mini-cellules d'altération, exprimées en échelle logarithmique pour plus de visibilité des résultats, sont similaires pour les deux premières étapes (94 et 93 $\mu\text{S}/\text{cm}$), sont de 80 $\mu\text{S}/\text{cm}$ à l'étape 3 et de 73 $\mu\text{S}/\text{cm}$ à l'étape 4. Les lixiviats de l'argilite et de la péridotite de la mine Kikialik présentent les conductivités électriques les plus faibles (entre 29 et 79 $\mu\text{S}/\text{cm}$). Les moyennes des autres types de stériles sont un peu plus élevées et atteignent au maximum 140 $\mu\text{S}/\text{cm}$.

Soufre

Les valeurs ponctuelles et les taux moyens de lixiviation de S sont présentés à la Figure 5-2 et la Figure 5-3. On considère comme hypothèse de départ que le S est sous forme de sulfates et généré uniquement par l'oxydation des sulfures (la présence de sulfates solides pouvant être dissous est considérée négligeable tel que montré par une étude antérieure; voir section 2.5.2).

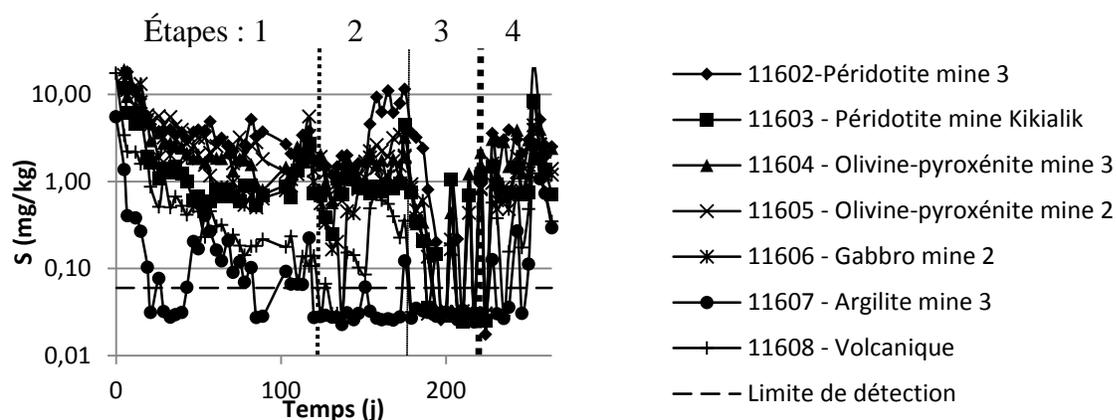


Figure 5-2: Variation des concentrations ponctuelles en soufre dans les solutions de rinçages issues des tests en mini-cellules d'altération

On remarque très peu de réactivité de la part de l'argilite et de la volcanique (taux de lixiviation moyens de 10,4 et 33,3 mg/kg/an à 22°C) et une plus grande production de S par la péridotite de la mine 3 et l'olivine-pyroxénite de la mine 2 (taux de lixiviation moyens de 310,5 et 283,9

mg/kg/an à 22°C). La réactivité des autres stériles se situe entre 94 et 186 mg/kg/an à 22°C. En observant les cycles 1 à 3, on observe généralement une diminution des taux de lixiviations de S avec la baisse de température. Les lixiviats de la péridotite des mines 3 et Kikialik font exception à cette tendance, où les taux sont de 496,1 et 115,0 à l'étape 2 et de 310,5 et 94,2 à l'étape 1. À l'étape 3, les taux de lixiviation du S sont plus faibles que pour les autres étapes, soit de 120,4 mg/kg/an pour la péridotite de la mine Kikialik et de moins de 27 mg/kg/an pour les autres mini-cellules d'altération. Elles se trouvent d'ailleurs sous la limite de détection pour l'argilite de la mine 3 et la volcanique. On observe à l'étape 4 des taux de lixiviation moyens de S généralement de 1,5 à 2 fois plus élevés qu'à l'étape 1. Par exemple, l'olivine-pyroxénite de la mine 3 produit 303,3 mg S/kg/an à l'étape 4 et 186,0 mg/kg/an à l'étape 1. Par contre, le taux de lixiviation de S de l'olivine-pyroxénite de la mine 2 y est toutefois inférieur de moitié (150,6 vs 283,9 mg/kg/an).

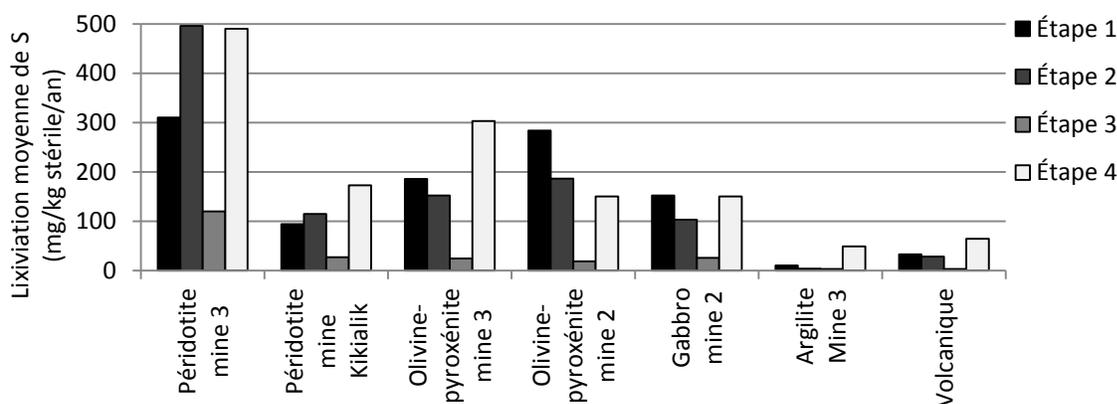


Figure 5-3: Moyennes des taux de lixiviation de S mesurés dans les solutions de rinçage issues des tests en mini-cellules d'altération

Fer et nickel

Les quantités de fer et de nickel lixiviées par kilogramme de stérile à chaque étape sont présentées à la Figure 5-4. On remarque que du nickel est lixivié par la péridotite de la mine 3 de manière constante aux étapes 1 et 2 (moyenne de 8,5 mg/kg/an à l'étape 1 jusqu'à 18 mg/kg/an à l'étape 2). Sa concentration diminue à l'étape 3 autour de 1,1 mg/kg/an et reprend légèrement à l'étape 4 à 2,3 mg/kg/an. Des concentrations plus faibles sont aussi mesurées de manière constante pour la péridotite de la mine Kikialik (0,6 mg/kg/an à l'étape 1). L'olivine-pyroxénite

de la mine 3 génère du Ni à deux lixiviations, soit à la première et à celle du jour 103 qui était précédée d'un arrêt de l'essai de 14 jours. Aucune lixiviation notable de nickel n'est remarquée par les autres types de stériles. Du fer est retrouvé sporadiquement dans les lixiviats, mais aucune tendance n'est remarquée dans les 3 premières étapes et la plupart des teneurs analysées sont sous la limite de détection de la méthode. Toutefois, on constate que pour tous les types de stériles, les teneurs en Fe les plus élevées sont générées à l'étape 4 de l'essai. Comme on observe du S dans les effluents, on peut assumer que le fer précipite puisqu'ils sont liés à l'état solide (cet aspect sera discuté plus loin à la section 5.2.1).

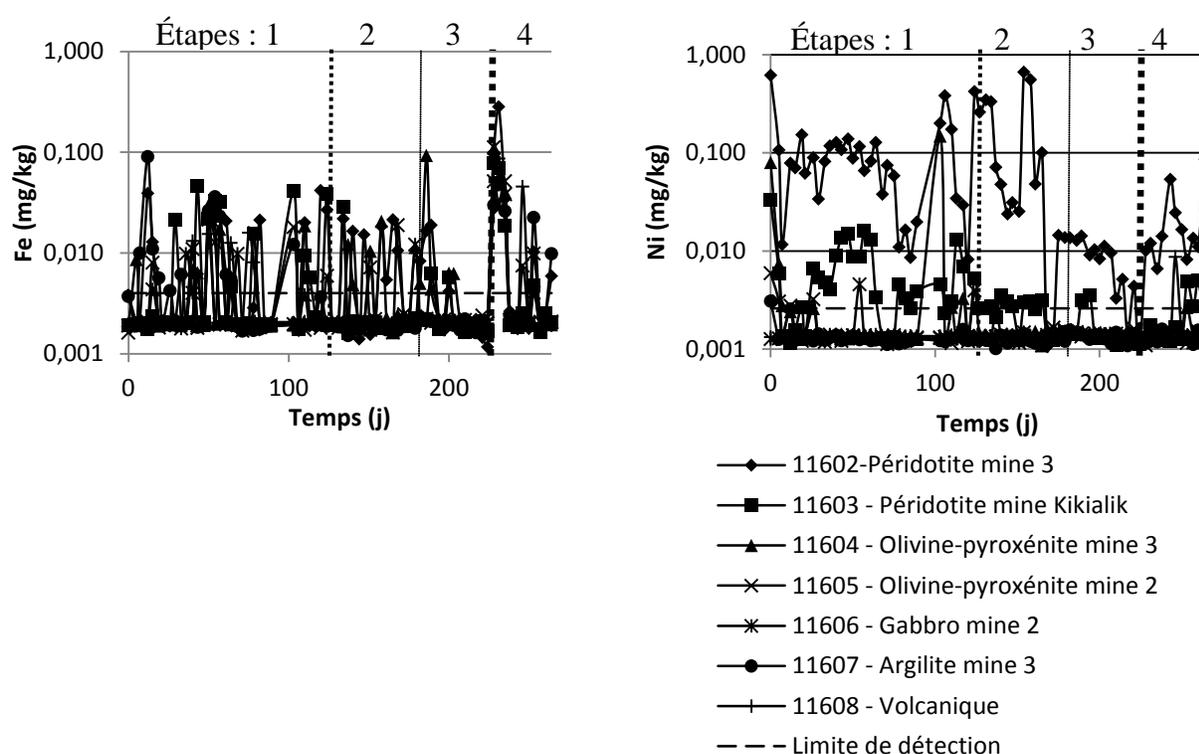


Figure 5-4: Variation des concentrations mesurées en Fe et Ni dans les solutions de rinçages issues des tests en mini-cellules d'altération

Calcium, magnésium, manganèse, silicium et aluminium

Les valeurs ponctuelles des éléments provenant des minéraux de gangue dont la plupart ont un potentiel neutralisant (Ca, Mg, Mn, Al et Si) sont présentées à la Figure 5-5. Afin d'obtenir une

vue d'ensemble simplifiée, les taux moyens de lixiviation par étape des éléments lixiviés en plus grande quantité (Ca, Mg, Ca+Mg+Mn, Si) sont présentés à la Figure 5-6. Le Ca est lixivié en quantité significative par les matériaux des mini-cellules d'altération. Son taux de production à 22°C est de 160 et 244 mg/kg/an par l'argilite et la péridotite de la mine 3 et entre 711 et 942 mg/kg/an pour les autres types de stériles. Pour ces derniers, on remarque une plus grande lixiviation de Ca aux étapes 2 et 3 par rapport à l'étape 1. Ce comportement provient de la dissolution de minéraux neutralisants, plus particulièrement de la calcite, et sera interprété dans les prochaines sections. Le comportement du Mg, provenant des silicates, est proportionnel à celui du S, où la lixiviation diminue avec la température pour la plupart des types de stériles. Son taux de lixiviation se situe entre 295 et 478 mg/kg/an à 22°C. La libération de Mn est quant à elle négligeable (<2 mg/kg/an).

Une très faible lixiviation d'Al est observée dans le cas du gabbro et la volcanique (5,1 et 4,9 mg/kg/an à l'étape 1). Celle-ci augmente à l'étape 1 et est ensuite stabilisée. Les taux de lixiviation de Si sont quant à eux les plus élevés parmi tous les éléments lixiviés à 22°C (1190-2495 mg/kg/an). Ils augmentent constamment à l'étape 1 et diminuent avec la température aux étapes 2 (412-1195 mg/kg/an) et 3 (142-336 mg/kg/an). Les valeurs moyennes à l'étape 4 de tous les éléments montrés à la Figure 5-6 (Ca, Mg, Si) ne sont ni les plus élevées, ni les plus basses répertoriées parmi toutes les étapes de l'essai.

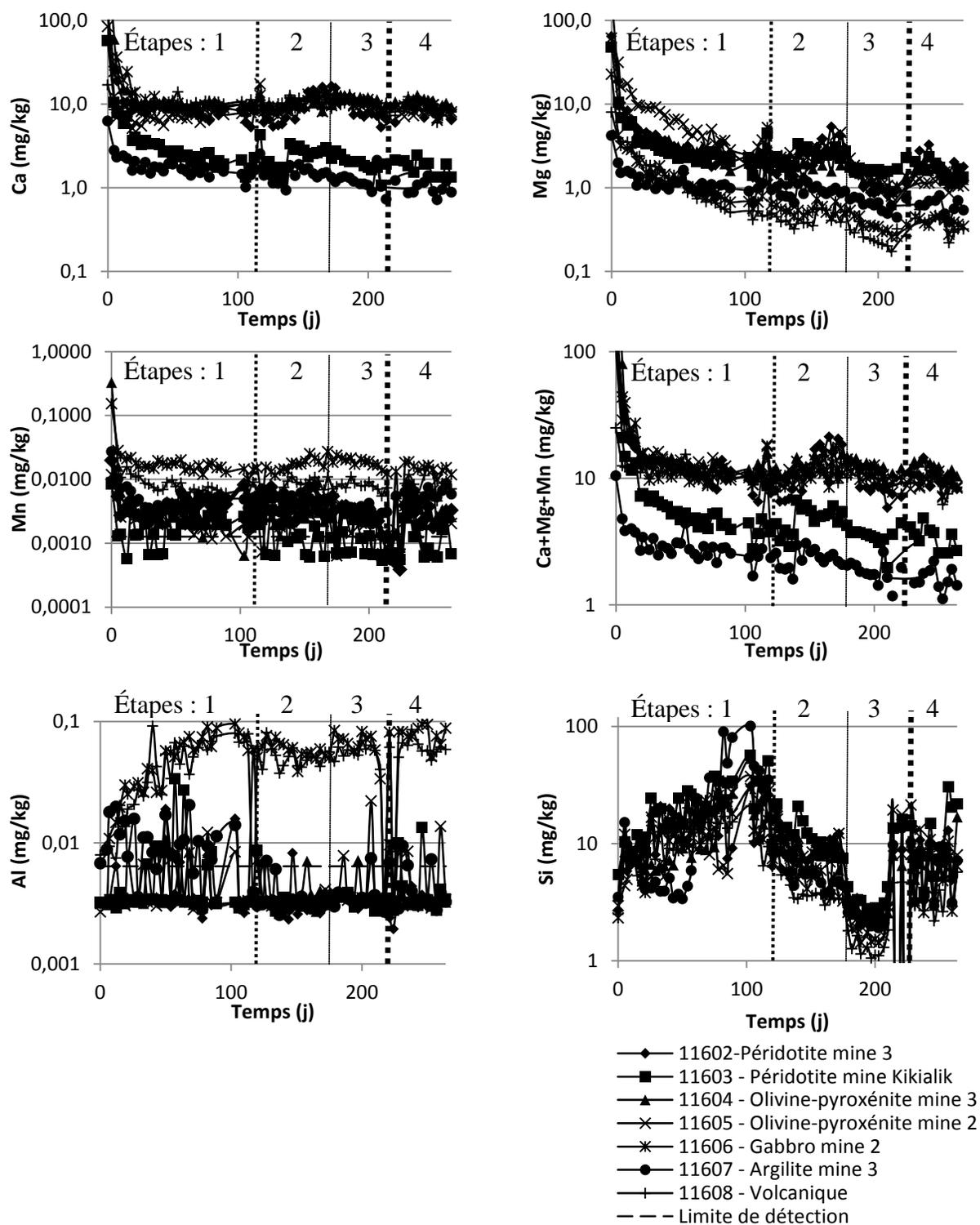


Figure 5-5: Variation des concentrations ponctuelles en Ca, Mg, Mn, Ca+Mg+Mn, Al et Si dans les solutions de rinçages issues des tests en mini-cellules d'altération

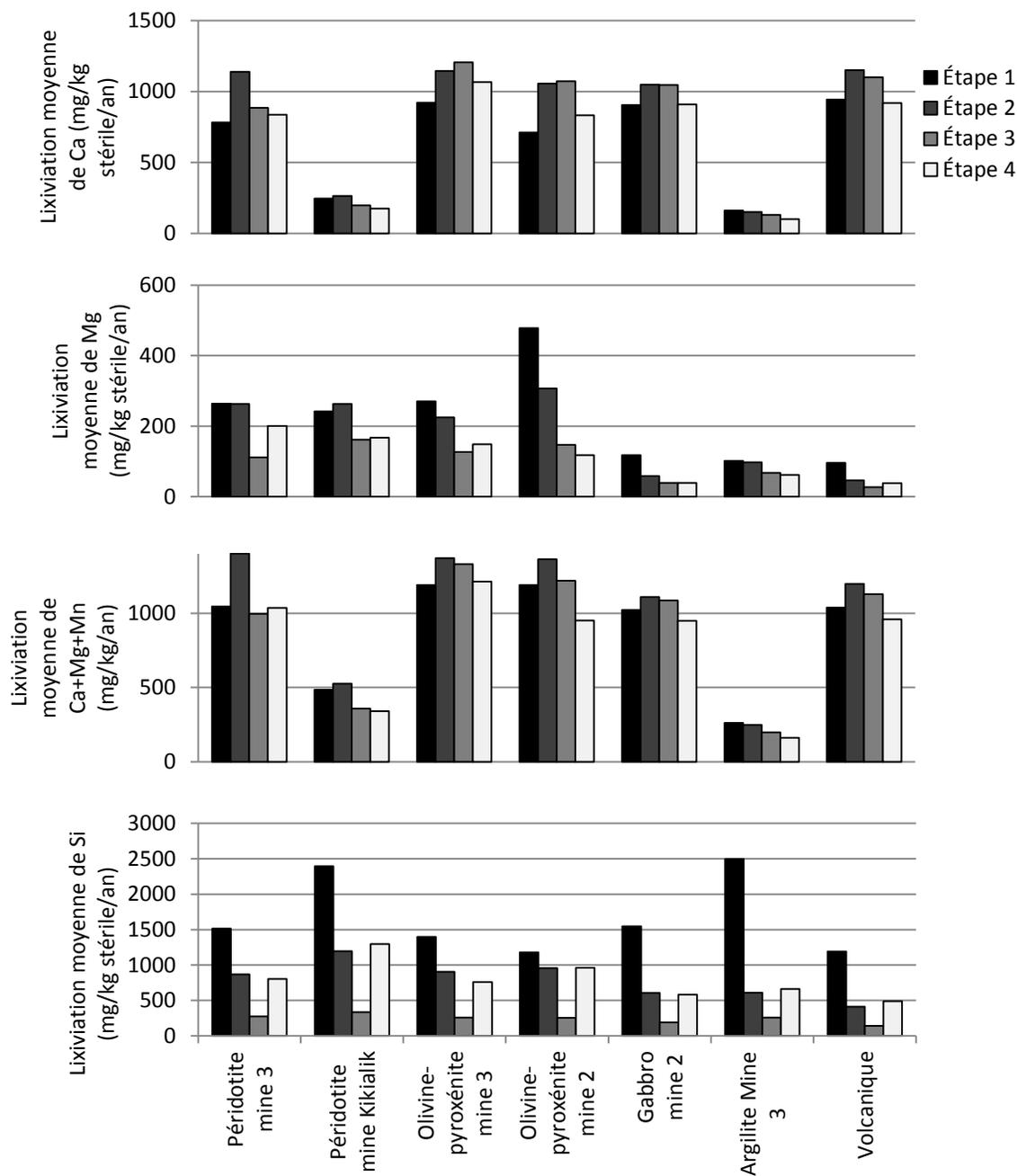


Figure 5-6: Moyennes des taux de lixiviation mesurés pour les éléments Ca, Mg, Ca+Mg+Mn et Si dans les solutions de rinçage issues des tests en mini-cellules d'altération

Relations entre l'oxydation et la neutralisation

La relation entre les produits d'oxydation (S) et de neutralisation (Ca+Mg+Mn) est présentée à la Figure 5-7 pour chaque type de stérile à travers les différentes étapes des essais. On remarque que les relations de l'étape 1 sont toutes concaves ; leur pente augmente au départ suivi d'une stabilisation avec le temps. Un comportement similaire a déjà été remarqué pour des études impliquant la neutralisation avec des carbonates (Villeneuve et al., 2003; Villeneuve, 2004) et des silicates (principalement composés de feldspaths plagioclases calciques) (Plante et al., 2010a). Cette variation dans le taux de réactivité de Ca+Mg+Mn vs S est principalement causé par : (1) la passivation de la surface des sulfures et/ou (2) un excès de la lixiviation des produits de neutralisation au départ suivi d'une stabilisation du comportement (Villeneuve et al., 2003; Villeneuve, 2004). La passivation de la surface d'un minéral se manifeste en une diminution de sa réactivité en raison de réactions à la surface réactive des grains et de la précipitation d'un recouvrement (*coating*); une telle passivation a été mesurée sur différents sulfures par voltampérométrie cyclique à balayage (Benzaazoua, 1996; Cruz et al., 2001; Villeneuve et al., 2003; Villeneuve, 2004). La passivation des sulfures peut aussi expliquer les formes des relations de lixiviation du soufre obtenues à l'étape 1 (voir la Figure 5-3).

La Figure 5-7 montre aussi l'évolution des quantités cumulées de Ca+Mg+Mn vs S pour chaque mini-cellule d'altération et au travers des quatre étapes de l'essai. Des régressions linéaires ont été effectuées pour chaque étape; les valeurs des paramètres de la droite de régression ainsi que leurs coefficients de détermination (R^2) sont présentés au Tableau 5.2. Pour l'étape 1, seules les données de la pente stabilisée ont été utilisées pour déterminer la régression (en général, les 6 premiers points des relations n'ont pas été considérés). De manière générale, on remarque que les pentes augmentent avec une diminution de la température. Par exemple, la pente de l'olivine-pyroxénite de la mine 3 est de 6,45 à 22°C, de 9,07 à 10°C et de 83,59 à -6°C. Les pentes de l'argilite et de la volcanique à -6°C tendent d'ailleurs vers l'infini en raison de leur production de soufre se trouvant sous la limite de détection. Leurs régressions n'ont donc pas été effectuées. Seules les pentes de la péridotite des mines 3 et Kikialik ont légèrement diminué en passant de 22 à 10°C (respectivement de 3,36 à 2,78 mg/mg et 5,69 à 5,14 mg/mg). On remarque donc qu'en général, à une température plus froide, la quantité de Ca+Mg+Mn libérée pour chaque unité de S lixiviée est supérieure. La relation d'oxydation et de neutralisation des types de roches sont donc différentes pour chaque température ; l'oxydation des sulfures diminue avec une baisse

de la température, tandis que l'altération des minéraux neutralisants peut pour sa part augmenter en raison de la lixiviation de Ca qui est plus forte à 10°C et -6°C et qui est presque toujours retrouvé en plus grande concentration que le Mg et le Mn. De plus, face aux résultats de l'étape 4, on remarque que les cycles de gel et de dégel perturbent les relations d'oxydation et de neutralisation. Celles-ci sont moins bien corrélées (R^2 de 0,88 en moyenne) que les relations effectuées à température constante et leurs pentes moyennes sont inférieures aux autres, sauf pour l'olivine-pyroxénite de la mine 2 (dont $m=4,33$ étape 1 et 5,33 à l'étape 4). Les cycles de gel et de dégel favorisent donc une baisse du rapport Ca+Mg+Mn/S pour tous les matériaux.

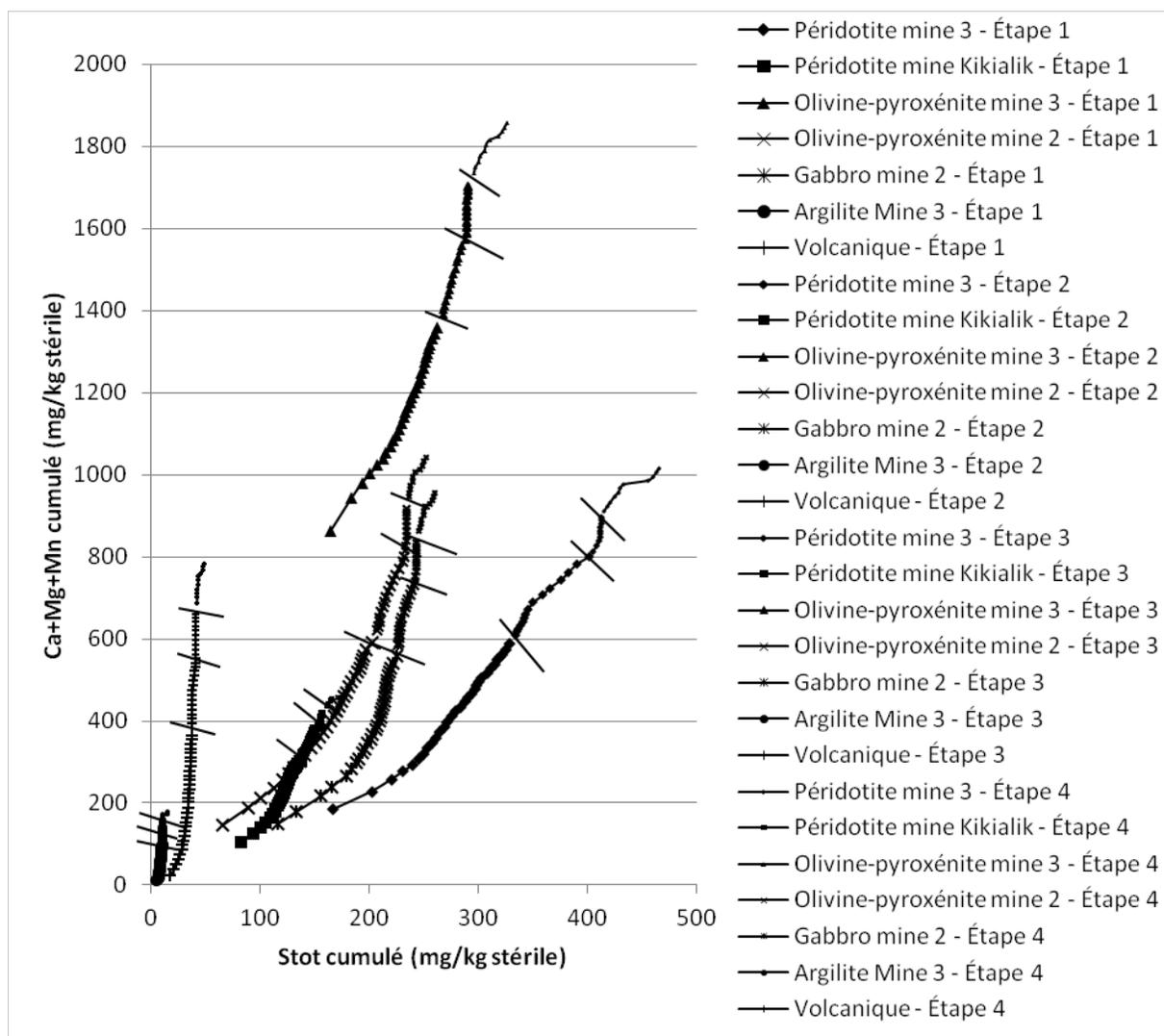


Figure 5-7: Relations d'oxydation et de neutralisations des mini-cellules pour chaque étape des essais en mini-cellule d'altération

Tableau 5.2: Paramètres des droites de régressions linéaires des relations d'oxydation et de neutralisation des mini-cellules

Mini-cellule d'altération	Étape 1 : 22°C (2 ^e pente)			Étape 2 : 10°C		
	m	b	R ²	m	b	R ²
Péridotite mine 3	3,36	-518,2	1,00	2,78	-300,8	0,97
Péridotite mine Kikialik	5,69	-467,0	0,99	5,14	-398,6	0,96
Olivine-pyroxénite mine 3	6,45	-347,2	0,99	9,07	-1027,0	1,00
Olivine-pyroxénite mine 2	4,33	-300,1	0,99	6,97	-811,1	0,97
Gabbro mine 2	8,37	-1329,2	0,95	9,49	-1545,7	0,94
Argilite mine 3	22,08	-139,2	0,95	179,51	-1793,3	0,68
Volcanique	33,23	-917,9	0,93	33,44	-828,9	0,89
Mini-cellule d'altération	Étape 3 : -6°C			Étape 4 : Cycles de gel et de dégel		
	m	b	R ²	m	b	R ²
Péridotite mine 3	9,98	-3246,5	0,80	1,70	218,5	0,90
Péridotite mine Kikialik	15,02	-1944,4	0,84	1,48	200,1	0,85
Olivine-pyroxénite mine 3	83,59	-22568,3	0,89	3,57	691,8	0,95
Olivine-pyroxénite mine 2	127,80	-29027,5	0,71	5,33	-298,6	0,92
Gabbro mine 2	57,01	-13066,3	0,73	5,55	-489,6	0,94
Argilite mine 3	N.D.	N.D.	N.D.	2,21	142,2	0,76
Volcanique	N.D.	N.D.	N.D.	11,60	221,2	0,85

5.1.2 Épuisement des éléments

Les pourcentages d'épuisement des principaux éléments chimiques des matériaux des mini-cellules d'altération sont illustrés à la Figure 5-8. Les résultats des éléments se situant fréquemment sous la limite de détection n'ont pas été affichés (dont les résultats de 5 mini-cellules d'altération pour l'Al et 6 pour le Ni). Les épuisements représentent le pourcentage de l'élément chimique contenu dans la phase solide qui s'est dissous au cours de l'essai. On observe que les mini-cellules d'altération ont perdu de 3 à 13% de leur contenu en S. De 2 à 7% du Ca a été lixivié dans les quatre premières mini-cellules d'altération, et les trois dernières en ont lixivié moins de 2% en raison des plus grandes teneurs en Ca dans la phase solide du gabbro et de la volcanique (contenu dans l'hornblende et l'épidote) et des faibles taux d'oxydation de l'argilite. Seulement 0,21% du Ni de la péridotite de la mine 3, et moins de 0,01% de l'Al de l'argilite et la

volcanique ont été lixiviiés au cours des 72 lixiviations. Moins de 0,1% des autres éléments ont quitté la phase solide des mini-cellules d'altération.

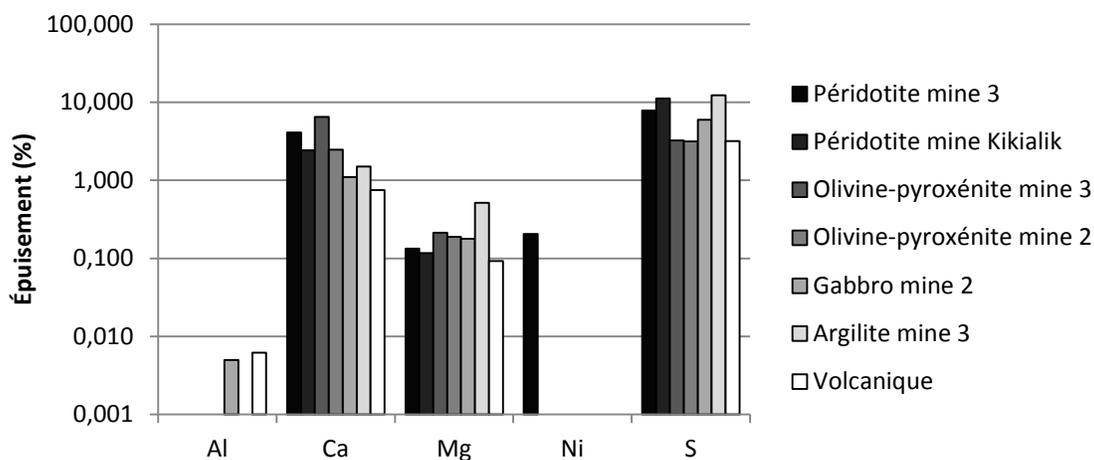


Figure 5-8: Pourcentages d'épuisement des principaux éléments chimiques

Les analyses chimiques et minéralogiques effectuées sur les matériaux des mini-cellules d'altération à la suite des essais n'ont pas permis d'apporter davantage d'information sur l'épuisement des éléments chimiques ou des minéraux (voir Annexe C.1). L'analyse minéralogique par diffraction des rayons X sera utilisée à la section suivante qui traite de la précipitation de minéraux secondaires.

5.2 Interprétation et discussion sur les essais en mini-cellules d'altération

L'interprétation des essais en mini-cellules d'altération est approfondie en utilisant la modélisation des conditions d'équilibre thermodynamique des lixiviats et l'établissement de relations entre la température et les taux de réaction observés.

5.2.1 Conditions d'équilibre thermodynamique

Comme pour les essais en colonnes, le logiciel PHREEQC a été utilisé pour modéliser les conditions d'équilibre thermodynamique des 15^e et 44^e lixiviations (respectivement des étapes 1 et 2) afin d'évaluer quels minéraux secondaires auront pu précipiter à partir des concentrations ioniques mesurées dans les lixiviats. Les modélisations ont été effectuées à 22°C étant donné que les lixiviations et les mesures sont effectuées à température ambiante. Les résultats obtenus lors

de ces lixiviations sont considérés représentatifs du comportement général durant les deux premières étapes. La base de données MINTEQA2 a été utilisée, car elle contient un grand nombre de composés contenant du nickel et une assez grande quantité de composés silicatés. Un résumé des différents composés susceptibles de précipiter durant les essais est présenté au Tableau 5.3. On remarque que de l'hydroxyde de Ni est observé seulement dans la péridotite de la mine 3 (MC-U11602) à 10°C, où la concentration de Ni était la plus élevée. La précipitation du Ni sous forme de Ni_2SiO_4 est aussi possible dans les essais sur la péridotite des mines 3 et Kikialik. On obtient tel que suspecté des indices de saturation positifs pour des oxydes, hydroxydes et oxyhydroxydes de Fe (hématite, magnétite, ferrhydrite, lépidocrocite) et des oxydes de Si (chalcédonie, cristobalite) et ce, dans la plupart des types de stériles à la température de la pièce. Les analyses DRX post-démantèlement qui ont été effectuées sur les matériaux des mini-cellules d'altération confirment aussi qu'il y a eu formation d'hématite dans les péridotites des mines 3 et Kikialik (à 2,17 et 1,09%, voir Annexe C.1). Les modélisations suggèrent également qu'il pourrait y avoir formation de quelques minéraux où le Ca (laumontite, leonhardite, Ca-nontronite, trémolite) et/ou le Mg (Mg-ferrite, Mg-montmorillonite, Mg-nontronite, talc, trémolite) précipiteraient conjointement avec l'Al, le Fe et/ou le Si. La présence de ces derniers pourrait donc amplifier la précipitation de Ca et de Mg. Aucune précipitation de soufre n'est prédite par la modélisation. Ainsi, la quantité de sulfates lixiviée lors des essais cinétiques devrait correspondre à la quantité totale de sulfates produite par l'oxydation des sulfures.

Par rapport au comportement géochimique des éléments d'intérêt dans cette étude, les modélisations menées avec PHREEQC nous suggèrent donc que le nickel peut précipiter dans les deux premières colonnes sous forme d'hydroxyde ou de Ni_2SiO_4 , que le fer a tendance à précipiter même lorsque sa concentration ionique se trouve tout juste au-dessus de la limite de détection et que les sulfates persistent sous forme ionique dans les lixiviats.

Tableau 5.3: Composés précipités dans la modélisation d'équilibre thermodynamique pour les lixiviations #15 et #44

Échantillon	Mini-cellule d'altération	Ni(OH) ₂	Ni ₂ SiO ₄	Oxydes, hydroxydes et oxyhydroxydes de Fe	Minéraux contenant du Ca (avec Al, Fe, Mg et/ou Si)	Minéraux contenant du Mg (avec Al, Fe, Ca et/ou Si)
Lixiviation #15 (22°C)	MC-U11602		x	x		x
	MC-U11603		x	x	x	x
	MC-U11604					
	MC-U11605			x	x	x
	MC-U11606			x	x	x
	MC-U11607			x	x	x
	MC-U11608				x	
Lixiviation #44 (10°C)	MC-U11602	x	x	x	x	x
	MC-U11603					
	MC-U11604					
	MC-U11605				x	x
	MC-U11606				x	
	MC-U11607					
	MC-U11608				x	

5.2.2 Relation entre les taux de réaction et la température

Ce volet d'interprétation sur les essais en mini-cellules d'altération consiste à établir des relations entre les taux de réaction moyens des trois premières étapes de l'essai en mini-cellules d'altération et la température avec la loi d'Arrhénius. Les paramètres de la loi d'Arrhénius (voir équations 2.25 et 2.26) sont approximés pour chaque type de stériles. Les taux de lixiviation R_s de S, Ni, Ca+Mg+Mn, Mg et Si présentés au Tableau 5.4 sont utilisés dans l'équation 2.26 pour représenter les taux d'oxydation des sulfures. Celui-ci peut remplacer la constante k de la loi d'Arrhénius parce qu'elle est directement proportionnelle au taux molaire (mol/kg stérile/an) et en raison de la simplification des masses molaires des sulfures tel que montré dans l'équation 5.1.

$$\ln \frac{k_1}{k_2} = \ln \frac{R_{S1}/MM}{R_{S2}/MM} = \ln \frac{R_{S1}}{R_{S2}} \quad [5.1]$$

Le seul paramètre inconnu de l'équation 2.26 est l'énergie d'activation E_a , qui est trouvée en minimisant l'équation 5.2 qui représente l'erreur entre la relation théorique trouvée et les résultats expérimentaux pour les températures T_1 , T_2 et T_3 .

$$\text{À minimiser : } \left(\ln \frac{R_{s1}}{R_{s2}} - \frac{E_a(T_1-T_2)}{RT_1T_2} \right)^2 + \left(\ln \frac{R_{s3}}{R_{s2}} - \frac{E_a(T_3-T_2)}{RT_3T_2} \right)^2 + \left(\ln \frac{R_{s1}}{R_{s3}} - \frac{E_a(T_1-T_3)}{RT_1T_3} \right)^2 \quad [5.2]$$

La constante de l'équation d'Arrhénius C , équivalente à la masse molaire des sulfures multipliée par la constante préexponentielle de l'équation 2.25, a ensuite aussi été calculée avec la loi des moindres carrés montrée à l'équation 5.3.

$$\text{À minimiser : } \left[R_{s1} - C \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{RT_1}\right) \right]^2 + \left[R_{s2} - C \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{RT_2}\right) \right]^2 + \left[R_{s3} - C \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{RT_3}\right) \right]^2 \quad [5.3]$$

Les résultats des E_a et C optimums sont présentés au Tableau 5.4 et les courbes résultantes sont comparées aux données expérimentales à la Figure 5-9. Les concentrations de nickel sont sous ou très près de la limite de détection dans les solutions de rinçage issues des mini-cellules MC-U11605 à MC-U11608. Leurs paramètres n'ont donc pas été calculés.

Les valeurs de taux de lixiviation de S baissent significativement avec la température. Par exemple, on passe de 310 à 119 mg/kg/an pour la péridotite de la mine 3 et de 284 à 19 mg/kg/an pour l'olivine-pyroxénite de la mine 2 lorsque la température passe de 22 à -6°C. Il était prévisible que les régressions avec les taux de lixiviation de S de la péridotite des mines 3 et Kikialik (R^2 de 0,54 et 0,73) soient moins bien corrélées que pour les autres types de stériles, étant donné que les taux sont plus élevés à 10°C qu'à 22°C. Les régressions de S des autres types de stériles (excluant l'argilite et la volcanique qui ont des taux très faibles) sont quant à elles mieux corrélées ($0,79 < R^2 < 0,93$). Les données expérimentales ont toutefois souvent une forme convexe, tandis que la courbe d'Arrhénius est concave. Les énergies d'activation de la lixiviation du soufre se trouvent entre 10 et 115 kJ/mol et sont du même ordre de grandeur que ce que l'on retrouve dans la littérature (voir section 2.1.1). Concernant les autres éléments présentés à la Figure 5-9 (Ni, Ca, Mg, Si, Ca+Mg+Mn), leurs corrélations peuvent être mauvaises en raison de leur solubilité tel que mentionné dans la section précédente, et ce, particulièrement à 22°C.

Tableau 5.4: Paramètres de la loi d'Arrhénius selon les lixiviations de S, de Ni et de Ca+Mg+Mn et coefficient de détermination des données expérimentales par rapport à la régression

Élément	Paramètre	MC-U11602 Péridotite mine 3	MC-U11603 Péridotite mine Kikialik	MC-U11604 Olivine- pyroxénite mine 3	MC-U11605 Olivine- pyroxénite mine 2	MC-U11606 Gabbro mine 2	MC-U11607 Argilite Mine 3	MC-U11608 Volcanique
S	E_a (J/mol)	24 863	32 295	50 724	68 233	43 859	114 990	9 998
	C	1,11E+07	6,26E+07	2,04E+11	3,77E+14	9,62E+09	2,20E+21	1,57E+03
	R^2	0,54	0,73	0,90	0,93	0,96	0,79	0,88
Ni	E_a (J/mol)	52346	15755	21183	-	-	-	-
	C	2,52E+10	3,29E+02	3,81E+03	-	-	-	-
	R^2	0,61	0,67	0,63	-	-	-	-
Ca+ Mg+ Mn	E_a (J/mol)	2062	7766	5000	5000	5000	2924	0
	C	2,77E+03	1,25E+04	1,09E+04	1,05E+04	8,98E+03	8,26E+02	1,12E+03
	R^2	0,06	0,67	0,45	0,00	0,41	0,94	0,23
Mg	E_a (J/mol)	21304	10146	18132	27699	25260	2924	41680
	C	1,31E+03	1,08E+00	4,37E+02	3,13E+04	2,65E+03	7,10E-02	2,23E+06
	R^2	0,84	0,70	0,97	1,00	0,93	0,90	0,97
Si	E_a (J/mol)	40483	46219	40205	36985	48808	81697	61316
	C	1,71E+07	2,41E+07	1,86E+07	3,76E+06	5,44E+08	1,67E+14	8,28E+10
	R^2	0,99	1,00	0,97	0,92	1,00	0,94	0,99

La lixiviation du nickel ne peut pas être parfaitement bien corrélée avec la température, car sa quantité lixiviée ne correspond pas à sa quantité oxydée en raison de sa rétention partielle dans la phase solide par sorption et précipitation. La production de Ni par l'oxydation des sulfures (Ahonen et Tuovinen, 1992) ainsi que sa sorption (voir section 2.2.1) peuvent agir de manière similaire selon la température et suivre la loi d'Arrhénius. Ils sont donc tous deux plus faibles à -6°C. Par contre on ne connaît pas l'influence de la température sur la lixiviation de nickel à partir des dépôts d'altération mis en évidence dans les stériles correspondants à la péridotite de la mine Kikialik.

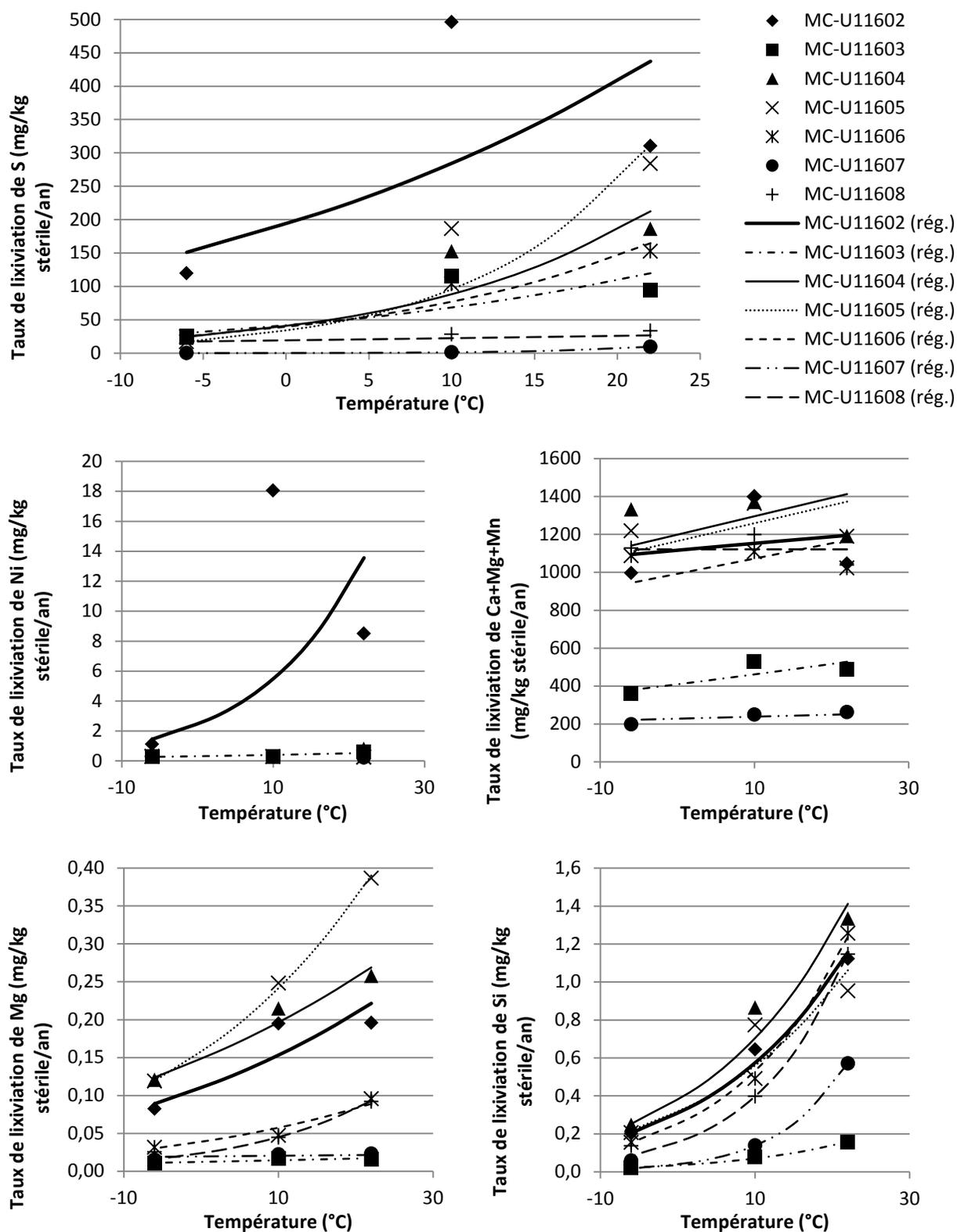


Figure 5-9: Valeurs moyennes des taux de lixiviation de S, Ni, Ca+Mg+Mn, Mg et Si à -6, 10 et 22°C et courbes des régressions correspondantes selon la loi d'Arrhénius (rég.)

Les taux de lixiviation de Ca sont plus élevées à 10°C et -6°C qu'à 22°C. Ce comportement pourrait être expliqué par la plus grande solubilité de la calcite à de faibles températures (voir section 5.2.4). Son apport cause donc une moins bonne corrélation entre les taux de lixiviation de Ca+Mg+Mn et la loi d'Arrhénius. L'ajustement des courbes est quant à lui excellent dans le cas du Mg et du Si, où les R^2 équivalent même dans certains cas à 1,00. La lixiviation de S, Mg et Si semblent donc peu affectées par d'autres phénomènes que la variation de température dans les stériles de la mine Raglan. On remarque que les énergies d'activation de la lixiviation de Mg se trouvent entre 3 et 42 kJ/mol et celles pour le Si entre 36 et 82 kJ/mol. Ces dernières sont plus semblables aux énergies d'activation des silicates (voir section 2.2.1) qui se trouvent généralement entre 50 et 120 kJ/mol (Casey et Sposito, 1992; White et al., 1999). Le S, Ni, Ca, Mg, Si peuvent cependant provenir de différents minéraux présents dans un même échantillon, et ces minéraux ont des énergies d'activation différentes. Les énergies d'activation présentées ici sont donc utilisées pour représenter la lixiviation d'un élément à partir d'un échantillon et non de la dissolution d'un minéral en particulier.

5.2.3 Évaluation de l'effet d'échelle entre les résultats des essais en colonnes et en mini-cellules d'altération

Plusieurs facteurs contrôlent le taux de production d'éléments chimiques, tels le pH, le rapport liquide/solide, la distribution granulométrique des particules et les processus de surface y étant reliés (phénomènes de sorption, d'échange ionique, etc.), les mécanismes de transport du liquide ou les équilibres thermodynamiques entre les substances. Ceux-ci peuvent varier considérablement entre les deux échelles des essais cinétiques (colonne et mini-cellule d'altération) testées dans le cadre de ce travail tel que souligné par de nombreux auteurs (e.g. Evans, Watkins et Banwart, 2006; Sapsford, Howell, Dey et Williams, 2009; Plante, 2010). L'influence de l'échelle sur les différents facteurs influençant les comportements géochimiques doit être considérée pour bien comprendre les différences entre les résultats obtenus par les deux méthodes. Il a de plus été démontré que les facteurs d'échelle des réactivités diffèrent selon les minéraux présents dans un même matériel (Malmström, Destouni, Banwart et Strömberg, 2000; Plante, 2010).

Le Tableau 5.5 compare les principales caractéristiques des essais effectués. Dans l'essai en mini-cellule d'altération, la masse de solide utilisée et le volume d'eau en contact sont trois

ordres de grandeur inférieurs à ceux de l'essai en colonne. Étant donné que la fréquence des lixiviations de l'essai en mini-cellule d'altération est 8 fois plus élevée, son rapport liquide/solide se situe de l'ordre de 4000 L/m³/semaine, tandis qu'il est de 250 L/m³/semaine pour la colonne. De plus, les pH de l'essai en colonne sont plus étalés que ceux de l'essai en mini-cellule d'altération, les Eh sont un peu moins élevés à température ambiante et la conductivité est deux fois plus faible dans les lixiviats des colonnes.

Tableau 5.5: Comparaison de quelques caractéristiques des essais en colonne et en mini-cellule d'altération

	Colonnes (C1-C7)	Mini-cellules d'altération			
Taille des particules	1,3-7 cm	0-4,75 mm			
Quantité de solide	59- 80 kg	67 g			
Surface spécifique	0,9-30· 10 ⁻³ m ² /g	1,03-15,45 m ² /g			
Quantité de liquide en contact à chaque lixiviation	21,9- 25,4 L	50 mL			
Rapport liquide/solide	210-290 L/m ³ /sem.	4000-4600 L/m ³ /sem.			
Fréquence des lixiviations	aux 4 sem.	2 fois/sem.			
Temps de contact avec l'eau	4h	3h			
Température (°C)	22	22	10	-6	22/-18
pH	7,2- 9,2	7,8-8,0	7,8-8,0	7,5-8,1	7,6-8,0
Eh (mV)	326-414	407-438	274-286	281-290	306-321
Conductivité (µS/cm)	25-80	39-134	31-138	30-112	29-102

Dans ce mémoire, il a été choisi de présenter les concentrations des éléments chimiques lixiviés sur une base massique pour pallier au fait que la masse de stériles n'était pas exactement la même dans toutes les colonnes. Cette base a été conservée pour les mini-cellules d'altération pour faciliter la comparaison. La comparaison des taux volumiques est toutefois aussi pertinente, car elle élimine l'effet des différences des densités entre les différents types de stériles. Les taux surfaciques considèrent quant à eux la surface des grains exposée qui est souvent proportionnelle au taux d'oxydation des sulfures pour un essai d'une même agressivité. Les taux massiques, volumiques et surfaciques de lixiviation des principaux éléments pour les différentes étapes de l'essai en mini-cellule d'altération et en colonne ont donc été déterminés pour tous les types de roches étudiés et sont présentés à la Figure 5-10. Les différences entre les étapes des mini-cellules d'altération sont discutées davantage dans les trois autres points de la section 5.2 ; les prochains paragraphes sont donc axés sur la comparaison de l'essai en colonne et l'étape 1 de

l'essai en mini-cellule d'altération. Il est à noter que pour ces tableaux, les teneurs sous la limite de détection ont été considérées équivalentes à la moitié de la limite de détection de l'analyse.

En comparant leurs résultats aux deux échelles de cette étude, on observe que les taux massiques de lixiviation des colonnes sont de un à deux ordres de grandeurs plus faibles que ceux des essais en mini-cellules pour la majorité des éléments et même de trois ordre de grandeur pour le silicium. Les taux volumiques sont calculés en divisant les taux massiques par les densités relatives des grains qui sont semblables pour les différents stériles (2,8 à 3). Le rapport entre ceux-ci ne varie donc pas vraiment entre les valeurs massiques et volumiques. Les taux surfaciques des colonnes sont quant à eux plus élevés que ceux des mini-cellules d'altération de un à deux ordres de grandeur, sauf ceux du silicium qui sont très semblables. Le calcul des taux surfaciques sont effectués en divisant les taux massiques par la surface spécifique du type de stérile. Ainsi, plus le stérile a une surface spécifique élevée, moins son taux de lixiviation surfacique sera grand. Dans cette étude, cette différence est flagrante pour l'argilite qui a une surface spécifique 2 à 6 fois plus élevée que les autres types de stériles dans les colonnes et 3,2 à 4,2 fois dans les mini-cellules d'altération, ainsi que pour la péridotite de la mine Kikialik qui a une surface spécifique 3,5 à 15 fois plus élevée que les autres types de stériles en mini-cellule d'altération et de 5 à 33 fois plus élevée dans la colonne (voir section 3.6.1). À la lumière de ces résultats ainsi que de ceux de la section précédente, on observe que les différences entre les taux de lixiviation des différentes échelles et températures varient selon l'élément et qu'il est impossible d'utiliser une méthode (ou relation) unique pour extrapoler tous les taux de lixiviation à une autre échelle (volumique, surfacique ou massique) ou à une autre température (tel que déterminé à la section 5.2.2).

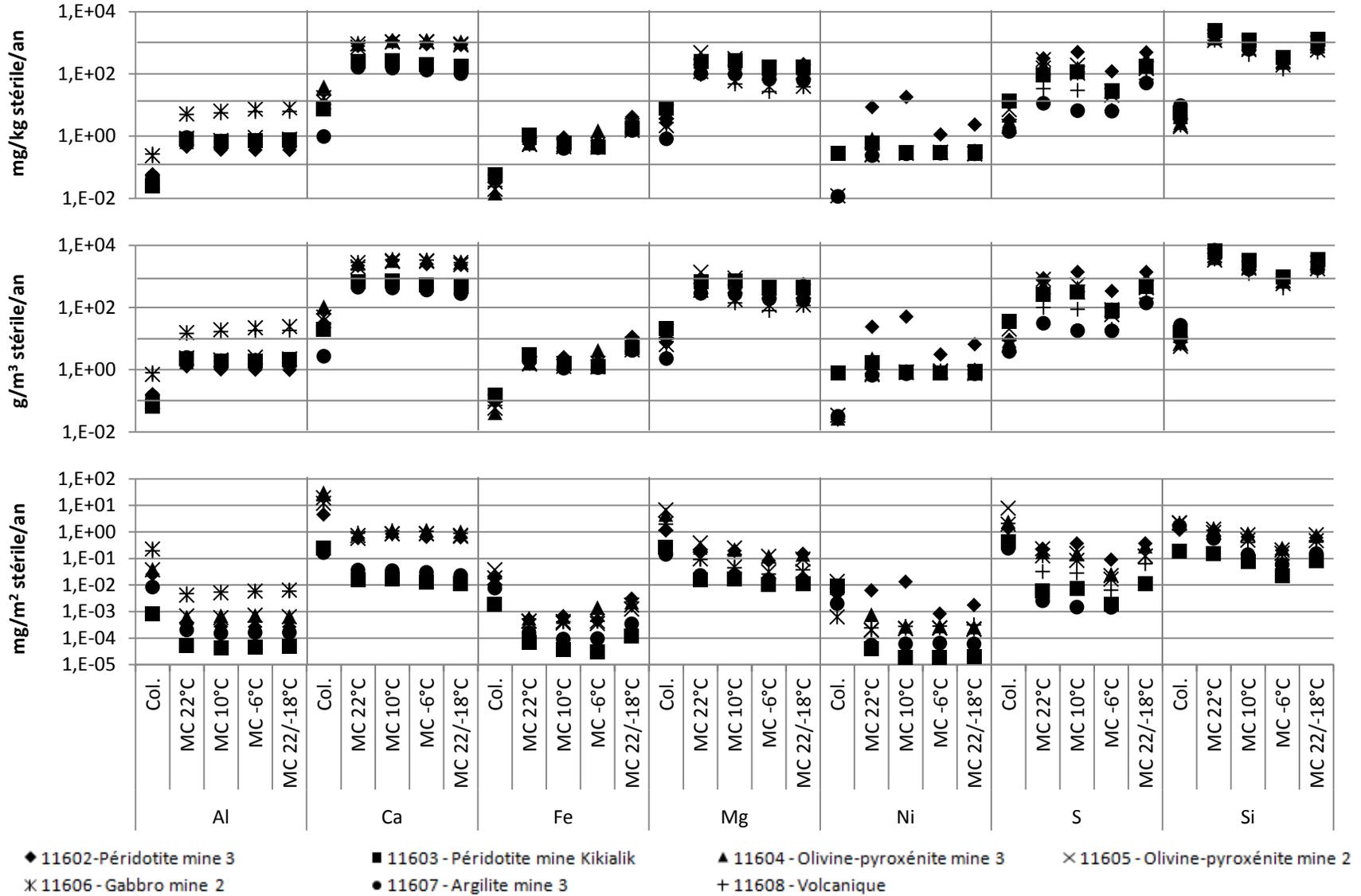


Figure 5-10: Comparaison des taux massiques, volumiques et surfaciques de lixiviation des éléments chimiques lixiviés par chaque type de stérile lors des essais en colonne et en mini-cellule d'altération

5.2.4 Discussion sur le comportement géochimique des stériles lors de l'essai en mini-cellule d'altération

Tel que mentionné au Chapitre 2, la température affecte plusieurs phénomènes géochimiques modifiant la composition chimique des eaux de drainage minier. Parmi ces phénomènes, mentionnons l'oxydation des sulfures, la réactivité des minéraux neutralisants, la formation et la dissolution de minéraux secondaires, le potentiel de sorption des métaux en solution (Price, 2009). Certains de ces effets ont été observés dans les essais en mini-cellules d'altération et sont discutés dans les prochains paragraphes.

On a observé que les taux de lixiviation de S de 5 des 7 mini-cellules d'altérations étaient mesurables à -6°C . L'oxydation des sulfures contenus dans des rejets miniers a d'ailleurs déjà été mesurée à des températures sous 0°C (Elberling, 2001b; Godwaldt, 2001; Meldrum et al., 2001), et même jusqu'à -11°C (Elberling, 2005). Il est donc réaliste de supposer que la lixiviation de sulfates à -6°C observée dans cette étude ait été causée par l'oxydation des sulfures.

Dans les mini-cellules d'altération, la lixiviation de Ni est limitée par la sorption et possiblement par la précipitation de $\text{Ni}(\text{OH})_2$ et de Ni_3SiO_4 . Sa lixiviation coïncide avec une plus forte lixiviation de soufre, de calcium et de magnésium, et une conductivité plus élevée. La modélisation d'équilibre thermodynamique réalisée avec PHREEQ a prédit la précipitation de minéraux secondaires contenant du Ca, Mg et Si, mais celle-ci semble négligeable pour le Mg et le Si en raison des bonnes corrélations obtenues avec la loi d'Arrhénius. La lixiviation de Ca est plus élevée à de basses températures en raison de la plus forte dissolution de la calcite à ces températures. Comme mentionné à la section 2.2.1, la solubilité des produits neutralisants augmente en réponse à l'augmentation de la production d'acide carbonique aqueux produit par le CO_2 de l'air atmosphérique lorsque la température diminue (NEDEM, 2006). La contribution des silicates contenant du Ca (telles l'hornblende, l'augite et l'épidote) semble faible par rapport à celle de la calcite, sachant que les taux de lixiviation de Si partiellement produits par ceux-ci diminuent avec la température. En effet, la lixiviation de Mg (présent dans l'augite et l'hornblende) et de Si provenant des silicates respectent la loi d'Arrhénius et ne semblent donc pas influencées par ce phénomène.

Cette forte lixiviation du Ca à 10 et -6°C entraîne une hausse des rapports Ca+Mg+Mn/S dans les courbes d'oxydation et de neutralisation, ce qui peut compliquer l'interprétation du potentiel de génération d'acidité en raison de l'épuisement plus rapide du PN qui ne provient pas de la neutralisation de l'acide générée par l'oxydation des sulfures et qui pourrait mener à des résultats différents pour statuer sur le potentiel de génération d'acidité de matériaux à grande échelle. En effet, ce phénomène serait d'une ampleur moins importante sur le terrain en raison du rapport liquide/solide plus faible qui ferait en sorte que la concentration en Ca de l'eau interstitielle deviendrait rapidement saturée par rapport aux minéraux carbonatés, limitant ainsi sa lixiviation. Ainsi, on peut penser qu'à grande échelle la demande en alcalinité créée par l'oxydation des sulfures serait supérieure à la dissolution provoquée par la dissolution du CO₂ (NEDEM, 2006).

5.3 Synthèse des essais en mini-cellules d'altération

Dans ce chapitre, des essais cinétiques sur les sept types de stériles échantillonnés ont été effectués en mini-cellules d'altération (ayant 9 cm de diamètre et contenant 67 g de stériles dont les particules sont plus petites que 4,75 mm). On désirait ainsi effectuer sur les stériles un essai à plus petite échelle que l'essai en colonne afin d'observer l'effet de la température sur leur comportement géochimique. Les essais ont été effectués dans des conditions particulières permettant de se rapprocher des conditions du site Raglan situé en région pergélisolée. Les essais ont été effectués à température constante au cours des trois premières étapes à 22°C, 10°C et -6°C. Une 4^e étape consistait en une série de cycles où les matériaux étaient gelés et dégelés en alternance. Les principales observations de ces essais sont les suivantes (voir Tableau 5.6) :

1. Les données électrochimiques des lixiviats ont montré des pH neutres et ne variant pas de façon significative selon la température (les moyennes pour chaque étape se situent entre 7,89 et 7,91). Les conditions sont moins oxydantes à 10°C et -6°C qu'à 22°C (279 et 285 mV versus 426 mV en moyenne). Les Eh de la 4^e étape se situent entre ceux-ci, soit à 312 mV. Les conductivités sont plus élevées que celles obtenues dans les essais en colonnes.
2. On a pu constater en général une diminution de l'oxydation des sulfures avec la température. De bonnes corrélations ont été obtenues entre les taux de lixiviation de S et du Mg et Si (provenant des silicates neutralisants) en fonction de la température avec la

loi d'Arrhénius. Aucun taux de lixiviation de S (inférieur à la limite de détection) n'est mesuré pour l'argilite de la mine 3 et la volcanique à -6°C , mais une faible lixiviation est produite par les autres types de stériles, suggérant qu'il y ait encore oxydation des sulfures à cette température. La modélisation d'équilibre thermodynamique avec PHREEQC suggère que le soufre présent dans le lixiviat ne précipite pas et qu'il se retrouve donc dans les lixiviats.

3. Les modélisations avec PHREEQC et l'analyse DRX post-démantèlement suggèrent la précipitation du fer produit par l'oxydation des sulfures, notamment en oxydes (hématite et magnétite), hydroxydes et oxyhydroxydes. Sa concentration dans les lixiviats demeure d'ailleurs très faible aux trois températures de l'essai, confirmant l'hypothèse de la précipitation dans les colonnes.
4. La lixiviation de Ni la plus forte provient de la péridotite de la mine 3, qui possède aussi le taux d'oxydation des sulfures le plus élevé dans cet essai. Les modélisations d'équilibre thermodynamique prédisent la précipitation du Ni dans les échantillons de péridotite des mines 3 et Kikialik en $\text{Ni}(\text{OH})_2$ et en Ni_2SiO_4 . Sa sorption est aussi fortement suspectée. En raison de ces deux phénomènes, les taux de lixiviation ne sont pas proportionnels au taux d'oxydation des sulfures. Des oxydations plus fortes sont toutefois remarquées à 10°C et 22°C , et aucune lixiviation de nickel notable n'est remarquée à -6°C .
5. La lixiviation du calcium est plus élevée à 10°C et -6°C qu'à 22°C en réponse à une augmentation de la solubilité de l'acide carbonique issu du CO_2 de l'air à plus faible température. Celui-ci augmente la réactivité de la calcite présente en trace dans les stériles.
6. Dans les courbes d'oxydation et de neutralisation, le rapport de production de $\text{Ca}+\text{Mg}+\text{Mn}$ augmente généralement par rapport à la production de S avec une baisse de la température, en lien avec la réactivité du Ca avec l'acide carbonique à de faibles températures. L'ampleur de ce phénomène est probablement plus faible sur le terrain en raison des rapports eau-solide plus faibles, ce qui pourrait mener à des résultats conservateurs lorsque l'on évalue le potentiel de génération d'acidité à long terme des matériaux pour des essais effectués à faible température au laboratoire.

7. L'alternance de cycles de gel et de dégel a engendré dans la plupart des cas une augmentation de l'oxydation des sulfures et de la lixiviation de fer en parallèle avec une baisse de la dissolution des minéraux neutralisants comparativement aux autres étapes. Il est difficile d'expliquer les raisons de ce comportement avec les résultats de cette étude.
8. Les taux de lixiviation massiques, volumiques et surfaciques des essais en colonnes comparés aux résultats des différentes étapes des essais en mini-cellules d'altération montrent qu'il est impossible d'utiliser seulement la loi d'Arrhénius pour extrapoler les taux de lixiviation de tous les éléments à une température ou à une échelle différente.
9. On constate que les taux de lixiviation massiques des principaux éléments des colonnes sont de 1 à 2 ordres de grandeur plus faibles que ceux des mini-cellules d'altération. Les taux volumiques suivent la même tendance que les taux massiques. Les taux surfaciques des principaux éléments des colonnes sont quant à eux de 1 à 2 ordres de grandeur plus élevés que ceux des mini-cellules d'altération, sauf pour le silicium pour lesquels ils sont semblables. Les taux surfaciques de l'argilite de la mine 3 et de la péridotite de la mine Kikialik sont diminués par rapport à ceux des autres stériles étant donné leur plus grande surface spécifique.

Tableau 5.6: Synthèse de l'effet de la température sur la lixiviation des principaux éléments

Élément	Provenance	Variation des taux de lixiviation selon la température
S	Oxydation des sulfures	Selon la loi d'Arrhénius
Ni	Oxydation des sulfures, dissolution des dépôts de la péridotite de Kikialik	Le Ni ²⁺ est trop affecté par la précipitation et la sorption pour suivre la loi d'Arrhénius. De plus, on ne connaît pas l'influence de la température sur la dissolution de Ni dans les dépôts d'altération.
Fe	Oxydation des sulfures	Le Fe ²⁺ est presque totalement précipité et ses taux ne peuvent donc pas respecter la loi d'Arrhénius.
Ca	Dissolution de la calcite	Le Ca ²⁺ est dissous en plus grande quantité aux températures froides en raison de la dissolution du CO ₂ atmosphérique dans l'eau qui l'acidifie. Ce phénomène n'est pas appréciable, modifie le rapport Ca+Mg+Mn/S et ne permet pas le respect de la loi d'Arrhénius.
Mg	Dissolution de silicates	Selon la loi d'Arrhénius
Si	Dissolution de silicates	Selon la loi d'Arrhénius

CHAPITRE 6 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

6.1 Conclusions

Dans ce mémoire, des essais en colonne et en mini-cellule d'altération ont été effectués afin de mieux déterminer le comportement géochimique de différents stériles de la mine Raglan en conditions normale et froides. L'objectif principal est d'évaluer le potentiel de contamination (DNC au nickel ou DMA) des principaux types de roches stériles afin de pouvoir améliorer leur gestion sur le site.

Au Chapitre 2, la revue de littérature a montré qu'en conditions de pH neutre, l'oxydation des sulfures peut survenir et produire certains métaux en solution dans les eaux de drainage de rejets miniers, tel le nickel. La sorption et la précipitation du nickel peut se produire selon les conditions et les matériaux en présence et ainsi atténuer la contamination. Les processus d'oxydation des sulfures, de neutralisation et de sorption augmentent généralement avec la température, tandis que la précipitation de minéraux secondaires peut quant à elle augmenter ou diminuer avec une baisse de la température. Il a aussi été démontré que l'oxydation des sulfures présents dans des rejets miniers peut se produire à des températures inférieures à 0°C, entre autres en raison de la présence d'eau non gelée (la quantité de solutés réduit la température de congélation).

Sept types de stériles situés à une certaine distance du gisement, de provenance et de géologie différentes ont été échantillonnés en collaboration avec le personnel de la mine Raglan afin d'évaluer de manière représentative leur comportement géochimique. Comme le gisement contient des proportions significatives de sulfures, le risque de génération de DMA ou de DNC des stériles situés à proximité du gisement est plus élevé. Cependant, on ne connaît pas le potentiel de contamination de la roche mère ne contenant pas ou très peu de minéral. Si ces types de roches sont inertes, la gestion des stériles sur le site pourrait être modifiée pour réduire le risque de génération de contaminants dans les eaux minières. De la péridotite, de l'olivine-pyroxénite, et de l'argilite provenant de la mine 3 ont été échantillonnés, ainsi que de l'olivine-pyroxénite et du gabbro de la mine 2, de la péridotite de la mine Kikialik et de la volcanique d'une carrière située à proximité. Des essais en colonnes présentés au Chapitre 3 ont été effectués à température normale avec les sept types de stériles échantillonnés dans le but de

caractériser leur comportement géochimique et évaluer leur potentiel de contamination. Des colonnes pouvant contenir du gravier grossier ont été privilégiées parmi les essais existants, car elles permettent de recréer des conditions contrôlées et qui sont plus représentatives de celles des haldes à stériles. Des mini-cellules d'altération ont quant à elles servi à évaluer l'effet de la température sur le comportement géochimique des stériles afin de mieux prédire le comportement se produisant dans les stériles sur le site Raglan situé en région nordique et pergélisolée. Les mini-cellules d'altération sont plus agressives et permettent ainsi de mieux percevoir les différences géochimiques pour différentes conditions de température, soit (étape 1) à 22°C, (étape 2) à 10°C, (étape 3) à -6°C et (étape 4) où la température des cycles était en alternance à 22 et à -18°C.

Au Chapitre 3, on présente la caractérisation détaillée des stériles qui a été effectuée afin de pouvoir mieux expliquer leur comportement géochimique lors des essais cinétiques. Cette caractérisation d'ordre physique, chimique, minéralogique et de sorption a permis de faire des liens entre la qualité de l'eau de drainage des colonnes et des mini-cellules d'altération et les caractéristiques des stériles. On a pu déterminer que les principaux sulfures contenus dans les stériles sont la pentlandite, la pyrrhotite, la pyrite et la chalcopryrite. Le nickel est principalement retrouvé dans la pentlandite, qui constitue le principal minéral économique à la mine Raglan et la pyrrhotite, dont certains grains en contiennent en impureté de 0,2 à 1,5%. Du nickel est aussi présent dans des dépôts d'altération formés sur les surfaces des roches de la péridotite de la mine Kikialik. Les principaux minéraux ayant un potentiel neutralisant dans les stériles sont la calcite (présente en traces dans l'olivine-pyroxénite de la mine 3) et les silicates. Les stériles ont tous un potentiel de sorption du nickel (variable selon le type de roche) et l'argilite possède la plus grande capacité de sorption. On a constaté lors des extractions séquentielles que le nickel sorbé se trouve en faible proportion soluble, échangeable et soluble à l'acide et se retrouve surtout sous forme de composés réductibles (notamment d'oxydes et hydroxydes). Le potentiel de génération d'acidité de l'échantillon de la colonne d'olivine-pyroxénite de la mine 3 est dans la zone d'incertitude des essais statiques, celui de l'olivine-pyroxénite de la mine 2 se trouve à la limite entre la zone d'incertitude et la non génération d'acidité et les autres types de stériles sont classifiés non générateurs d'acidité par cette approche qualitative.

Au chapitre 4, les résultats des essais en colonnes montrent que les stériles produisent tous un drainage neutre à court terme et que la péridotite de la mine Kikialik a un potentiel de génération

de DNC en nickel à court terme (en moyenne 0,280 mg/kg stérile/an). Il est même possible (pour ne pas dire probable) qu'en plus de l'oxydation des sulfures, les dépôts d'altération présents sur ses surfaces participent à la libération de nickel dans l'eau en présence. Les autres types de stériles ne libèrent pas de nickel en solution à court terme, bien que la péridotite de la mine 3 et l'olivine-pyroxénite des mines 2 et 3 contiennent des teneurs en soufre et en nickel équivalentes ou supérieures à celles de la péridotite de la mine Kikialik. On constate toutefois qu'il y a oxydation des sulfures dans les stériles (malgré les faibles concentrations en nickel). La réactivité des sulfures dans certaines roches stériles (les colonnes C1, C2 et C3) a d'ailleurs été confirmée par des essais de consommation d'oxygène dans les colonnes. L'absence de nickel dans l'eau de rinçage de ces matériaux peut s'expliquer par : sa précipitation sous forme d'hydroxyde à des pH supérieurs à 8 et sa sorption sur les surfaces des stériles. Ainsi, même si on observe très peu de nickel dans les lixiviats des colonnes, on ne peut pas statuer sur le potentiel de génération de DNC à long terme des stériles, car on ne peut savoir quelle est la contribution de la sorption du nickel dans sa rétention et la limite temporelle de ce phénomène. Le fer généré par l'oxydation des sulfures précipite immédiatement sous forme d'oxydes, d'hydroxydes et d'oxyhydroxydes. Quant au potentiel de génération d'acide, l'interprétation à l'aide de deux méthodes montre des résultats contradictoires pour l'olivine-pyroxénite de la mine 3 dont le PGA est alors incertain; les autres échantillons de stériles ne sont pas potentiellement générateurs d'acidité à long terme. Donc, on constate que dans les échantillons représentatifs de roche mère étudiés, le risque de DMA est faible et celui de DNC est faible à court terme.

Afin de mieux comprendre les différences dans le comportement géochimique des stériles au laboratoire et sur le terrain à des températures plus froides, l'effet de la température est présenté au Chapitre 5. On constate que les conditions sont moins oxydantes à faible température qu'à température normale. L'effet de la température sur la lixiviation de soufre, de magnésium et de silicium suggère que les taux d'oxydation des sulfures et de la lixiviation des silicates peuvent être prédits de façon adéquate avec la loi d'Arrhénius. Une faible lixiviation de soufre est observée à -6°C pour 5 des 7 types de stériles, suggérant qu'il y ait encore une faible oxydation des sulfures à cette température. La lixiviation du calcium se comporte différemment avec la température. Cet élément est libéré en plus grande quantité à faible température (10°C et -6°C) qu'à température normale. Ce comportement est expliqué par une augmentation de la réactivité de la calcite présente en traces dans les stériles causée par la mise en solution du CO₂ de l'air qui

est plus grande à faible température. Le comportement du calcium fait en sorte que le rapport des taux de libération des éléments des minéraux neutralisants (qui sont surtout Ca+Mg) sur le taux d'oxydation des sulfures est plus élevé à des températures plus froides. À partir des résultats obtenus, on ne peut pas dire si la production de nickel par l'oxydation des sulfures se comporte selon la loi d'Arrhénius, puisque sa libération est nettement contrôlée par la précipitation en minéraux secondaires et la sorption. Les essais en mini-cellules d'altération ont par ailleurs montré que l'alternance de cycles de gel et de dégel peut faire augmenter l'oxydation des sulfures et la libération de fer dans le lixiviat. En comparant les différents taux de lixiviation obtenus dans cette étude (pour les essais en colonnes et les différentes étapes des essais en mini-cellules d'altération), on constate qu'il est impossible d'utiliser une seule relation pour extrapoler les taux de lixiviation de tous les éléments ou de tous les minéraux à une autre température ou à une échelle différente.

6.2 Recommandations

Ce projet de maîtrise a permis de mieux comprendre le comportement géochimique des stériles de la mine Raglan en lien avec la génération de DNC en nickel ainsi que l'effet de la température sur celui-ci. Il a été démontré que la sorption et la précipitation du nickel sont des phénomènes qui peuvent être fortement présents et peuvent retenir ce contaminant dans la phase solide. Le nickel sorbé est lié en grande partie aux phases réductibles notamment composées d'oxydes et hydroxydes de fer. On ne connaît toutefois pas l'ampleur de la sorption du nickel par rapport à ces minéraux et par les silicates et sa précipitation sous forme d'hydroxydes, ni les liens chimiques précis qui le retiennent dans la phase solide. Les mécanismes fondamentaux liés à la sorption du nickel dans les stériles de la mine Raglan pourraient être analysés plus en détails via des analyses complémentaires de type XPS (Plante, 2010).

Les essais en colonne ont montré que les roches stériles testées ne génèrent pas de DNC à court terme. On a remarqué des concentrations de nickel non négligeables dans le lixiviat de la colonne C2 seulement, contenant de la péridotite de la mine Kikialik, et ces concentrations étaient nettement inférieures aux valeurs maximales réglementaires permises par la Directive 019 (0,06 comparativement à 0,5 mg/L). Cependant, la rétention du nickel a empêché de pouvoir clairement statuer sur le potentiel de génération de DNC des stériles à long terme. Il serait important d'effectuer un essai de sorption directement dans les colonnes pour connaître le

potentiel de sorption des stériles utilisés au cours de l'essai et déterminer la limite de sorption du nickel par les stériles. Après avoir saturé les sites de sorption des colonnes, des lixiviations pourront être effectuées afin d'évaluer le potentiel de contamination en DNC des stériles à long terme, sans que la libération du nickel soit empêchée par la sorption. Il serait aussi intéressant d'effectuer les essais de lixiviation statiques demandés par le MDDEP qui sont le TCLP, SPLP et CTEU-9 pour voir ce que ces essais donnent comme résultats par rapport à ceux obtenus par les essais en colonnes qui sont beaucoup plus réalistes. De plus, suite aux résultats de cette étude, on constate qu'on ne connaît pas à partir de quelle proportion de sulfures (ou de minerai) les stériles peuvent produire du DNC à court terme. Une recherche sur cet aspect est présentement en cours avec des essais en colonne au laboratoire de l'URSTM. Des barils de 170 litres ont aussi été installés *in situ* sur le site de la mine Raglan afin de déterminer l'effet de la température et des précipitations sur leur comportement géochimique; les matériaux testés sont similaires à ceux des colonnes au laboratoire. La contribution du contenu de chaque minéral par rapport à la lixiviation de chaque élément pourrait aussi être précisée par une analyse statistique en composantes principales.

Comme on a vu que la température influençait la réactivité des minéraux neutralisants de façon différente par rapport à la réactivité des sulfures, il serait intéressant de vérifier si la température peut avoir un impact sur le potentiel de génération d'acidité d'un matériau. On ne connaît pas non plus la température limite sous laquelle on pourrait encapsuler dans le pergélisol un stérile potentiellement générateur de DNC ou DMA sans qu'il ne produise de contamination. Davantage d'études sont nécessaires afin de déterminer si la prédiction du DNC et de l'effet de la température sur les phénomènes observés sont les mêmes sur le terrain et au laboratoire.

Un autre aspect de recherche intéressant serait la modélisation hydrogéochimique (avec un logiciel comme par exemple MIN3P; Demers et al., 2010, Molson et al., 2008, Mayer, 1999) de la production de DNC en climat froid, autant pour les essais en laboratoire que dans les haldes réelles. Une comparaison entre le comportement géochimique des stériles entreposés dans une halde ou enfouis dans une fosse serait aussi intéressante à étudier afin de confirmer que l'intégration au pergélisol dans une fosse est une approche efficace de restauration.

D'un point de vue pratique en terme de gestion des stériles sur le site et basé sur les résultats de cette étude, on peut tirer les conclusions suivantes :

- À court terme aucune contamination n'est produite par les stériles, à l'exception de la péridotite de la mine Kikialik qui possède des croûtes d'altération sur ses surfaces. On constate toutefois que les concentrations de nickel dans les lixiviats de ce dernier sont bien au-dessous des limites déterminées par la Directive 019.
- À long terme, les stériles ne sont pas potentiellement générateurs d'acidité, à l'exception de l'olivine-pyroxénite de la mine 3 dont le potentiel est considéré incertain. Toutefois, sur le terrain, si une dissolution accrue de la calcite qui ne serait pas produite en réponse à une oxydation des sulfures survenait, ce dernier type de stérile pourrait devenir générateur de DMA.
- Si on considère que tout le soufre lixivié lors de l'essai en colonne est lié à la pentlandite et qu'aucun phénomène n'empêchait la libération du nickel (sorption ou précipitation), les concentrations théoriques en Ni seraient entre 0,6 et 4,8 mg/L, ce qui est légèrement plus élevé que les critères de la Directive 019.
- Les chances sont toutefois très faibles que le gabbro, l'argilite et la volcanique libèrent du nickel dans l'environnement étant donné leurs teneurs très faibles en nickel. Il serait à cet effet intéressant de déterminer pour les colonnes de péridotite et d'olivine-pyroxénite si la saturation de leurs sites de sorption peut être atteinte et en combien d'années selon leurs taux de lixiviation respectifs. Il serait aussi intéressant de voir si la concentration en Ni dans l'eau après saturation des sites de sorption est près ou loin des valeurs théoriques prédites au point précédent.

Suite aux résultats de cette étude, qui est basée sur quelques échantillons considérés représentatifs par le personnel de la mine, on suggère à la mine Raglan de classifier ses stériles selon le schéma de détermination du potentiel de contamination présenté à la Figure 6-1. Seule l'olivine-pyroxénite de la mine 3 est considérée potentiellement génératrice de DMA à long terme. On catégorise les stériles qui possèdent des croûtes d'altération importantes comme potentiellement générateurs de DNC à court terme. L'argilite, le gabbro et la volcanique qui possèdent de faibles teneurs en nickel et un certain potentiel de sorption ont très peu de chances de libérer du nickel et sont considérés non générateurs de DNC. La péridotite et l'olivine-pyroxénite possèdent une certaine teneur en nickel et sont donc plus susceptibles de générer du DNC à long terme, sans que cela puisse être confirmé à ce moment-ci.

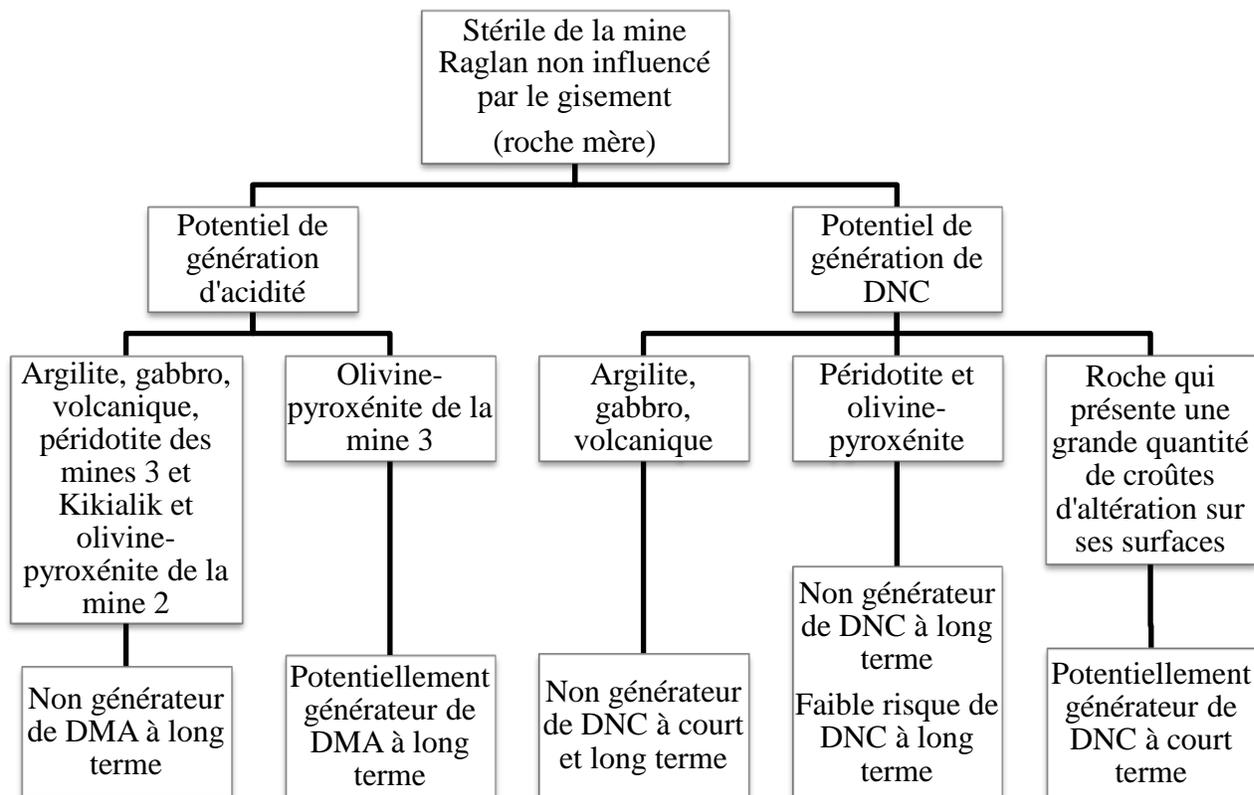


Figure 6-1: Schéma de détermination du potentiel de contamination de la roche mère typique du site de la mine Raglan

Cette étude offre des outils pour modifier la gestion des stériles à la mine. Comme on a déterminé que les stériles non influencés par le gisement n'expliquent pas de génération de DNC à court terme, on recommande d'axer les efforts de restauration sur les stériles extraits près du gisement. Selon les suggestions que l'on retrouve dans le schéma, on propose à la mine de gérer les stériles ayant un potentiel de DNC à court terme avec les stériles potentiellement générateurs de DMA et de privilégier ceux-ci pour le remblai souterrain ou le remblai au fond de fosses afin de faciliter leur intégration au pergélisol et réduire leur réactivité. Les matériaux ayant un potentiel de génération de DNC seulement à long terme pourront alors être stockés sur une plus longue période que les autres en surface. Quant aux matériaux non problématiques, ils pourraient même être intégrés dans le processus de restauration des haldes ou du parc à rejets. En agissant de cette façon en terme de gestion des stériles, la production de contamination sur le terrain et les

coûts reliés au traitement des eaux et à la restauration seront réduits durant les opérations de la mine.

On rappelle en terminant que les propositions de gestion des stériles ci-haut sont basées sur des résultats provenant de quelques échantillons considérés représentatifs. Aucune étude visant à évaluer la variabilité de la minéralogie par type de roche n'a été réalisée. On suggère donc d'effectuer une étude pour vérifier l'étendue de cette variabilité minéralogique naturelle dans la roche. Celle-ci pourrait être effectuée à partir de carottes de forage et en utilisant des paramètres de comparaison tels les teneurs en nickel et en soufre dans la roche, ou encore à l'aide de technique tel que le XRF portatif. Si l'on constate une grande variabilité de ces paramètres dans un type de roche, d'autres essais en colonne (sur les pires conditions par exemple) seraient nécessaires afin de confirmer la validité des conclusions de cette étude.

RÉFÉRENCES

- Abraitis, P. K., R. A. D. Patrick et D. J. Vaughan (2004). Variations in the compositional, textural and electrical properties of natural pyrite: A review. *International Journal of Mineral Processing* 74(1-4): 41-59.
- Adam, K., A. Kourtis, B. Gazea et A. Kontopoulos (1997). Evaluation of static tests used to predict the potential for acid drainage generation at sulfide mine sites. *Trans. Inst. Min. Metall. sect. A : min. industry*(106): A1-A8.
- Ahonen, L. et O. H. Tuovinen (1989). Microbiological oxidation of ferrous iron at low temperatures. *Applied Environmental Microbiology* 2: 312-316.
- Ahonen, L. et O. H. Tuovinen (1992). Bacterial oxidation of sulfide minerals in column leaching experiments at suboptimal temperatures. *Applied and Environmental Microbiology* 58(2): 600-606.
- Allison, J. D., D. S. Brown et K. J. Novo-Grada (1991). *MINTEQA2/PRODEFA2, a geochemical assessment model for environmental systems. Version 3.0, User's Manual, EPA/600/3-91/021* U.S. Environmental Protection Agency.
- Alpers, C. N., D. W. Blowes, D. K. Nordstrom et J. L. Jambor (1994). Secondary minerals and acid mine-water chemistry. *The Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-wastes*. D.W. Blowes et J. L. Jambor. (22: 246-270: Mineralogical Association of Canada.
- Alvarez-Silva, M., A. Uribe-Salas, M. Mirnezami et J. A. Finch (2010). The point of zero charge of phyllosilicate minerals using the Mular-Roberts titration technique. *Minerals Engineering* 23(5): 383-389.
- Ammou, M. (1989). *Microcaractérisation des solides : Méthodes d'observations et d'analyse*. Centre Régional d'Analyse des Métaux.
- Amyot, G. et S. Vézina (1997). Flooding as a reclamation solution to an acidic tailings pond - the Solbec case. *International Conference on Acid Rock Drainage*, Vancouver: p. 451-464.
- Anctil, L. (2011). Étude de la faisabilité de la désulfuration pour limiter la génération de drainage neutre contaminé en arsenic. *Séminaire Enviro-Mine*, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT), Rouyn-Noranda, Québec.
- Andersen, M. S., F. Larsen et D. Postma (2001). Pyrite oxidation in unsaturated aquifer sediments. Reaction stoichiometry and rate of oxidation. *Environmental Science and Technology* 35(20): 4074-4079.
- Anderson, M. E., J. M. Scharer et R. V. Nicholson (1999). The Oxygen Consumption Method (OCM): A new technique for quantifying sulphide oxidation rates in waste rocks. *Mining and the environment*, Sudbury: p. 1133-1142.
- Angove, M. J., B. B. Johnson et J. D. Wells (1998). The influence of temperature on the adsorption of cadmium(II) and cobalt(II) on kaolinite. *Journal of colloid and interface science* 204(1): 93-103.

- Arnesen, R. T., B. Bjerkgeng et E. R. Iversen (1997). Comparison of Model Predicted and Measured Copper and Zinc Concentrations at Three Norwegian Underwater Tailings Disposal Sites. *4th International Conference on Acid Rock Drainage*.
- Atanassova, I. (1999). Competitive effect of copper, zinc, cadmium and nickel on ion adsorption and desorption by soil clays. *Water, Air, and Soil Pollution 113*: 115-125.
- Aubertin, M., M. Aachib et K. Authier (2000). Evaluation of diffusive gas flux through covers with a GCL. *Geotextiles and Geomembranes 18*(2-4): 215-233.
- Aubertin, M., B. Bussière et L. Bernier (2002). *Environnement et gestion des résidus miniers*. Presses Internationales Polytechnique, Manuel sur cédérom.
- Aubertin, M., B. Bussière et R. P. Chapuis (1996). Hydraulic conductivity of homogenized tailings from hard rock mines. *Canadian Geotechnical Journal 33*(3): 470-482.
- Aubertin, M., B. Bussière, A.-M. Joanes, M. Monzon, D. Gagnon, L.-M. Barbera, et al. (1999). Projet sur les barrières sèches construites à partir de résidus miniers, Phase II: essais en place, Rapport NEDEM 2.22.2.
- Aubertin, M., R. P. Chapuis, M. Aachib, B. Bussière, J.-F. Ricard et L. Tremblay (1995). Évaluation en laboratoire de barrières sèches construites à partir de résidus miniers. Rapport NEDEM/MEND Report 2.22.2a.
- Aubertin, M., O. Fala, J. W. Molson, A. Gamache-Rochette, B. Lahmira, V. MARTIN, et al. (2005). Évaluation du comportement hydrogéologique et géochimique des haldes à stériles. *Symposium 2005 sur l'environnement et les mines*, Rouyn-Noranda, Québec.
- Aubertin, M., M. Mbonimpa, B. Bussière et R. P. Chapuis (2003). A model to predict the water retention curve from basic geotechnical properties. *Canadian Geotechnical Journal 40*(6): 1104-1122.
- Azam, S., W. G. Wilson, G. Herasymuik, C. Nichol et L. S. Barbour (2007). Hydrogeological behaviour of an unsaturated waste rock pile: A case study at the Golden Sunlight Mine, Montana, USA. *Bulletin of Engineering Geology and the Environment 66*(3): 259-268.
- Beak (1997). Assessment of Potential Contamination Effects in the environment, Voisey's Bay Mine/Mill Project, mise à jour en décembre 1997. Rapport préparé pour la Voisey's Bay Nickel Company St. John's.
- Beier, N. A. et D. C. Segó (2009). Cyclic freeze-thaw to enhance the stability of coal tailings. *Cold Regions Science and Technology 55*(3): 278-285.
- Belzile, N., Y. W. Chen, M. F. Cai et Y. Li (2004). A review on pyrrhotite oxidation. *Journal of Geochemical Exploration 84*(2): 65-76.
- Benzaazoua, M. (1996). Caractérisation physico-chimique et minéralogique de produits miniers sulfurés en vue de la réduction de leur toxicité et de leur valorisation. Nancy, France, Institut National Polytechnique de Lorraine. *Thèse de doctorat*.
- Benzaazoua, M., B. Bussière et A.-M. Dagenais (2001). Comparison of kinetic tests for sulphide mine tailings. *Tailings and Mine Waste '01*, Balkema, Rotterdam.

- Benzaazoua, M., B. Bussière, A.-M. Dagenais et M. Archambault (2004). Kinetic tests comparison and interpretation for prediction of the Joutel tailings acid generation potential. *Environmental Geology* 46: 1086-1101.
- Beolchini, F. et F. Veglio (1999). Kinetic Modeling of Pyrrhotite Ore Leaching by Ferric Iron and Related Statistical Analysis. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 38(9): 3296-3299.
- Bernier, L. R. (2005). The potential use of serpentinite in the passive treatment of acid mine drainage: Batch experiments. *Environmental Geology* 47(5): 670-684.
- Berthelot, D., L. G. Leduc et G. D. Ferroni (1993). Temperature studies of iron-oxidizing autotrophs and acidophilic heterotrophs isolated from uranium mines. *Canadian Journal of Microbiology* 39(4): 384-388.
- Berthelot, D., L. G. Leduc et G. D. Ferroni (1994). The absence of psychrophilic Thiobacillus ferrooxidans and acidophilic heterotrophic bacteria in cold, tailings effluents from a uranium mine. *Canadian Journal of Microbiology* 40(1): 60-63.
- Biglari, M. et R. V. Nicholson (2008). Assessment of the freezing point depression in Raglan tailings Ecometrix. Mississauga, Ontario.
- Blowes, D., C. J. Ptacek, J. L. Jambor et C. G. Weisener (2003). The Geochemistry of Acid Mine Drainage. *Treatise on geochemistry* 9: 149-204.
- Blowes, D., C. J. Ptacek, J. L. Jambor et C. G. Weisener (2007). The Geochemistry of Acid Mine Drainage. *Treatise on geochemistry* 9: 149-204.
- Blowes, D. W. et C. J. Ptacek (1994). Acid-neutralization mechanisms in inactive mine tailings. *Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Waste*. J.L. Jambor et D.W. Blowes. (22: 272-292: Mineralogical Association of Canada.
- Bouzahzah, H., M. Benzaazoua, B. Bussière et B. Plante (2011). A quantitative approach to calculate the “fizz rating” parameter in the acid-base accounting tests leading to a new adaptation of the Sobek test. *À paraître*.
- Bradbury, M. H. et B. Baeyens (2009). Sorption modelling on illite Part I: Titration measurements and the sorption of Ni, Co, Eu and Sn. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 73(4): 990-1003.
- Bussière, B. (2007). Colloquium 2004: Hydrogeotechnical properties of hard rock tailings from metal mines and emerging geoenvironmental disposal approaches. *Canadian Geotechnical Journal* 44(9): 1019-1052.
- Bussière, B. et M. Aubertin (1999). Clean tailings as cover material for preventing acid mine drainage: an in situ experiment. *Sudbury'99*.
- Bussière, B., Aubertin, M., Zagury, G.J., Potvin, R. et Benzaazoua, M. (2005). Principaux défis et pistes de solution pour la restauration des aires d'entreposage de rejets miniers abandonnées. *Symposium 2005 sur l'environnement et les mines*, Rouyn-Noranda: Cédérom.
- Bussière, B., M. Benzaazoua, M. Aubertin et M. Mbonimpa (2004). A laboratory study of covers made of low-sulphide tailings to prevent acid mine drainage. *Environmental Geology* 45(5): 609-622.

- Bussière, B., A.-M. Dagenais, M. Aubertin et M. Mbonimpa (2002). Modification of oxygen-consumption testing for the evaluation of oxygen barrier performance. *55th Can Geotech and 3rd Joint IAH-CNC and CGS Groundwater Specialty Conferences*: p. 139-146.
- Bussière, B., A.-M. Dagenais, M. Villeneuve et B. Plante (2005). Caractérisation environnementale d'un échantillon de stériles de la mine Tio Rouyn-Noranda, Qué., Canada. :Unité de recherche et de service en technologie minérale (URSTM).
- Bussière, B. et D. W. Hayley (2010). Effects of Climate Change on Mine Waste Disposal in the Arctic. *Geo-Strata 14(5)*: 42,44-46
- Bussière, B., B. Plante, H. Bouzahzah et M. Benzaazoua (2008). Caractérisation de six types de stériles. Rapport final Unité de recherche et de service en technologie minérale (URSTM). Rouyn-Noranda.
- Casey, W. H. et G. Sposito (1992). On the temperature dependence of mineral dissolution rates. *Geochimica and Cosmochimica Acta 56*: 3825-3830.
- Cassie, J., G. Claypool et B. Carreau (2009). Nanisivik Mine Tailings Disposal, An Example Of A Mining Best Practice. *Tailings and Mine Waste 2009*, Banff: University of Alberta, Dept. of Civil and Environmental Engineering: p. 771-781.
- Chapuis, R. P. et P. P. Légaré (1992). Effects of aggregates and mineral fillers on asphalt mixture performance. A simple method for determining the surface area of fine aggregates and fillers in bituminous mixtures, American Society for Testing and Materials, ASTM STP, Vol.1147: 177-186.
- Churchill, H., H. Teng et R. M. Hazen (2004). Correlation of pH-dependent surface interaction forces to amino acid adsorption: Implications for the origin of life. *American Mineralogist 89(7)*: 1048-1055.
- CIRC. (2010). *Nickel and nickel compounds (group 1)*. Consulté le 16 novembre 2010, tiré de <http://monographs.iarc.fr/ENG/Monographs/suppl7/Suppl7-117.pdf>.
- Collin, M. et A. Rasmuson (1988). Gas diffusivity models for unsaturated porous media. *Soil Science America Journal 52*: 1559-1565.
- Cornelissen, G., P. C. M. Van Noort, J. R. Parsons et H. A. J. Govers (1997). The temperature dependence of slow adsorption and desorption kinetics of organic compounds in sediments. *Environ. Sci. Technol 31*: 454-460.
- Cravotta III, C. A. (2008). Dissolved metals and associated constituents in abandoned coal-mine discharges, Pennsylvania, USA. Part 2: Geochemical controls on constituent concentrations. *Applied Geochemistry 23(2)*: 203-226.
- Cruz, R., B. A. Méndez, M. Monroy et I. Gonzalez (2001). Cyclic voltammetry applied to evaluate reactivity in sulfide mining residues. *Applied Geochemistry 16*: 1631-1640.
- Davé, N. K. et V. Clulow (1996). Column Leaching Characteristics of Cullaton Lake B and Shear (S) - Zones Tailings Phase 2: Cold Temperature Leaching. Rapport NEDEM 1.61.3: 228.
- Dawson, R. F. et K. A. Morin (1996). Acid Mine Drainage in Permafrost Regions: Issues, Control Strategies and Research Requirements. Rapport NEDEM 1.61.2.

- Day, S. J. et R. J. Bowell (2005). Atypical and typical zinc geochemistry in a carbonate setting, Sa Dena Hes Mine, Yukon Territory, Canada. *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis* 5(3): 255-266.
- Demers, I. et B. Bussière (2008). Repeatability evaluation of instrumented column tests in acid mine drainage prediction and cover efficiency evaluation. *Conférence Canadienne de Géotechnique 2008*, Edmonton.
- Demers, I., B. Bussière, M. Aachib et M. Aubertin (2010a). Repeatability Evaluation of Instrumented Column Tests in Cover Efficiency Evaluation for the Prevention of Acid Mine Drainage. *Water, Air and Soil Pollution*: 1-16.
- Demers, I., J. Molson et B. Bussière (2010b). Numerical modelling of contaminated neutral drainage from a waste rock field test plot. *63rd Canadian Geotechnical Conference & 1st Joint CGS/CNC-IPA Permafrost Specialty Conference*, Calgary, Alberta.
- Descostes, M., P. Vitorge et C. Beaucaire (2004). Pyrite dissolution in acidic media. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 68(22): 4559-4569.
- Doepker, R. D. et P. L. Drake (1991). Laboratory Study of Submerged Metal-Mine Tailings 3: Factors Influencing the Dissolution of Metals. *2nd International Conference on the Abatement of Acidic Drainage*.
- Doepker, R. D. O., R.D. (1991). Column Leach Study IV: Factors Affecting the Dissolution of Metals from Sulfidic Metal-Mine Tailings. *2nd International Conference on the Abatement of Acidic Drainage*.
- Echeverria, J., J. Indurain, E. Churio et J. Garrido (2003). Simultaneous effect of pH, temperature, ionic strength, and initial concentration on the retention of Ni on illite. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 218(1-3): 175-187.
- Edwards, C. R., W. B. Kipkie et G. E. Agar (1980). The effect of slime coatings of the serpentine minerals, chrysotile and lizardite, on pentlandite flotation. *International Journal of Mineral Processing* 7(1): 33-42.
- Elberling, B. (1998). Processes controlling oxygen uptake rates in frozen mine tailings in the Arctic. *14th International Symposium on Ice*, New York: A.A. Balkema Publishers: p. 183-188.
- Elberling, B. (2001a). Control strategies for acid mine drainage in Arctic regions. *International Symposium on Mining in the Arctic*: p. 37-48.
- Elberling, B. (2001b). Environmental controls of the seasonal variation in oxygen uptake in sulfidic tailings deposited in a permafrost-affected area. *Water Resources Research* 37(1): 99-107.
- Elberling, B. (2005). Temperature and oxygen control on pyrite oxidation in frozen mine tailings. *Cold Regions Science and Technology* 41(2): 121-133.
- Elberling, B. et K. K. Brandt (2003). Uncoupling of microbial CO₂ production and release in frozen soil and its implications for field studies of arctic C cycling. *Soil Biology and Biochemistry* 35(2): 263-272.
- Elberling, B. et R. V. Nicholson (1996). Field determination of sulphide oxidation rates in mine tailings. *Water Resources Research* 32(6): 1773-1784.

- Elberling, B., A. Schippers et W. Sand (2000). Bacterial and chemical oxidation of pyritic mine tailings at low temperatures. *Journal of Contaminant Hydrology* 41(3-4): 225-238.
- Elberling, B., J. Søndergaard, L. A. Jensen, L. B. Schmidt, B. U. Hansen, G. Asmund, et al. (2007). Arctic vegetation damage by winter-generated coal mining pollution released upon thawing. *Environmental Science and Technology* 41(7): 2407-2413.
- Escobar, B., S. Buccicardi, G. Morales et J. Wiertz (2010). Biooxidation of ferrous iron and sulphide at low temperatures: Implications on acid mine drainage and bioleaching of sulphide minerals. *Hydrometallurgy* 104(3-4): 454-458.
- Éthier, M.-P. (2009). Effet de la température sur les phénomènes géochimiques et la réactivité des minéraux impliqués dans la génération de drainage minier acide et de drainage neutre contaminé. Recherche effectuée dans le cadre du cours GML6003-Séminaire de géomatériaux, Automne 2009, 50 p.
- Evangelou, V. P. et Y. L. Zhang (1995). A review: Pyrite oxidation mechanisms and acid mine drainage prevention. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* 25(2): 141-199.
- Evans, K. A., D. C. Watkins et S. A. Banwart (2006). Rate controls on the chemical weathering of natural polymineralic material. II. Rate-controlling mechanisms and mineral sources and sinks for element release from four UK mine sites, and implications for comparison of laboratory and field scale weathering studies. *Applied Geochemistry* 21(2): 377-403.
- Fala, O., M. Aubertin, B. Bussière, R. P. Chapuis et J. Molson (2008). Stochastic numerical simulations of long term unsaturated flow in waste rock piles. *61st Canadian Geotechnical Conference and 9th Joint CSG/IAH-CNC Groundwater Conference*, Edmonton, Alberta: p. 1492-1498.
- Fala, O., J. Molson, M. Aubertin et B. Bussière (2005). Numerical modelling of flow and capillary barrier effects in unsaturated waste rock piles. *Mine Water and the Environment* 24(4): 172-185.
- Felmy, A. R., J. B. Griven et E. A. Jenne (1984). MINTEQ : a computer program for calculating aqueous geochemical equilibria Springfield, Virginia:National Technical Information Services.
- Ferroni, G. D., L. G. Leduc et M. Todd (1986). Isolation and temperature characterization of psychrotrophic strains of thiobacillus ferrooxidans from the environment of a uranium mine. *Journal of General and Applied Microbiology* 32(3): 169-175.
- Fogler, H. S. (2005). *Elements of chemical Reaction Engineering (4e eds.)*. Prentice-Hall International.
- Ford, R. G., A. C. Scheinost, K. G. Scheckel et D. L. Sparks (1999). The link between clay mineral weathering and the stabilization of Ni surface precipitates. *Environmental Science and Technology* 33(18): 3140-3144.
- Fortier, R. (2006). Étude du pergélisol de la zone 5-8 du plateau Katinniq au Nunavik (Québec) - Rapport préliminaire sur les travaux de terrain réalisés depuis le mois d'août 2003 Département de géologie et génie géologique, Faculté des sciences et de génie, Université Laval.

- Fredlund, D. G. et A. Xing (1994). Equations for the soil-water characteristic curve. *Canadian Geotechnical Journal* 31: 521-532.
- Gangolli, S. (2005). Dictionary of Substances and Their Effects (DOSE, 3rd Electronic Edition). Royal Society of Chemistry.
- Geo-Slope International (2007). Vadose/W.
- Germain, D. et J. Cyr (2003). Evaluation of biofilter performance to remove dissolved arsenic: Wood Cadillac. *Sudbury 2003 - Mining and the Environment*, Sudbury, Ontario: p. 1-9.
- Gilichinsky, D. et S. Wagener (1994). *Microbial life in permafrost. (Ed.), Viable Microorganisms in Permafrost* Pushchino Research Center, Pushchino, Russia.
- Godwaldt, R. C. (2001). Acid Mine Drainage at Sub-Zero Temperatures. Department of Civil and Environmental Engineering. Edmonton, University of Alberta. *Master of Science*: 240.
- Godwaldt, R. C., K. W. Biggar et D. C. Sego (1999). AMD generation at sub-zero temperature. *Symposium on Assessment and Remediation of Contaminated Sites in Arctic and Cold Climates*, Edmonton, Alberta.
- Gosselin, M. (2007). Étude de l'influence des caractéristiques hydrogéochimiques des résidus miniers réactifs sur la diffusion et la consommation de l'oxygène. Département des génies civil, géologique et des mines. Montréal, École Polytechnique de Montréal. *M.Sc.A.*
- Guinebretière, R. (2002). *Diffraction des rayons X sur échantillons polycristallins*. Lavoisier, Hermes Sciences.
- Gupta, S. S. et K. G. Bhattacharyya (2006). Adsorption of Ni(II) on clays. *Journal of colloid and interface science* 295(1): 21-32.
- Hakkou, R., M. Benzaazoua et B. Bussiere (2008). Acid Mine Drainage at the Abandoned Kettara Mine (Morocco): 2. Mine Waste Geochemical Behavior. *Mine Water and the Environment* 27: 160-170.
- Hedin, R. S., R. W. Nairn et R. L. P. Kleinmann (1994). Passive treatment of coal mine drainage. *US Bureau of Mines Information Circular 9389*, Pittsburgh.
- Heikkinen, P. M. et M. L. Räsänen (2008). Mineralogical and geochemical alteration of Hitura sulphide mine tailings with emphasis on nickel mobility and retention. *Journal of Geochemical Exploration* 97(1): 1-20.
- Herasymuik, G. M. (1996). Hydrogeology of sulfide waste rock dump. Department of civil Engineering. Saskatoon, University of Saskatchewan. *M.Sc. thesis*.
- Holubec, I. (2004). Covers For Reactive Tailings Located in Permafrost Regions Review. Rapport NEDEM 1.61.4.
- INAP. (2009). *Global Acid Rock Drainage Guide (GARD Guide)*. Consulté, tiré de http://www.gardguide.com/index.php/Main_Page.
- Jambor, J. L. (1994). Mineralogy of sulphide-rich tailings and their oxidation products. *Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulphide Mine-Wastes*. Geological Society of Canada: 59-102). Nepean, Ontario: Jambor, J. L. et Blowes, D. W.

- Jambor, J. L. et D. W. Blowes (1998). Theory and applications of mineralogy in environmental studies of sulfide-bearing mine wastes. *Modern Approaches to Ore and Environmental Mineralogy*. L.J. Cabri et D.J. Vaughan. (27: 367-401: Mineralogical Association of Canada, Short course Series.
- Jambor, J. L., J. E. Dutrizac et M. Raudsepp (2007). Measured and computed neutralization potentials from static tests of diverse rock types. *Environmental Geology* 52: 1019-1031.
- James, R. O. et M. G. MacNaughton (1977). The adsorption of aqueous heavy metals on inorganic minerals. *Geochimica et Cosmochimica Acta*(41): 1549-1555.
- Janzen, M. P. (1996). Role of ferric iron, trace metal content, and crystal structure on pyrrhotite oxidation. Waterloo, Canada, University of Waterloo. *MSc thesis*: 175.
- Janzen, M. P., R. V. Nicholson et J. M. Scharer (2000). Pyrrhotite reaction kinetics: reaction rates for oxidation by oxygen, ferric iron, and for nonoxidative dissolution. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 64(9): 1511-1522.
- Kalin, M. (1987). Ecological engineering for gold and base metal mining operation in the North West Territories. Department of Indian Affairs and Northern Development Northern Affairs Program. *Environmental Studies no. 59*: 1-64.
- Kameda, J., H. Sugimori et T. Murakami (2009). Modification to the crystal structure of chlorite during early stages of its dissolution. *Physics and Chemistry of Minerals* 36(9): 537-544.
- Karavaiko, G. I., T. V. Kovalenko et V. P. Piskunov (1982). Effect of Fe(III)-ions in the oxidation of ferrous iron by *Thiobacillus ferrooxidans* at various temperatures. *Microbiologyia* 51: 156-160.
- Kleinmann, R. L. P., D. A. Crerar et R. R. Pacellil (1981). Biogeochemistry of acid mine drainage and a method to control acid formation. *Mining Engineering*: 300-304.
- Kodali, B., B. Rao M, L. Narasu M et R. Pogaku (2004). Effect of biochemical reactions in enhancement of rate of leaching. *Chemical Engineering Science* 59(22-23): 5069-5073.
- Kohfahl, C., J. Greskowiak et A. Pekdeger (2007). Effective diffusion and microbiologic activity as constraints describing pyrite oxidation in abandoned lignite mines. *Applied Geochemistry* 22: 1-16.
- Kupka, D., M. Liljeqvist, P. Nurmi, J. A. Puhakka, O. H. Tuovinen et M. Dopson (2009). Oxidation of elemental sulfur, tetrathionate and ferrous iron by the psychrotolerant *Acidithiobacillus* strain SS3. *Research in Microbiology* 160(10): 767-774.
- Kwong, E. C. M. (1995). Abiotic and biotic pyrrhotite dissolution. Waterloo, Ontario, University of Waterloo. *MASc thesis*.
- Kwong, Y. T. J. (1993). Prediction and prevention of acid rock drainage from a geological and mineralogical perspective. Rapport NEDEM 1.32.1 Canmet, Ottawa.
- Kwong, Y. T. J. et K. D. Ferguson (1997). Mineralogical changes during NP determinations and their implications. *4th Int. Conf. on Acid Rock Drainage*, Vancouver, BC, Canada: Mine Environment Neutral Drainage, Nat. Resour. Canada, Ottawa, ON.: p. 435-447.
- Kyhn, C. et B. Elberling (2001). Frozen cover actions limiting AMD from mine waste deposited on land in Arctic Canada. *Cold Regions Science and Technology* 32(2-3): 133-142.

- Langdahl, B. R. et K. Ingvorsen (1997). Temperature characteristics of bacterial iron solubilisation and ¹⁴C assimilation in naturally exposed sulfide ore material at Citronen Fjord, North Greenland (83°N). *FEMS Microbiology Ecology* 23(4): 275-283.
- Langmuir, D. (1997). *Aqueous environmental geochemistry*. Prentice Hall.
- Langmuir, D., J. Mahoney, A. MacDonald et J. Rowson (1999). Predicting arsenic concentrations in the porewaters of buried uranium mill tailings. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 63(19-20): 3379-3394.
- Lawrence, R. W. (1990). Prediction of the behavior of mining and processing wastes in the environment. *Western Regional Symposium on Mining and Mineral Processing Wastes*, Littleton, C.O.: Society for Mining, Metallurgy and Exploration, Inc.: p. 115-121.
- Lawrence, R. W. et M. Scheske (1997). A method to calculate the neutralization potential of mining wastes. *Environmental Geology* 32(2): 100-106.
- Lawrence, R. W. et Y. Wang (1997). Determination of neutralisation potential in the prediction of acid rock drainage. *4th ICARD*, Vancouver, BC: p. 449-464.
- Leduc, D., L. G. Leduc et G. D. Ferroni (2002). Quantification of bacterial populations indigenous to acidic drainage streams. *Water, Air, and Soil Pollution* 135(1-4): 1-21.
- Leduc, L. G., J. T. Trevors et G. D. Ferroni (1993). Thermal characterization of different isolates of *Thiobacillus ferrooxidans*. *FEMS Microbiology Letters* 108(2): 189-193.
- Lee Black, D., M. Q. McQuay et M. P. Bonin (1996). Laser-based techniques for particle-size measurement: A review of sizing methods and their industrial applications. *Progress in Energy and Combustion Science* 22(3): 267-306.
- Leshner, C. M. (2007). Ni-Cu-(PGE) Deposits in the Raglan Area, Cape Smith Belt, New Québec. in Goodfellow, W. D., ed., *Mineral Deposits of Canada: A Synthesis of Major Deposit-Types, District Metallogeny, the Evolution of Geological Provinces, and Exploration Methods Special Publication No. 5*: 351-386.
- Li, M. G. (2000). Acid Rock Drainage Prediction for Low-Sulfide, Low-Neutralization Potential Mine Wastes. *Proceedings of the 5th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD)*, Denver, USA: p. 567-580.
- Limousin, G., J. P. Gaudet, L. Charlet, S. Szenknect, V. Barthès et M. Krimissa (2007). Sorption isotherms: A review on physical bases, modeling and measurement. *Applied Geochemistry* 22(2): 249-275.
- Liu, Z., D. Yuan et W. Dreybrodt (2005). Comparative study of dissolution rate-determining mechanisms of limestone and dolomite. *Environmental Geology* 49: 274-279.
- Lowson, R. T. (1982). Aqueous oxidation of pyrite by molecular oxygen. *Chemical Reviews* 82(5): 461-497.
- Luce, R. W., R. W. Bartlett et G. A. Parks (1972). Dissolution kinetics of magnesium silicates. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 36(1): 35-50.
- Malmström, M. E., G. Destouni, S. A. Banwart et B. H. E. Strömberg (2000). Resolving the scale-dependence of mineral weathering rates. *Environmental Science and Technology* 34(7): 1375-1378.

- Marsden, J. O. et C. I. House (2006). Surface chemical methods, 2nd edition. *The chemistry of gold extraction*. SME).Littleton, Colorado.
- Martin, V. (2003). Étude des propriétés non saturées des stériles miniers. Génie Minéral, École Polytechnique de Montréal. *Mémoire de maîtrise*.
- Martin, V., M. Aubertin, J. Zhan, B. Bussière et R. P. Chapuis (2005). An investigation into the hydrological behaviour of exposed and covered waste rock dumps. *SME Annual Meeting, Preprint 05-109*, Salt Lake City.
- Mayer, K. U. (1999). A numerical model for multicomponent reactive transport in variably saturated porous media. Departement of Earth Sciences. Waterloo, Ontario, University of Waterloo. *Ph.D. Thesis*.
- Mbonimpa, M., M. Aubertin, M. Aachib et B. Bussière (2003). Oxygene diffusion and consumption in unsaturated cover materials. *Revue canadienne de géotechnique 40*: 916-932.
- Mbonimpa, M., M. Aubertin, R. P. Chapuis et B. Bussière (2002a). Practical pedotransfer functions for estimating the saturated hydraulic conductivity. *Geotechnical and Geological Engineering 20*: 235-259.
- Mbonimpa, M., M. Aubertin, A.-M. Dagenais, B. Bussière, M. Julien et M. Kissiova (2002b). Interpretation of Field Tests to Determine the Oxygen Diffusion and Reaction Rate Coefficients of Tailings and Soil Covers. *55th Canadian Geotechnical Conference and 3rd joint IAH-CNC and CGS Groundwater Specialty Conference*, Niagara Falls, Ontario: p. 147-154.
- McKibben, M. A. et H. L. Barnes (1986). Oxidation of pyrite in low temperature acidic solutions: Rate laws and surface textures. *Geochimica et Cosmochimica Acta 50(7)*: 1509-1520.
- McKnight, D. M. et K. E. Bencala (1990). The chemistry of iron, aluminum, and dissolved organic material in three acidic, metal-enriched, mountain streams, as controlled by watershed and in-stream processes. *Water Resources Research 26*: 3087-3100.
- MDDEP (2005). Directive 019 sur l'industrie minière. de l'Environnement et des Parcs Ministère du Développement durable. Québec: 101.
- Meldrum, J. L. (1998). Determination of the sulphide oxidation potential of mine tailings from Rankin Inlet, Nunavut, at sub-zero temperatures. Canada, Queen's University at Kingston (Canada).
- Meldrum, J. L., H. E. Jamieson et L. D. Dyke (2001). Oxidation of mine tailings from Rankin Inlet, Nunavut, at subzero temperatures. *Canadian Geotechnical Journal 38*: 957-966.
- Menoret, C. (2001). Traitement d'effluents concentrés par cultures fixées sur gravier ou pouzzolane. Sciences de l'eau et de la terre. Montpellier, Académie de Montpellier. *Ph.D. thesis*.
- Mikhlin, Y. (2000). Reactivity of pyrrhotite surfaces ; an electrochemical study. *Physical Chemistry Chemical Physics 2*: 5672-5677.
- Miller, S. D., J. J. Jeffery et J. W. C. Wong (1991). Use and misuse of the acidbase account for "AMD" prediction. *Second International Conference on the Abatement of Acidic Drainage*, Montreal, Canada: p. 489-506.

- Ministère de la Justice (2010). Règlement sur les effluents des mines de métaux. Ottawa: 56.
- Mironenko, M. V., S. A. Grant, G. M. Marion et R. E. Farren (1997). FREZCHEM2: A chemical thermodynamic model for electrolyte solutions at subzero temperatures. *Cold Regions Research and Engineering Laboratory*.
- Molson, J., M. Aubertin, B. Bussière et M. Benzaazoua (2008). Geochemical transport modelling of drainage from experimental mine tailings cells covered by capillary barriers. *Applied Geochemistry*(23): 1-24.
- Morin, K. A. et N. M. Hutt (2000). Discrete-zone mixing of net-acid-neutralizing and net-acid-generating rock: Avoiding the argument over appropriate ratios. *Fifth International Conference on Acid Rock Drainage*, Denver, USA: Society for Mining, Metallurgy, and Exploration, Inc.: p. 797-803.
- Moses, C. O. et J. S. Herman (1991). Pyrite oxidation at circumneutral pH. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 55(2): 471-482.
- NEDEM (1996). Acid Mine Drainage in Permafrost Regions: Issues, Control Strategies and Research Requirements. *Programme de Neutralisation des Eaux de Drainage dans l'Environnement Minier Rapport 1.61.2*: 1-68.
- NEDEM (2006). Update on Cold Temperature Effects on Geochemical Weathering. *Programme de Neutralisation des Eaux de Drainage dans l'Environnement Minier Rapport 1.61.6*.
- NEDEM (2009). Mine waste cover in cold regions. *Programme de Neutralisation des Eaux de Drainage dans l'Environnement Minier Rapport 1.61.5a*: 111.
- Nemcsok, G. (2009). Raglan Basalt, Argillite and Peridotite Densities, Xstrata Nickel - Mine Raglan.
- Nicholson, R. V. (2004). Overview of neutral pH drainage and its mitigation: results of a MEND study. *Proceedings of the MEND Ontario workshop*, Sudbury.
- Nicholson, R. V., R. W. Gillham et E. J. Reardon (1988). Pyrite oxidation in carbonate-buffered solution: 1. Experimental kinetics. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 52(5): 1077-1085.
- Nicholson, R. V., M. Rinker, M. A. Venhuis, G. Williams et B. Swabrick (2003). Implications of Non-Acidic Metal Leaching on Mine Rock Management at a Nickel Mine in Permafrost Terrain: Environmental Baseline Investigation. *Mining and the Environment III, Session 5B U/Radionuclides*, Sudbury: Paper on CD Rom.
- Nicholson, R. V. et M. J. Rinker (2000). Metal leaching from sulphide mine waste under neutral pH condition. *5th International ICARD*, Denver, USA.
- Nicholson, R. V., M. J. Rinker, G. Williams et W. A. Napier (1999). Assessment of water quality associated with underwater disposal tailings and waste rock from the Voisey's Bay project, Labrador, Canada. *Mining and the environment*. Sudbury: 127-136.
- Nicholson, R. V. et J. M. Scharer (1994). Laboratory studies of pyrrhotite oxidation kinetics. *ACS Symposium Series*, Washington, DC: Alpers, C.N., Blowes, D.W. (Eds.), *Environmental Geochemistry of Sulfide Oxidation*: p. 14-30.
- Pachauri, R. K. et A. Reisinger (2007). *Climate Change 2007: Synthesis Report* Genève, Suisse: Intergovernmental panel on climate change (IPCC).

- Paktunc, A. D. (1999). Characterization of mine wastes for prediction of acid mine drainage. *Environmental impacts of mining activities*. J.M. Azcue: 19-40). Berlin, Allemagne: Springer.
- Parkhurst, D. L. et C. A. J. Appelo (1999). User's guide to PHREEQC (Version 2)-A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. Report 99-4259. *U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations*: 310.
- Peacey, V., E. K. Yanful, M. Li et M. Patterson (2002). Water cover over mine tailings and sludge: Field studies of water quality and resuspension. *International Journal of Surface Mining, Reclamation and Environment* 16: 289-303.
- Peltier, E., R. Allada, A. Navrotsky et D. L. Sparks (2006). Nickel solubility and precipitation in soils: A thermodynamic study. *Clays and Clay Minerals* 54: 153-164.
- Pépin, G. (2009). Évaluation du comportement géochimique de stériles potentiellement générateurs de drainage neutre contaminé à l'aide de cellules expérimentales in situ, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT). *M.Sc.A.*
- Percival, J. B., Y. T. J. Kwong, C. G. Dumaresq et F. A. Michel (2004). Transport and attenuation of arsenic, cobalt and nickel in an alkaline environment (Cobalt, Ontario). Geological Survey of Canada, Open file 1680.
- Peregoedova, A. (2011). Étude expérimentale des propriétés hydrogéologiques de stériles miniers. Montréal, Québec, École Polytechnique de Montréal. *Mémoire de maîtrise (M.Sc.A.)*.
- Perkins, E. H., H. W. Nesbitt, E. D. Gunter, L. C. St-Arnaud et J. R. Mycroft (1995). Critical review of geochemical processes and geochemical models adaptable for prediction of acidic drainage from waste rocks. Rapport NEDEM 1.42.1.
- Pettit, C. M., J. M. Scharer, D. B. Chambers, B. E. Halbert, J. L. Kirkaldy et L. Bolduc (1999). Neutral mine drainage. *Conference Proceedings of Sudbury 1999*: 829-838.
- Pham, H.-N., D. C. Segó, L. U. Arenson, D. Blowes et L. Smith (2008). Convective heat transfer in waste rock piles under permafrost environment. *GéoEdmonton*, Edmonton: p. 940-947.
- Plante, B. (2010). Évaluation des principaux facteurs d'influence sur la prédiction du drainage neutre contaminé. Rouyn-Noranda, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT). *Ph.D.*: 238.
- Plante, B., M. Benzaazoua et B. Bussière (2010a). Predicting Geochemical Behaviour of Waste Rock with Low Acid Generating Potential Using Laboratory Kinetic Tests. *Mine Water and the Environment*: 1-20.
- Plante, B., M. Benzaazoua, B. Bussière, M. C. Biesinger et A. R. Pratt (2010b). Study of Ni sorption onto Tio mine waste rock surfaces. *Applied Geochemistry* 25(12): 1830-1844.
- Pokrovsky, O. S., S. V. Golubev et J. Schott (2005). Dissolution kinetics of calcite, dolomite and magnesite at 25C and 0 to 50 atm pCO₂. *Chemical Geology*(217): 239- 255.
- Price, W. A. (2009). Prediction Manual for Drainage Chemistry from Sulphidic Geologic Materials. Rapport NEDEM 1.20.1. Canmet, Ottawa.

- Price, W. A. et Y. T. J. Kwong (1997). Waste rock weathering, sampling and analysis: observations from the British Columbia Ministry of employment and investment database. *4th ICARD*, Vancouver, B.C.: p. 31-46.
- Rattanakawin, C., S. Supapia, S. Phuvichit et Y. Panjasawatwong (2010). Processing of hornblende syenite for ceramics. *Songklanakarinn Journal of Science and Technology* 32(2): 189-195.
- Regelink, I. C. et E. J. M. Temminghoff (2011). Ni adsorption and Ni-Al LDH precipitation in a sandy aquifer: An experimental and mechanistic modeling study. *Environmental Pollution* 159(3): 716-721.
- Ressources naturelles Canada (2009). Annuaire des minéraux du Canada (AMC). Secteur des minéraux et des métaux.
- Rinker, M. J., R. V. Nicholson, M. A. Venhuis et B. Swarbrick (2003). Implication of Non-Acid Metal Leaching on Mine Rock Management at a Nickel Mine in Permafrost Terrain : 1 - Mine Rock Evaluation. *Mining and the Environment III*, Sudbury: Paper on CD Rom.
- Robertson, A. M. et L. M. Broughton (1992). Reliability of acid rock drainage testing. *Workshop on U.S. EPA Specifications for Tests to Predict Acid Generation from Non-Coal Mining Wastes, Las Vegas, Nevada, July 30-31*.
- Sak, P. B., D. M. Fisher, T. W. Gardner, K. Murphy et S. L. Brantley (2004). Rates of weathering rind formation on Costa Rican basalt. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 68(7): 1453-1472.
- Saldi, G. D., S. J. Köhler, N. Marty et E. H. Oelkers (2007). Dissolution rates of talc as a function of solution composition, pH and temperature. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 71(14): 3446-3457.
- Salmon, S. U. et M. E. Malström (2006). Quantification of mineral dissolution rates and applicability of rate laws: Laboratory studies of mill tailings. *Applied Geochemistry* 21: 269-288.
- Sapsford, D. J., R. J. Howell, M. Dey et K. P. Williams (2009). Humidity cell tests for the prediction of acid rock drainage. *Minerals Engineering* 22(1): 25-36.
- Schafer, W., G. Zhan, K. Myers, M. Milczarek et R. Espell (2005). Designing an ET cover for the Bazaar waste rock facility at Barrick Goldstrike Mines. *Symposium sur l'environnement et les mines*, Rouyn-Noranda, Québec.
- Scharer, J. M., C. M. Pettit, J. L. Kirkaldy, L. Bolduc, B. E. Halbert et D. B. Chambers (2000). Leaching of Metals Sulphide Mine Wastes at Neutral pH. *5th ICARD*, Denver, Colorado, USA: Society for Mining, Metallurgy, Exploration, Inc.: p. 191-204.
- Scheckel, K. G., A. C. Scheinost, R. G. Ford et D. L. Sparks (2000). Stability of layered Ni hydroxide surface precipitates - A dissolution kinetics study. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 64(16): 2727-2735.
- Scheckel, K. G. et D. L. Sparks (2001a). Division S-2 - Soil chemistry: Dissolution kinetics of nickel surface precipitates on clay mineral and oxide surfaces. *Soil Science Society of America Journal* 65(3): 685-694.

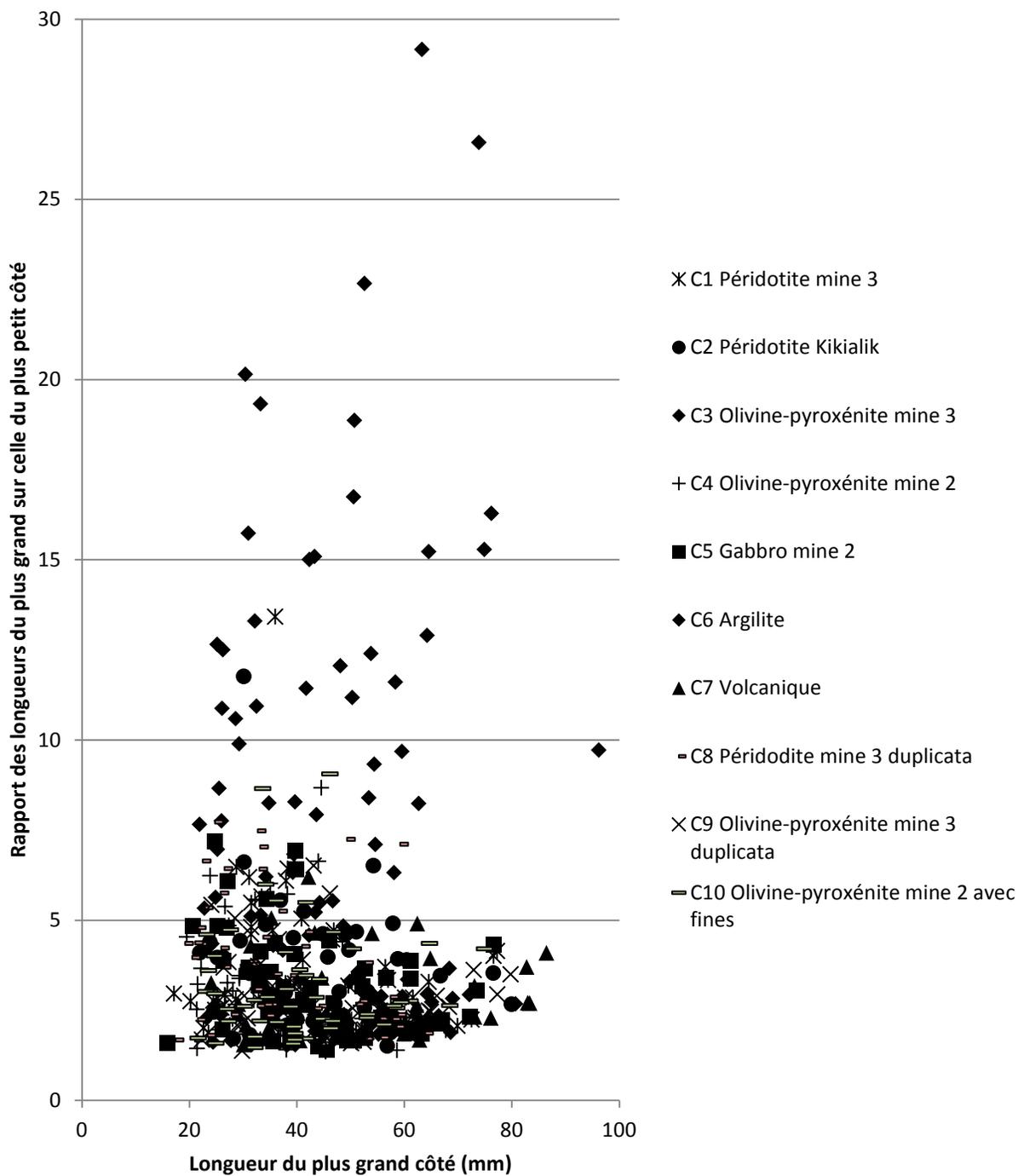
- Scheckel, K. G. et D. L. Sparks (2001b). Temperature effects on nickel sorption kinetics at the mineral-water interface. *Soil Science Society of America Journal* 65(3): 719-728.
- Scheinost, A. C., R. G. Ford et D. L. Sparks (1999). The role of Al in the formation of secondary Ni precipitates on pyrophyllite, gibbsite, talc, and amorphous silica: a DRS study. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 63: 3193-3203.
- Sharma, P., G. Singh et R. Tomar (2009). Synthesis and characterization of an analogue of heulandite: Sorption applications for thorium(IV), europium(III), samarium(II) and iron(III) recovery from aqueous waste. *Journal of colloid and interface science* 332(2): 298-308.
- Singer, P. C. et W. Stumm (1970). Acidic mine drainage: the rate determining step. *Science* 167: 1121-1123.
- Sjöberg, E. L. (1976). A fundamental equation for calcite dissolution kinetics. *Geochimica and Cosmochimica Acta* 40: 441-447.
- Skoog, D. A. et J. J. Leary (1992). *Principles of instrumental analysis, Fourth Edition*. Saunders College Publishing.
- SNC Lavalin (2009). Caractérisation du parc à résidus miniers de la Mine Raglan. Xstrata Nickel, Société minière Raglan, Rapport Final.
- Sobek, A. A., W. A. Schuller, J. R. Freeman et R. M. Smith (1978). Field and laboratory methods applicable to overburdens and minesoils. EPA-600/2-78-054 Washington, DC:Environmental Protection Agency.
- Song, Q. et E. K. Yanful (2010). Effect of water addition frequency on oxygen consumption in acid generating waste rock. *Journal of Environmental Engineering* 136(7): 691-700.
- Stantec (2004). Review of water quality issues in neutral pH drainage: Examples and emerging priorities for the mining industry in Canada. Rapport NEDEM 10.1 Natural Resources Canada.
- Statistique Canada. (2010). *Produit intérieur brut aux prix de base, industries primaires* Consulté, tiré de <http://www40.statcan.gc.ca/102/cst01/prim03-fra.htm>.
- Steger, H. F. (1982). Oxidation of sulfide minerals. VII. Effect of temperature and relative humidity on the oxidation of pyrrhotite. *Chemical Geology* 35(3-4): 281-295.
- Swedlund, P. J. et J. G. Webster (2001). Cu and Zn ternary surface complex with SO₄ on ferrihydrite and schwertmannite. *Applied Geochemistry* 16: 503-511.
- Szymanski, M. B., A. Zivkivik, A. Tchekhovski et B. Swarbrick (2003). Designing for closure of an open pit in the Canadian Arctic. *8th International Conference on Permafrost*, Zurich, Switzerland: Swets & Zeitlinger: p. 1123-1128.
- Tassé, N., D. Isabel et R. Fontaine (2003). Wood Cadillac Mine Tailings : Designing a Biofilter for Arsenic Control. *Sudbury 03 : Mining and the environment III*, Sudbury, Canada.
- Taylor, J. C. et I. Hinczak (2001). *Rietveld made easy: A Practical Guide to the Understanding of the Method and Successful Phase quantifications*. J.C. Taylor and I. Hinczak.

- Tewari, P. H. et A. B. Campbell (1976). Temperature dependence of point of zero charge of cobalt and nickel oxides and hydroxides. *Journal of colloid and interface science* 55(3): 531-539.
- Tibble, P. A. (1997). A Survey of In Situ Oxygen Consumption Rates for Sulphide Tailings: Investigations on Exposed Tailings and Selected Remediation Efforts. Waterloo, Ontario, University of Waterloo. *Masters Thesis*.
- Veglio', F., Beolchini, F., Nardini, A., Toro, L. (2000). Bioleaching of a pyrrhotite ore by a sulfooxidans strain: kinetic analysis. *Chem. Eng. Sci.* 55: 783– 795.
- Villeneuve, M. (2004). Évaluation du comportement géochimique à long terme de rejets miniers à faible potentiel de génération d'acide à l'aide d'essais cinétiques. Départements des génies civil, géologique et des mines. Montréal, École Polytechnique de Montréal. *Mémoire de maîtrise*.
- Villeneuve, M., B. Bussière, M. Benzaazoua et M. Aubertin (2009). Assessment of interpretation methods for kinetic tests performed on tailings having a low acid generating potential. *8th ICARD*, Skellefteå, Sweden.
- Villeneuve, M., B. Bussière, M. Benzaazoua, M. Aubertin et M. Monroy (2003). The influence of kinetic test type on geochemical response of low acid generation potential tailings. *Tailings and mine waste '03*, Vail, CO., USA: Sweets & Zeitlinger: p. 269-279.
- Watling, H. R. (2008). The bioleaching of nickel-copper sulfides. *Hydrometallurgy* 91(1-4): 70-88.
- White, A. F. (1995). Chemical weathering rates of silicate minerals in soils. *Chemical Weathering Rates of Silicate Minerals, Reviews in Mineralogy*. A. White and S. Brantley. (31: 407). Washington D.C.: Mineralogical Society of America.
- White, A. F., A. E. Blum, T. D. Bullen, D. V. Vivit, M. Schulz et J. Fitzpatrick (1999). The effect of temperature on experimental and natural weathering rates of granitoid rocks. *Geochimica and Cosmochimica Acta* 63: 3277-3291.
- White, W. W. et T. H. Jeffers (1994). Chemical predictive modelling of acid mine drainage from metallic sulfide-bearing waste rock. Dans : Environmental Geochemistry of Sulfide Oxidation. *Proceedings of the American Chemical Society Symposium Series 550*, Washington DC: American Chemical Society: p. 608-630.
- Williamson, M. A. et J. D. Rimstidt (1994). The kinetics and electrochemical rate-determining step of aqueous pyrite oxidation. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 58(24): 5443-5454.
- Wilson, G. W. (1990). Soil evaporative fluxes for geotechnical engineering problems. Saskatoon, University of Saskatchewan. *Ph.D thesis*.
- Wilson, G. W., D. G. Fredlund et S. L. Barbour (1994). Coupled soil-atmosphere modelling for soil evaporation. *Canadian Geotechnical Journal* 31(2): 151-161.
- Xstrata Nickel - Mine Raglan. (2009). *Raglan*. Consulté le 11 décembre 2009, tiré de http://archive.xstrata.com/falconbridge/www.falconbridge.com/french/our_business/nickel/operations/raglan.htm

- Xu, S., C. Yu et Y. Hiroshiro (2010). Migration behavior of Fe, Cu, Zn, and mo in alkaline tailings from lanjiagou porphyry molybdenum deposits, Northeast China. *Memoirs of the Faculty of Engineering, Kyushu University* 70(2): 19-31.
- Yanful, E. K., P. H. Simms et S. C. Payant (1999). Soil covers for controlling acid generation in mine tailings: A laboratory evaluation of the physics and geochemistry. *Water, Air, and Soil Pollution* 114(3-4): 347-375.
- Zagury, G., S. M. Colombano, K. S. Narasiah et G. Ballivy (1997). Stabilisation de résidus acides miniers par des résidus alcalins d'usines de pâtes et papiers. *Environmental Technology* 18: 959-973.
- Zhan, G. S., M. Aubertin, A. Mayer, K. Burke et J. McMullen (2001). Capillary cover design for leach pad closure. *SME Transaction* 310: 104-110.

ANNEXE A – Caractérisation

A.1 Rapports de forme pour 50 particules de chaque type de stérile des colonnes



A.2 Différences entre les teneurs en éléments chimiques des colonnes et des mini-cellules d'altération (%)

Éléments	Péridotite mine 3	Péridotite Kikialik	Olivine-pyroxénite mine 3	Olivine-pyroxénite mine 2	Gabbro mine 2	Argilite mine 3	Volcanique
Al	-0,03	0,09	0,15	-0,33	0,27	-0,23	0
Ca	0,22	-0,108	1,611	-0,42	0,25	0,158	1,64
Co	0,003	0,004	-0,004	0,004	0	0,001	0,001
Cr	0,064	0,023	-0,008	-0,019	0,01	0,013	0,011
Cu	0,033	0,031	-0,016	0,055	0,007	0,006	0,012
Fe	1,07	0,78	-0,87	1,29	0,77	0,31	0,49
Mg	-0,5	-0,2	-0,8	0,3	0,16	0,04	-0,1
Mn	0,011	0,016	-0,003	-0,006	0,018	0,018	0,022
Ni	0,129	0,059	-0,09	0,126	0,007	0,014	0,004
S	0,238	0,05	-0,27	0,363	0,41	0,012	0,107
Ti	-0,002	0,007	0,002	-0,011	0,015	0,037	-0,004
Zn	0,041	0,036	0,015	0,031	0,187	0,003	0,03

A.3 Résultats des essais à la microsonde électronique

Analyses de minéraux de pyrite et de pyrrhotite

Analyse Quantitative CAMECA
 Laboratoire de Microanalyse - Université Laval
 Label : asuUQAT
 Mon Oct 25 13:28:42 2010
 Normal Analysis : miscellaneo.
 Pourcentage poids élément

Limites de détection (%)

S	0,028
Fe	0,109
Cu	0,192
Co	0,037
Ni	0,072
As	0,042

Teneurs en éléments dans la pyrite (Py) et la pyrrhotite (Po) (%)

Minéral	S	Fe	Cu	Co	Ni	As	Total	Sulfure
SP1 C1 1	37,911	55,628	0,122	0,012	1,068	0,000	94,741	Po
SP1 C1 3	38,503	57,451	0,353	0,026	1,082	0,028	97,443	Po
SP1 C1 4	37,930	56,210	0,185	0,016	1,264	0,000	95,605	Po
SP1 C2 5	51,257	45,240	0,117	0,089	0,000	0,013	96,716	Py
SP1 C4 8	38,154	57,636	0,437	0,000	0,847	0,000	97,074	Po
SP1 C6 11	38,466	57,824	0,360	0,000	0,477	0,000	97,127	Po
SP1 C7 12	34,934	53,604	0,300	0,000	0,384	0,000	89,222	Po
SP1 C7 13	39,372	59,153	0,454	0,000	0,480	0,028	99,487	Po
SP1 C9 14	38,348	58,157	0,199	0,001	0,465	0,000	97,170	Po
SP1 C10 15	38,819	58,225	0,744	0,000	0,767	0,015	98,570	Po
SP2 C2 18	48,788	42,280	6,398	0,233	0,012	0,069	97,780	Py
SP2 C3 19	53,130	46,677	0,135	0,036	0,000	0,044	100,022	Py
SP2 C4 20	53,144	47,576	0,035	0,000	0,000	0,041	100,796	Py
SP2 C5 21	52,568	46,925	0,000	0,031	0,000	0,372	99,896	Py
SP2 C6 22	53,208	46,980	0,057	0,006	0,007	0,009	100,267	Py
SP2 C9 25	52,918	46,978	0,128	0,011	0,003	0,032	100,070	Py
SP2 C13 27	47,880	45,537	0,216	0,000	0,575	0,000	94,208	Py
SP2 C13 28	52,275	46,598	0,021	0,000	0,914	0,000	99,808	Py
SP2 C13 29	34,543	46,880	0,024	0,012	1,234	0,000	82,693	Po
SP2 C14 30	52,960	48,519	0,167	0,004	0,000	0,000	101,650	Py
SP3 C1 31	39,323	59,497	0,262	0,000	0,676	0,000	99,758	Po
SP3 C1 32	39,169	58,791	0,692	0,018	0,676	0,027	99,373	Po
SP3 C2 33	39,125	59,367	0,217	0,010	0,947	0,006	99,672	Po
SP3 C2 35	39,006	58,712	0,576	0,012	0,799	0,027	99,132	Po
SP3 C3 36	39,239	59,242	0,171	0,000	0,372	0,013	99,037	Po
SP3 C3 39	39,110	58,217	0,178	0,000	0,559	0,012	98,076	Po
SP3 C4 40	27,892	44,101	0,105	0,000	0,506	0,000	72,604	Po
SP3 C4 41	39,023	58,813	0,378	0,000	0,426	0,001	98,641	Po
SP3 C5 42	39,156	59,105	0,489	0,000	0,405	0,016	99,171	Po
SP3 C6 43	38,774	59,026	0,342	0,000	0,408	0,000	98,550	Po
SP3 C7 45	38,808	59,100	0,343	0,000	0,297	0,011	98,559	Po

Teneurs en éléments dans la pyrite (Py) et la pyrrhotite (Po) (%) (suite)

Minéral	S	Fe	Cu	Co	Ni	As	Total	Sulfure
SP3 C9 46	39,177	59,512	0,412	0,000	0,055	0,012	99,168	Po
SP4 C1 48	38,368	63,483	0,000	0,000	0,561	0,032	102,444	Po
SP4 C1 49	38,572	64,062	0,063	0,000	0,602	0,012	103,311	Po
SP4 C2 50	38,631	64,776	0,279	0,009	0,300	0,014	104,009	Po
SP4 C2 51	37,799	61,276	0,146	0,000	3,215	0,000	102,436	Po
SP4 C2 53	52,470	51,334	0,000	0,000	0,021	0,006	103,831	Py
SP4 C3 54	51,908	51,419	0,000	0,046	0,000	0,031	103,404	Py
SP4 C4 57	38,520	64,293	0,185	0,000	0,400	0,012	103,410	Po
SP4 C4 58	38,193	63,921	0,310	0,000	0,229	0,000	102,653	Po
SP4 C7 61	38,446	63,659	0,283	0,000	0,241	0,003	102,632	Po
SP4 C10 63	37,846	64,042	0,216	0,000	0,436	0,002	102,542	Po
SP4 C12 64	38,298	63,277	0,202	0,000	0,620	0,037	102,434	Po
SP4 C13 65	38,312	63,379	0,147	0,000	0,584	0,022	102,444	Po
SP5 C2 67	38,911	63,727	0,094	0,091	0,758	0,047	103,628	Po
SP5 C3 68	52,535	51,496	0,000	0,029	0,000	0,074	104,134	Py
SP5 C3 70	38,200	61,219	0,460	0,003	2,064	0,000	101,946	Po
SP5 C4 71	53,326	51,353	0,064	0,109	0,000	0,008	104,860	Py
SP5 C5 72	52,345	51,801	0,000	0,032	0,018	0,015	104,211	Py
SP5 C6 75	38,971	63,528	0,307	0,000	0,576	0,000	103,382	Po
SP5 C7 76	38,249	65,056	0,255	0,008	0,000	0,000	103,568	Po
SP5 C7 77	52,925	51,339	0,000	0,000	0,023	0,037	104,324	Py
SP5 C9 78	52,509	51,922	0,071	0,000	0,000	0,022	104,524	Py
SP5 C10 80	52,231	49,642	0,032	0,022	0,000	0,043	101,970	Py
SP6 C1 81	39,001	58,155	0,207	0,000	0,310	0,000	97,673	Py
SP6 C2 82	52,537	46,590	0,000	0,020	0,036	0,032	99,215	Py
SP6C6 86(petit)	37,859	37,350	0,131	0,122	0,018	0,000	75,480	Py
SP6 C7 87	38,659	58,649	0,018	0,000	0,363	0,029	97,718	Po
SP6 C7 88	39,160	59,194	0,168	0,013	0,334	0,000	98,869	Po
SP6 C9 90	53,032	46,532	0,000	0,037	0,020	0,069	99,690	Py
SP6 C12 91	38,454	53,075	0,084	0,000	0,630	0,032	92,275	Po
SP6 C15 93	51,184	39,643	0,156	0,139	0,000	0,023	91,147	Py
SP7 C1 94	51,466	49,647	0,089	0,000	0,030	0,027	101,259	Py
SP7 C2 96	38,009	60,446	0,168	0,016	1,145	0,013	99,797	Po
SP7 C3 98	38,333	60,233	0,021	0,000	0,657	0,000	99,244	Po
SP7 C3 99	50,469	46,315	1,210	0,592	1,212	0,000	99,798	Py
SP7 C4 100	37,878	60,400	0,080	0,000	0,803	0,000	99,161	Po
SP7 C6 101	37,672	60,481	0,164	0,000	1,342	0,010	99,669	Po
SP7 C8 102	37,788	60,837	0,080	0,000	1,112	0,000	99,817	Po
SP7 C9 105	45,675	41,002	0,057	0,000	0,014	0,000	86,748	Py
SP7 C10 106	49,486	45,859	0,000	0,013	3,165	0,010	98,533	Py
SP7 C11 108	37,630	60,382	0,279	0,009	1,463	0,006	99,769	Po

Analyse de minéraux de gangue

Limites de détection (%)

SiO ₂	0,030	MnO	0,035
TiO ₂	0,033	FeO	0,110
Al ₂ O ₃	0,022	NiO	0,048
Cr ₂ O ₃	0,111	Na ₂ O	0,022
MgO	0,029	K ₂ O	0,011
CaO	0,022		

Teneurs en éléments chimiques dans les minéraux de gangue (%)

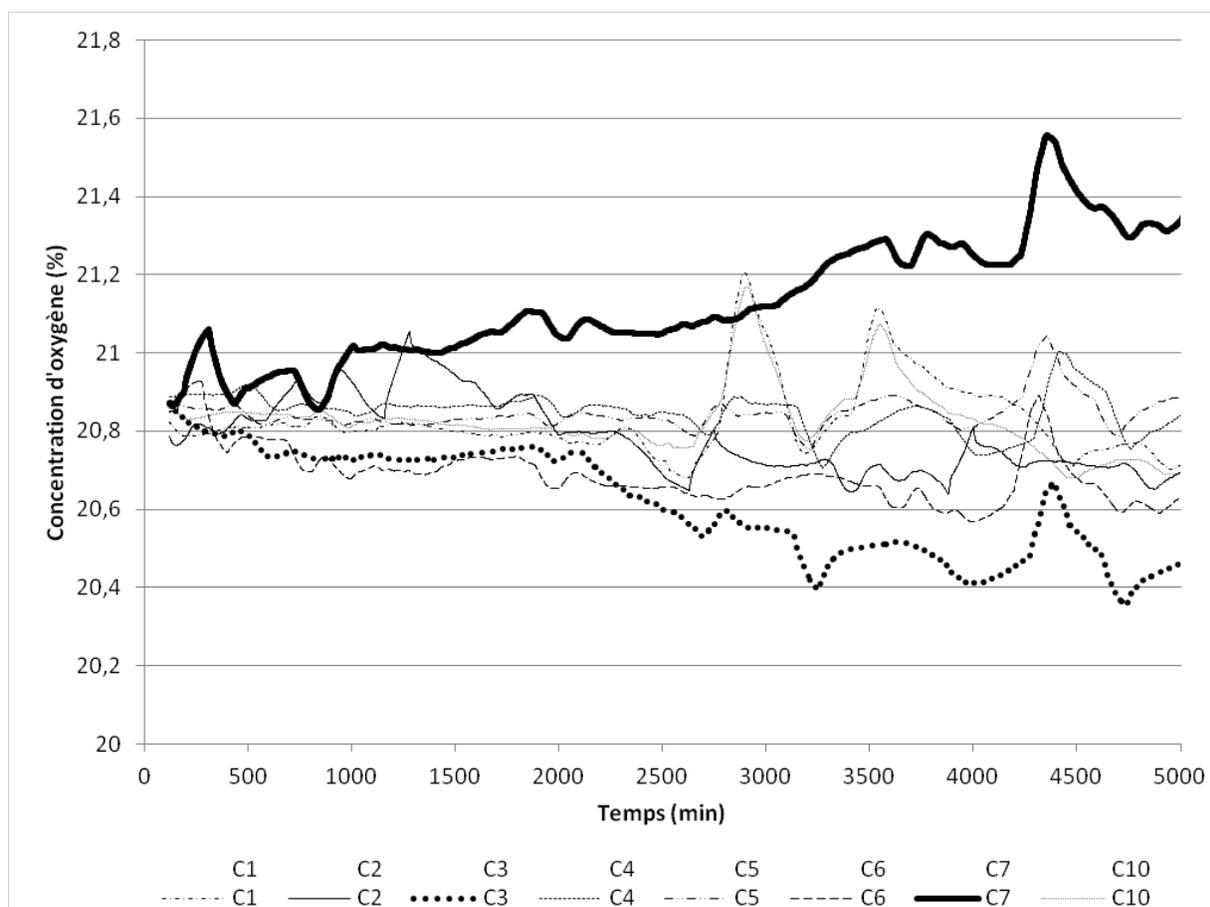
Minéral	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Cr ₂ O ₃	MgO	CaO	MnO	FeO	NiO	Na ₂ O	Total
SP1 C1 2	41,480	0,021	2,337	0,431	33,605	0,034	0,096	8,840	0,157	0,036	87,056
SP1 C3 6	41,074	0,000	2,702	0,065	37,285	0,002	0,053	7,397	0,073	0,016	88,676
SP1 C3 7	50,938	0,000	0,889	0,116	23,646	16,774	0,092	5,392	0,149	0,033	98,049
SP1 C5 9	42,493	0,128	3,345	0,219	36,576	0,087	0,106	6,745	0,070	0,011	89,800
SP1 C5 10	35,996	0,077	10,995	0,033	32,250	0,075	0,021	6,030	0,146	0,066	86,252
SP2 C1 16	0,069	0,402	13,998	51,657	8,684	0,000	0,000	25,511	0,036	0,019	100,376
SP2 C1 17	48,657	0,000	1,654	0,300	29,185	5,600	0,074	6,059	0,076	0,012	91,634
SP2 C9 23	41,253	0,000	4,045	0,663	32,012	0,149	0,110	10,258	0,468	0,015	88,980
SP2 C9 24	0,085	0,397	13,641	51,293	9,853	0,001	0,000	24,272	0,103	0,010	99,655
SP2 C10 26	0,077	0,389	13,317	51,951	10,112	0,012	0,000	24,313	0,100	0,027	100,299
SP3 C2 34	43,281	0,009	1,111	0,164	35,062	0,029	0,144	10,367	0,030	0,029	90,226
SP3 C3 37	47,391	2,383	9,068	1,038	17,837	11,614	0,087	6,514	0,099	2,888	99,113
SP3 C3 38	2,164	0,000	0,318	0,007	1,912	57,857	0,180	0,866	0,000	0,036	63,371
SP3 C6 44	42,510	0,002	1,537	0,218	33,544	0,003	0,130	11,702	0,075	0,005	89,726
SP3 C9 47	0,056	0,000	0,003	0,000	0,000	53,233	0,026	0,286	0,000	0,028	53,647
SP4 C2 52	41,140	0,004	1,972	0,110	35,083	0,004	0,167	10,101	0,071	0,000	88,660
SP4 C3 55	43,740	0,002	1,266	0,057	40,236	0,007	0,068	2,105	0,042	0,010	87,547
SP4 C3 56	0,132	0,000	0,011	0,000	0,709	60,810	0,423	0,512	0,000	0,031	62,646
SP4 C6 59	55,519	0,000	0,006	0,003	18,199	26,274	0,034	1,004	0,000	0,012	101,051
SP4 C6 60	42,357	0,025	2,807	0,026	36,619	0,380	0,110	6,142	0,023	0,022	88,522
SP4 C7 62	42,142	0,000	1,665	0,000	34,410	0,005	0,152	10,949	0,075	0,019	89,418
SP5 C1 66	55,309	0,026	1,534	0,165	16,594	13,118	0,225	12,767	0,006	0,132	99,916
SP5 C3 69	44,189	0,118	24,403	0,024	0,000	27,035	0,037	0,350	0,011	0,024	96,216
SP5 C5 73	39,000	0,010	29,459	0,000	0,020	24,334	0,109	6,149	0,000	0,060	99,186
SP5 C5 74	68,606	0,000	20,886	0,024	0,004	0,911	0,003	0,106	0,001	11,331	101,957
SP5 C9 79	67,928	0,000	21,828	0,020	0,016	1,225	0,000	0,196	0,001	11,397	102,679
SP6 C3 83	69,310	0,000	20,990	0,057	0,000	0,189	0,000	0,137	0,008	11,052	101,783
SP6 C4 84	68,408	0,000	21,133	0,000	0,016	0,681	0,014	0,215	0,000	11,486	102,037
SP6 C5 85	68,506	0,006	20,981	0,000	0,013	0,246	0,000	0,162	0,001	11,682	101,729

Teneurs en éléments chimiques dans les minéraux de gangue (%) (suite)

Minéral	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Cr ₂ O ₃	MgO	CaO	MnO	FeO	NiO	Na ₂ O	Total
SP6 C8 89	69,159	0,000	20,044	0,000	0,001	0,083	0,030	0,156	0,019	12,040	101,597
SP6 C13 92	69,130	0,000	21,043	0,034	0,009	0,244	0,037	0,227	0,000	10,795	101,580
SP7 C1 95	46,204	0,860	13,943	0,020	8,527	17,567	0,124	8,597	0,044	0,143	96,060
SP7 C1 97	67,115	0,000	19,591	0,034	0,009	0,512	0,000	0,324	0,016	11,622	99,284
SP7 C8 103	65,633	0,000	20,228	0,000	0,012	1,435	0,000	0,196	0,000	11,095	98,659
SP7 C8 104	37,777	0,089	27,123	0,063	0,000	23,268	0,032	6,791	0,005	0,020	95,169
SP7 C10 107	50,530	1,004	3,749	0,201	15,876	11,759	0,188	11,424	0,116	0,232	95,180

ANNEXE B – Essais en colonnes

B.1 Résultats des essais de consommation d'oxygène



Conductivités hydrauliques à saturation évaluées à l'aide du modèle de Kozeny-Carman modifié

1) Matériaux des colonnes

Colonnes	Conductivité hydraulique à saturation (m/s)
C1	0,11
C2	0,21
C3	0,22
C4	0,10
C5	0,12
C6	0,10
C7	0,13
C8	0,18
C9	0,12
C10	0,03

1) Matériaux des mini-cellules d'altération

Mini-cellule	Conductivité hydraulique à saturation (m/s)
Péridotite mine 3	2,65E-05
Péridotite Kikialik	5,18E-05
Olivine-pyroxénite mine 3	3,58E-06
Olivine-pyroxénite mine 2	1,10E-06
Gabbro mine 2	3,06E-06
Argilite Mine 3	3,38E-07
Volcanique	3,92E-06

ANNEXE C – Essais en mini-cellules d’altération

Résultats des analyses post-démantèlement

Analyse chimique ICP-AES

Éléments	Péridotite mine 3	Péridotite mine Kikialik	Olivine-pyroxénite mine 3	Olivine-pyroxénite mine 2	Gabbro mine 2	Argilite Mine 3	Volcanique
Al	1,89	1,54	1,51	7,72	1,47	6,89	5,40
Ca	1,67	0,823	2,14	0,606	2,26	6,83	9,04
Co	0,014	0,013	0,013	0,003	0,013	0,005	0,007
Cr	0,171	0,232	0,219	0,031	0,162	0,069	0,143
Cu	0,050	0,038	0,066	0,008	0,086	0,030	0,021
Fe	8,75	8,00	9,10	4,11	7,63	7,88	8,99
Mg	19,5	18,6	15,8	1,21	13,3	4,33	6,64
Mn	0,094	0,106	0,092	0,042	0,088	0,112	0,151
Ni	0,312	0,240	0,238	0,046	0,344	0,037	0,057
S	0,432	0,093	0,965	0,010	0,675	0,332	0,091
Ti	0,140	0,148	0,130	0,393	0,114	0,371	0,446
Zn	0,037	0,028	0,013	0,004	0,020	0,144	0,020

Analyse DRX

Minéral	Péridotite mine 3	Péridotite mine Kikialik	Olivine-pyroxénite mine 3	Olivine-pyroxénite mine 2	Gabbro mine 2	Argilite Mine 3	Volcanique
Quartz SiO ₂	1,9	1,35			4,52	37,44	7
Magnétite Fe ₃ O ₄	16,38	7,01	8,7	19,82	0,22	0,05	0,37
Hématite	2,17	1,09					
Albite NaAlSi ₃ O ₈					22,25	22,62	16,48
Hornblende Ca ₂ [Mg ₄ (Al,Fe)]Si ₇ AlO ₂₂ (OH) ₂	4,89	4,92	4,1	3,62	34,2	0,66	34,46
Augite (Ca,Na)(Mg,Fe,Al,Ti)(Si,Al) ₂ O ₆	3,01	1,41		11,75			
Pigeonite (Mg, Fe, Ca)(Mg,Fe)Si ₂ O ₆							10,57
Épidote Ca ₂ (Fe,Al)Al ₂ (SiO ₄)(Si ₂ O ₇)O(OH)					19,03		6,62
Lizardite (serpentine) Mg ₃ Si ₂ O ₅ (OH) ₄	22,93	27,13	8,96	21,78			
Talc Mg ₃ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂			42,12		1,07		
Muscovite KAl ₂ (Si ₃ Al)O ₁₀ (OH,F) ₂					7,59	31,78	1,76
Chlorite (Mg,Al,Fe) ₆ (Si,Al) ₄ O ₁₀ (OH) ₈	46,44	56,78	33,92	39,11	6,96	7,39	18,95
Pyrite FeS ₂	0,44	0,31	0	0,52	0,41	0,07	0,33
Pentlandite (Fe,Ni) ₉ S ₈	1,85	0	2,21	3,4	0,79		
Biotite					2,17		