

Titre: Stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans des fosses à ciel ouvert
Title:

Auteur: Laila Barfoud
Author:

Date: 2023

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Barfoud, L. (2023). Stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans des fosses à ciel ouvert [Thèse de doctorat, Polytechnique Montréal]. PolyPublie.
Citation: <https://publications.polymtl.ca/57066/>

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

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/57066/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: Gérald J. Zagury, & Benoît Plante
Advisors:

Programme: Génie minéral
Program:

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

affiliée à l'Université de Montréal

Stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans des fosses à ciel ouvert

LAILA BARFOUD

Département des génies civil, géologique et des mines

Thèse présentée en vue de l'obtention du diplôme de *Philosophiæ Doctor*

Génie minéral

Décembre 2023

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

affiliée à l'Université de Montréal

Cette thèse intitulée :

Stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans des fosses à ciel ouvert

présentée par **Laila BARFOUD**

en vue de l'obtention du diplôme de *Philosophiæ Doctor*

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

Benoît COURCELLES, président

Gérald ZAGURY, membre et directeur de recherche

Benoît PLANTE, membre et codirecteur de recherche

Mostafa BENZAAZOUA, membre

Josée DUCHESNE, membre externe

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier monsieur Thomas Pabst, de m'avoir offert l'opportunité de poursuivre un doctorat sous sa supervision, pour sa confiance, pour le temps qu'il m'a consacré sans oublier son implication et sa disponibilité tout au long du projet.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude et mes sincères remerciements à mon directeur de recherche, monsieur Gérald Zagury pour son soutien inestimable, son expertise et sa confiance en mes capacités qui ont été essentiels pour mener à bien ce projet.

J'aimerais aussi exprimer toute ma reconnaissance et témoigner toute ma gratitude à mon codirecteur, monsieur Benoît Plante pour ses directives précieuses, ses conseils judicieux, sa collaboration active et son rôle significatif dans mon travail. Je vous remercie monsieur Benoît de m'avoir encadré, orienté, aidé et conseillé.

C'est grâce à votre encadrement attentionné, vos conseils éclairés et votre expertise que j'ai pu progresser et accomplir des réalisations significatives au cours de ces années. Votre présence, votre disponibilité et votre volonté de partager vos connaissances ont été d'une valeur inestimable pour moi.

Je suis aussi reconnaissante du soutien financier offert durant la poursuite de mes études de la part de l'Institut de Recherche en Mines et Environnement (IRME) ainsi que tous ses partenaires industriels.

Je tiens à remercier le personnel du laboratoire de l'IRME, spécialement Noura El Harrak, pour son support autant technique que moral, Manon Leduc et Jérôme Leroy pour l'assistance technique tout au long de ce projet. Leur expérience, leur patience et leur générosité étaient d'un grand apport pour mon projet. Un grand merci au technicien du laboratoire d'hydraulique Étienne. Je remercie Karim Essayed, Moise Rousseau, Roseline Levesque, Dominique, Chafana Hamed SAKO, Dachri Kawtar, Belghiti Mohammed et Leticia Ayang pour leurs soutiens et leurs encouragements.

Je remercie fortement les membres de ma famille pour leur patience, leur attention, leur soutien et leur encouragement tout au long de ce projet.

RÉSUMÉ

L'un des principaux défis liés à l'industrie minière est la gestion et l'élimination sécuritaire des résidus miniers réactifs qui contiennent des sulfures et peuvent potentiellement générer le drainage minier acide (DMA). Généralement entreposés en surface, les résidus miniers et les roches stériles soulèvent de nombreux défis opérationnels et techniques, en particulier en lien avec leur stabilité physique et géochimique. Le remblayage des fosses apparaît comme une alternative intéressante et prometteuse. Les avantages anticipés d'une telle approche sont nombreux. Le dépôt de résidus réactifs dans des fosses à ciel ouvert pourrait contribuer à mieux contrôler les échanges avec l'atmosphère et le milieu environnant, limitant ainsi les réactions d'oxydation et les risques de contamination. Toutefois, les flux d'oxygène dissous dans les eaux souterraines peuvent contribuer à l'oxydation des déchets miniers réactifs déposés dans les fosses.

Ce projet de recherche vise à comprendre, à évaluer et à quantifier l'effet des flux d'oxygène dissous en milieu saturé et non saturé sur la restauration des fosses remblayées. Il comporte 3 volets qui portent chacun sur un aspect particulier.

Le premier volet, étudie l'effet de l'oxygène dissous sur l'oxydation des résidus miniers en milieu saturé et non saturé (situés au-dessus du niveau de la nappe) à pH neutre. Dans ce sens des tests cinétiques ont été effectués en laboratoire. Les échantillons testés proviennent de deux sites miniers situés au Québec (Canada) et comparés à un spécimen de résidus synthétiques faits de pyrite pure et de sable. L'eau d'entrée avec différentes concentrations d'oxygène a été testée pour déterminer l'effet de la concentration d'oxygène dissous sur l'oxydation et la libération des contaminants. Les tests ont été effectués pendant environ 2 mois et la qualité de l'eau (y compris le pH, l'Eh, le sulfate et les concentrations de métaux) a été surveillée quotidiennement. Les résultats ont montré une bonne corrélation entre les concentrations de sulfate et des métaux, les concentrations d'oxygène dissous dans l'eau et la teneur en pyrite. Il est également noté que la qualité de l'eau dans les milieux saturés était initialement meilleure que dans des conditions insaturées.

Les résultats ont également été appliqués au cas du remblayage d'une fosse et des recommandations pratiques sont proposées afin de limiter le taux de génération de DMA de résidus réactifs enoyés dans une fosse en milieu saturé à pH neutre et à différentes concentrations d'oxygène dissous.

Le deuxième volet, étudie l'effet du fer ferrique sur l'oxydation des mêmes résidus miniers en milieu saturé à pH acide (évaluation du rôle de l'oxydation indirecte). Une solution acide avec différentes concentrations de fer ferrique (Fe^{3+}) a été introduite dans les cellules afin de provoquer l'oxydation indirecte des résidus. On présente dans ce chapitre, les principaux résultats des essais réalisés et une extrapolation de ces résultats à plus grande échelle afin d'évaluer l'ampleur et l'influence des eaux acides contaminées par différentes concentrations du fer ferrique sur la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans une fosse. Les résultats obtenus à partir d'essais cinétiques dans un milieu saturé à pH acide indiquent que la quantité de fer ferreux et de métaux libérés pendant l'oxydation dans ces conditions dépend de la quantité de l'agent oxydant (fer ferrique (mg/L) : 1500-1000-500-200).

Ces résultats ont permis de déterminer l'influence de l'état de saturation du milieu (saturé ou insaturé) ainsi que l'effet du pH (neutre ou acide) et de la composition minéralogique (teneur en pyrite) sur la réactivité des résidus. Une évaluation de l'activité des bactéries ferrooxydantes acidophiles, sulfooxydantes neutrophiles et sulfooxydantes acidophiles a également été réalisée avant et après les essais cinétiques afin d'évaluer leur rôle dans la génération de DMA.

Le troisième volet, présente l'étude expérimentale et numérique basée sur les essais cinétiques réalisés pour les mêmes résidus miniers afin de comparer leurs comportements géochimiques avec la codisposition du sable comme matériaux inerte. La partie expérimentale consiste à suivre l'évolution des différents paramètres géochimiques ainsi que la consommation d'oxygène à différents gradients hydrauliques au cours des essais cinétiques avec des inclusions dans des conditions saturées. Les essais en colonne de laboratoire ont été simulés numériquement à l'aide du modèle de transport réactif et d'écoulement Min3P (section 3.5). Une fois calibrées, les simulations numériques ont été extrapolées afin d'étudier l'effet de la largeur d'inclusion, du gradient hydraulique et de la composition minéralogique des résidus sur la génération de DMA. Les résultats obtenus à partir d'essais cinétiques indiquent que plus la largeur d'inclusion est importante, plus l'oxygène dissous dans le flux d'eau qui traverse la fosse par le chemin préférentiel (inclusion perméable) est protégé pendant les premiers mètres. Cependant, plus le flux d'eau avance, plus l'oxygène est consommé. Plus les résidus remblayés dans la fosse en présence d'inclusions sont réactifs, plus la consommation d'oxygène est rapide pendant les premiers mètres de la fosse remblayée. Plus le gradient hydraulique appliqué est petit, plus l'oxygène qui pénètre dans la fosse a le temps de diffuser et d'être consommé, et les concentrations d'oxygène dissous

dans l'eau sont rapidement épuisées. Cela signifie que l'oxygène se diffuse dans le système et que l'oxygène dissous à travers l'inclusion pourrait également contribuer à l'oxydation des résidus réactifs déposés dans les fosses.

ABSTRACT

One of the main challenges in the mining industry is the management and safe disposal of reactive tailings that contain sulphides and can potentially generate acid mine drainage (AMD). Generally stored on the surface, mine tailings and waste rock raise many operational and technical challenges, particularly related to their physical and geochemical stability. The backfilling of pits appears to be an interesting and promising alternative. The anticipated benefits of such an approach are numerous. The deposit of reactive tailings in open pits could help to better control exchanges with the atmosphere and the surrounding environment, thus limiting oxidation reactions and the risks of contamination. However, dissolved oxygen in groundwater can contribute to the oxidation of reactive mine wastes deposited in pits.

This research project aims to understand, evaluate and quantify the effect of dissolved oxygen fluxes in saturated and unsaturated environments on the restoration of backfilled pits. It has three sections, each dealing with a particular aspect.

The first part studies the effect of dissolved oxygen on the oxidation of mine tailings in saturated and unsaturated medium (located above groundwater level) at neutral pH. In this sense, kinetic tests have been carried out in the laboratory. The samples tested come from two mining sites located in Quebec (Canada) and compared to a synthetic tailings specimen made of pure pyrite and sand. Input water with different oxygen concentrations was tested to determine the effect of dissolved oxygen concentration on oxidation and contaminant release. The tests were carried out for approximately 2 months and the water quality (including pH, Eh, sulphate and metal concentrations) was monitored daily. The results showed a good correlation between sulphate and metal concentrations, dissolved oxygen concentrations in water and pyrite content. It is also noted that water quality in saturated media was initially better than in unsaturated conditions.

The results have also been applied to the case of backfilling a pit and practical recommendations are proposed in order to limit the rate of generation of AMD from reactive tailings flooded in a pit in a saturated medium at neutral pH and at different concentrations of dissolved oxygen.

The second part studies the effect of ferric iron on the oxidation of the same tailings in a saturated medium at acidic pH (assessment of the role of indirect oxidation). An acidic solution with different concentrations of ferric iron (Fe^{3+}) was introduced into the cells in order to cause the indirect oxidation of the tailings. This chapter presents the main results of the tests carried out and an

extrapolation of these results on a larger scale in order to assess the extent and influence of acidic waters contaminated by different concentrations of ferric iron on the geochemical stability of mining waste deposited in a pit. The results obtained from kinetic tests in a saturated medium at acidic pH indicate that the amount of ferrous iron and metals released during oxidation under these conditions depends on the amount of the oxidizing agent (ferric iron (mg/L): 1500-1000-500-200).

These results made it possible to determine the influence of the state of saturation of the medium (saturated or unsaturated) as well as the effect of the pH (neutral or acid) and the mineralogical composition (pyrite content) on the reactivity of the tailings. Without forgetting the study of the biogeochemistry (the microbial populations) of the DMA which allowed us to understand several phenomena due to the impact it has on the evaluation and understanding of the oxidation process of the mining tailings. An evaluation of the activity of acidophilic ferrooxidans, neutrophilic sulphooxidants and acidophilic sulphooxidants bacteria was also carried out before and after the kinetic tests in order to assess their role in the generation of DMA.

The third part presents the experimental and numerical study based on the kinetic tests carried out for the same mining tailings in order to compare their geochemical behavior with the codisposition of sand as inert materials. The experimental part consists in monitoring the evolution of different geochemical parameters as well as oxygen consumption at different hydraulic gradients during kinetic tests with inclusions under saturated conditions. Laboratory column tests were numerically simulated using the reactive transport and flow model Min3P (section 3.5). Once calibrated, the numerical simulations were extrapolated in order to study the effect of the inclusion width, the hydraulic gradient and the mineralogical composition of the tailings on the generation of AMD. The results obtained from kinetic tests indicate that oxygen diffuses into the system and dissolved oxygen through the inclusion could also contribute to the oxidation of reactive tailings deposited in the pits.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	III
RÉSUMÉ.....	IV
ABSTRACT	VII
TABLE DES MATIÈRES	IX
LISTE DES TABLEAUX.....	XIV
LISTE DES FIGURES.....	XVII
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	XXIV
LISTE DES ANNEXES.....	XXVIII
CHAPITRE 1 INTRODUCTION.....	1
1.1 Contexte de l'étude	1
1.2 Problématique générale	3
1.3 Hypothèse de recherche	5
1.4 Objectif général de la thèse	5
1.5 Objectifs spécifiques	5
1.6 Contributions originales	5
1.7 Organisation de la thèse	6
CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE	9
2.1. Caractéristiques des rejets miniers	9
2.1.1 Caractéristiques des rejets de concentrateur ou résidus miniers	9
2.1.2 Stériles miniers	10
2.2 Géochimie du drainage minier	11
2.2.1 Oxydation des minéraux sulfureux	11
2.2.2 Étapes de la formation du DMA	11

2.2.3 Mécanismes microbiens	13
2.2.4 Neutralisation	14
2.2.5 Produits d'oxydation	15
2.2.6 Drainage neutre contaminé.....	17
2.3 Prédiction des cinétiques du drainage minier acide	17
2.3.1 Essais statiques	18
2.3.2 Essais cinétiques.....	19
2.3.3 Simulations numériques de transport réactif.....	22
Logiciel Min3P.....	24
2.4 Remblayage des fosses avec les rejets miniers	26
2.4.1 Avantages du remblayage des fosses	27
2.4.2 Limitations et contraintes du remblayage des fosses	28
2.4.3 Concept et approches de remblayage des fosses avec des rejets miniers.....	30
2.5 Fermeture et restauration des fosses.....	33
2.5.1. Couverture en eau.....	33
2.5.2 Couvertures multicouches	35
2.5.3 Nappe surélevée avec couverture monocouche	36
2.5.4 Approches de gestion alternative : Inclusions drainantes	39
2.5.5 Désulfuration des rejets.....	40
2.6. Défis liés au diverses méthodes d'entreposage dans les fosses	41
2.6.1 Remblayage en conditions sèches	41
2.6.2 Remblayage en conditions saturées.....	43
CHAPITRE 3 METHODOLOGIE	46
3.1 Résidus miniers étudiés.....	46

3.1.1 Résidus minier Westwood.....	46
3.1.2 Résidus minier Laronde	47
3.1.3 Résidus synthétiques	47
3.1.4 Échantillonnage et préparation des échantillons	47
3.2 Caractérisation des résidus	48
3.2.1 Propriétés physiques.....	48
3.2.2 Propriétés chimiques	49
3.2.3 Propriétés minéralogiques	53
3.2.4 Propriétés microbiologiques.....	57
3.3 Essais cinétiques.....	60
3.3.1 Essais cinétiques en milieu saturé à pH neutre	60
3.3.2 Essais cinétiques en milieu saturé à pH acide	66
3.4 Essais de codiposition	70
3.5 Modélisation hydrogéochimique	73
3.5.1 Construction du modèle numérique	73
3.5.2 Propriétés simulées des matériaux	74
3.5.3 Conditions frontières	77
3.5.4 Calibration du système	78
CHAPITRE 4 OXYDATION DIRECTE	80
4.1 Comparaison du comportement géochimique des résidus réactifs en conditions saturées et non saturées	80
4.2 Effet de la concentration d'oxygène dissous sur le comportement géochimique des résidus réactifs	85
4.3 Résultats expérimentaux versus calcul stœchiométrique : prédiction vs mesure.....	87
4.4 Caractérisation des résidus après démontage des colonnes	91

4.5 Distribution granulométrique et degré d'accessibilité de la pyrite	94
4.6 Implications pratiques pour le contrôle de la génération de DMA dans les fosses remblayées	98
CHAPITRE 5 OXYDATION INDIRECTE.....	103
5.1 Comportement géochimique des résidus en présence du fer ferrique en milieu acide	103
5.1.1 pH et potentiel d'oxydo-réduction (POR).....	104
5.1.2 Concentrations d'oxygène dissous	106
5.1.3 Fer et sulfates	108
5.1.4. Résultats expérimentaux versus calcul stœchiométrique	112
5.1.5 Calcium, magnésium et manganèse	114
5.1.6 Métaux et métalloïdes	116
5.2 Caractérisation des résidus après démontage des colonnes	119
5.3 Évaluation de l'activité des bactéries ferrooxydantes acidophiles	121
5.4 Évaluation de l'activité des bactéries sulfooxydantes acidophiles	125
5.5 Évaluation de l'activité des bactéries sulfooxydantes neutrophiles.....	128
5.6 Implications pratiques pour le contrôle de la génération de DMA dans les fosses remblayées	131
CHAPITRE 6 CODISPOSITION.....	135
6.1 Géochimie des essais cinétiques en présence d'inclusions de sable inerte	135
6.1.1 Variations du pH et du POR.....	135
6.1.2 Variations des sulfates et de la conductivité électrique.....	137
6.1.3 Variations de la concentration d'oxygène dissous	138
6.1.4 Variations de la concentration en métaux et métalloïdes.....	140
6.2 Calibration des résultats hydrogéologiques.....	143
6.3 Calibration géochimique des simulations numériques.....	144

6.4 Résultats de la calibration des simulations numériques	149
6.5 Synthèse des résultats des essais cinétiques à petite échelle	154
6.6 Extrapolation des résultats à grande échelle	155
6.6.1 Résultats des simulations du cas de base	157
6.6.2 Analyse paramétrique.....	160
6.7 Synthèse des résultats de l'extrapolation et de l'analyse paramétrique	164
CHAPITRE 7 SYNTHESE ET DISCUSSION	168
7.1 Rappel de la problématique.....	168
7.2 Stabilité géochimique des résidus miniers déposés dans des fosses à ciel ouvert	168
7.2.1. Comportement géochimique des résidus miniers réactifs dans des conditions saturées et non saturées	168
7.2.2. Effet de la concentration d'oxygène dissous sur la réaction d'oxydation directe des résidus miniers réactifs en milieu saturé	169
7.2.3. Évaluation du rôle de l'oxydation indirecte sur le comportement géochimique des mêmes résidus miniers en milieu saturé à pH acide.....	170
7.2.4. Effet de la codisposition des stériles et des résidus dans des fosses à ciel ouvert pour contrôler la génération de DMA : Étude expérimentale et numérique	171
CHAPITRE 8 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS	175
8.1 Conclusions	175
8.2 Principales recommandations.....	178
8.3 Autres recommandations.....	179
RÉFÉRENCES.....	180
ANNEXES	209

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1 Réactions d'oxydation par l'oxygène et par le fer ferrique pour les principaux minéraux sulfureux (Tiré de Bussière 2005 et adapté de Rimstidt et al., 1994).	12
Tableau 2.2 Liste de certains travaux qui ont utilisé le code MIN3P.	23
Tableau 2.3 Différents types de systèmes de recouvrements mis en place sur des fosses remblayées par des rejets miniers.	39
Tableau 3.1 Propriétés physiques des résidus miniers Laronde, Westwood et Synthétiques. Les valeurs moyennes et les plages mesurées sont indiquées. ND : Non déterminé.	49
Tableau 3.2 Composition élémentaire des résidus Laronde, Westwood et synthétique déterminée par analyse à la fournaise LECO et évaluation du potentiel d'acidification. Les valeurs moyennes et les plages mesurées sont indiquées. PA : Potentiel d'acidification ; PN : Potentiel de Neutralisation ; PNN (=PN-PA) : Potentiel Net de Neutralisation ; ND : Non déterminé.	50
Tableau 3.3 Composition chimique élémentaire des résidus Laronde, Westwood et synthétiques déterminée par ICP (la valeur moyenne et plage mesurée pour chaque élément). Les teneurs en éléments sont exprimées en mg/kg. Seule une sélection d'éléments pertinents pour cette étude est présentée.	51
Tableau 3.4 Caractérisation minéralogique des résidus Laronde, Westwood et synthétique déterminée par DRX. Les teneurs en minéraux sont données en % poids. Les valeurs moyennes et les plages mesurées sont indiquées. ND : Non détecté.	55
Tableau 3.5 Distribution des bactéries ferrooxydantes acidophiles, sulfooxydantes acidophiles et neutrophiles au temps initial W0-L0 (avant tests cinétiques) et au démontage de L1-L4 et W1-W4. (W1-L1 : essais cinétique en milieu saturé à pH neutre), (W4-L4 : essai cinétique en milieu saturé à pH acide). (+) indique la présence tandis que (-) indique que les micro-organismes n'ont pas été détectés.	59
Tableau 3.6 Caractéristiques des essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et synthétiques en milieu saturé et insaturé à pH neutre.	61

Tableau 3.7 Caractéristiques et durée des essais des résidus Laronde, Westwood et synthétiques en milieu saturé à différentes concentrations en oxygène dissous.	64
Tableau 3.8 Qualité chimique de la solution d'entrée (eau distillée) utilisée dans les essais cinétiques en milieu saturé à pH neutre pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétique.	65
Tableau 3.9 Caractéristiques des essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et synthétique en milieu saturé à pH acide.	68
Tableau 3.10 Qualité chimique des solutions d'entrée (fer ferrique) utilisées dans les essais cinétiques en milieu saturé à pH acide.	69
Tableau 3.11 Densités minérales et fractions volumiques des résidus miniers utilisés dans la simulation. Les fractions de volume minéral utilisées dans le modèle sont également présentées.	76
Tableau 3.12 Taux de réaction des minéraux et coefficients de réaction utilisés dans les simulations pour les résidus Laronde, Westwood et le Synthétique.	77
Tableau 3.13 Composition chimique des surnageants (cas initial) et de l'eau (E.D.M) utilisées dans les modélisations avec MIN3P.	78
Tableau 4.1 Teneurs en carbone et soufre en haut, au milieu et en bas des cellules, avant et après les essais cinétiques pour les résidus Laronde et Westwood en conditions saturées.	93
Tableau 4.2 Teneurs en soufre et en carbone (%S et %C respectivement), densité spécifique (Gs) et teneur en pyrite (Cp) pour les différentes fractions granulométriques des résidus Laronde et Westwood. Cp,1 : La teneur en pyrite estimée à partir de la teneur en soufre Cp,2 : La teneur en pyrite estimée à partir de de la densité spécifique de chaque fraction à l'aide de l'équation 8.	95
Tableau 4.3 Qualité chimique des effluents de la mine Owl Creek, Ontario depuis l'année 2000 jusqu'à l'année 2010. Limites réglementaires des effluents des mines d'environnement Canada.	102

Tableau 5.1 Concentrations moyennes de métaux dans les solutions durant les essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et le Synthétique (en mg/L) comparés aux limites de la directive 019 (en rouge en mg/L).	115
Tableau 6.1 Stœchiométries de réaction et constances d'équilibre ($\text{Log } K_i^m$) employées dans les simulations et tirées des bases de données de Min3P.	145
Tableau 6.2 Densités minérales et fractions volumiques des résidus miniers utilisés dans la simulation. Les fractions de volume minéral utilisées dans le modèle sont également présentées.	146
Tableau 6.3 Expression des taux de réaction des minéraux et coefficients des taux de réaction utilisés dans les simulations numériques pour les résidus Laronde et Westwood.	148
Tableau 6.4 Comparaison des taux de réaction effectifs ($k_k^{m,\text{eff}}$) en ($\text{mol L}_{\text{vrac}}^{-1} \text{s}^{-1}$) calibrés dans cette étude avec ceux rapportés dans la littérature.	149

LISTE DES FIGURES

Figure 2.1 Comparaison des deux mécanismes microbiologiques direct et indirect de l'oxydation des sulfures métalliques (Tiré Blowes et al.,2003).	14
Figure 2.2 Exemple de formation des phases secondaires (Tiré Carlito Baltazar et al., 2020).	16
Figure 2.3 Configuration d'un test en colonne avec les principales composantes (Hard Rock Mine Reclamation, 2021).	21
Figure 2.4 (a) Dépôt des résidus en fosse de la mine Westwood (IAMGOLD) et (b) Stériles (à droite) dans l'ancienne fosse de la mine Doyon. Les résidus sont directement évacués de la surface de la fosse.	29
Figure 2.5 Présentation d'une disposition des rejets avec conception d'un système de drainage (Tiré de MEND, 2015). Déviation latérale du drain qui permet d'acheminer les eaux d'infiltration des résidus dans le puit de collecte puis pompées vers l'extérieur.	31
Figure 2.6 Concept d'une enveloppe perméable (a) Sans enveloppe perméable, l'eau souterraine circule à travers les rejets remblayés et contribue à disperser des contaminants dans l'environnement (b) avec enveloppe perméable, l'eau souterraine est déviée autour des rejets (adapté; Rousseau, 2019).	32
Figure 2.7 La couverture d'eau sur le site de Louvicourt (Chaire industrielle Polytechnique-UQAT en environnement et gestion des résidus miniers).....	34
Figure 2.8 La couverture multicouche sur le site Barvue (Abitibi-Témiscamingue) (Ministère des ressources naturelles et des forêts).	36
Figure 2.9 La nappe surélevée avec couverture monocouche sur le site Aldermac avant (a) et après (b) restauration. (Chaire industrielle Polytechnique-UQAT en environnement et gestion des résidus miniers).	37
Figure 2.10 Schéma des inclusions en roches stériles (IRS) dans un parc à résidus. Les inclusions de roches stériles fournissent un renforcement structurel aux barrages de résidus et accélèrent la consolidation des résidus (Tiré de Hard Rock Mine Reclamation, 2021).....	40
Figure 2.11 Schéma des différentes techniques minéralogiques et hydrométallurgiques pour la désulfuration des rejets miniers (Tiré de Ait-Khouia et al., 2021).....	41

- Figure 2.12 Régimes hydrologiques des fosses : (a) la fosse constitue un piège hydraulique (b) la fosse n'est qu'un réservoir ou l'eau entre et sort de l'autre côté. Les traits pointillés à gauche représentent des courbes de niveau appelées courbes iso piézométrique. 45
- Figure 3.1: a) Localisation de la propriété Doyon (Site web d'IAMGOLD 2021), b) La fosse Doyon (IRME 2018). 46
- Figure 3.2 Évaluation quantitative des phases minérales à l'aide d'un MEB-EDS automatisé (Zeiss sigma) (A) Abondance minérale en poids des résidus Laronde (B) Abondance minérale en poids des résidus synthétiques (C) Abondance minérale en poids des résidus Westwood....56
- Figure 3.3 Cartes minérales pour les grains sélectionnés. Grain **A** et **B** : Particule de pyrite libre, **C**: grains composites composés de quartz, pyrite, muscovite, biotite et albite. **D** : Particule de pyrite avec inclusion de chalcopirite. **E** : quartz en association avec de la calcite. Grain **F** et **G** : Particule de pyrite libre. **H** et **J** : grain de calcite avec inclusions d'apatite. **I** : Grain de quartz avec inclusion de dolomite. **K** et **L** : particules de pyrite libre. **M** : Grain de pyrite avec inclusions de quartz. **N** : Grain de quartz avec inclusion de pyrite. 57
- Figure 3.4 Évaluation qualitative de l'activité des bactéries : Agitateur rotatif + erlenmeyer contenant le résidu et le milieu de culture. 58
- Figure 3.5 Essais cinétiques en milieu saturé à différentes concentrations en oxygène dissous pour les résidus Laronde, Westwood et synthétiques avec instrumentation des cellules. 62
- Figure 3.6 a) Colonne de désaération de l'eau au laboratoire, b) sachets absorbeurs d'oxygène, c) les sachets absorbeurs d'oxygène suspendus dans la cellule Mariotte durant les tests cinétiques. 63
- Figure 3.7 Évolution de la concentration d'oxygène mesuré durant les 4 cycles de l'essai cinétique L1 (résidus de Laronde) en conditions saturées à pH neutre avec précision du volume de pore équivalent. 64
- Figure 3.8 Configuration des essais cinétiques: a) conditions saturées, b) conditions non saturées. Les flèches bleues indiquent la direction du d'écoulement de l'eau. 66
- Figure 3.9 Diagrammes Eh-pH (A) de la solution du fer ferrique oxydée à l'entrée des essais cinétiques (Fe : 1500 mg/l) et (B) la solution du fer ferreux (Fe : 1906 mg/L) réduit dans le

lixiviat à la sortie des essais cinétiques (diagrammes réalisés avec Geochemist Workbench, 2023). Les conditions mesurées au laboratoire sont indiquées par un rectangle noir.	67
Figure 3.10 Essais cinétiques en milieu saturé à pH acide pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétique à différentes concentration du fer ferrique avec instrumentation des cellules. ..	67
Figure 3.11 Préparation des solutions à différentes concentration du fer pour tracer la courbe d'étalonnage.	70
Figure 3.12 (a) Évolution de la conductivité électrique et du pH au cours du lavage du sable. (b) Qualité chimique du lixiviat du dernier cycle (lavage15).	71
Figure 3.13 Montage progressive des colonnes des résidus Laronde et Westwood en milieu saturé à pH neutre avec l'utilisation du sable comme inclusion.	71
Figure 3.14 Essai cinétique en milieu saturé avec codiposition du sable en inclusion au centre de la colonne avec précision de la la position des sondes et le sens d'écoulement de l'eau.....	72
Figure 3.15 Domaine du modèle et conditions frontières utilisés pour les calibrations. La zone rouge au milieu représente l'inclusion de sable entourée de résidus miniers.	73
Figure 3.16 La liste des espèces secondaires prise en considération par le code Min3P.....	75
Figure 4.1 Évolution du pH, de la conductivité électrique et des concentrations de sulfates pour les résidus Laronde et Westwood, en conditions saturées et non saturées lors des essais cinétiques. Les résultats sont présentés en termes de volumes de pores pour faciliter la comparaison des résultats.....	81
Figure 4.2 Évolution des concentrations de Zn, Cu et Al pour les résidus Laronde et Westwood en conditions saturées et non saturées lors des essais cinétiques.....	82
Figure 4.3 Évolution de la concentration en oxygène dissous dans l'eau d'entrée pour l'essai cinétique L1 (résidus Laronde) en conditions saturées. Les résultats des autres tests dans des conditions saturées ont montré des tendances similaires.	85
Figure 4.4 Évolution des concentrations de sulfates et du pH en fonction du temps et de la concentration en oxygène dissous dans a) les résidus Laronde b) les résidus Westwood c) les résidus synthétiques. Les résultats sont présentés à partir du volume de pore 10 pour se	

concentrer sur les résultats représentatifs des réactions se produisant dans les cellules, et non affectés par la qualité initiale de l'eau interstitielle (voir texte pour détails).....	86
Figure 4.5 Évolution de la masse cumulée de sulfates mesurée dans le lixiviat en fonction de la masse cumulée d'oxygène dissous injecté pour les résidus a) Laronde b) Westwood et c) synthétiques.	88
Figure 4.6 Fond de la cellule de l'essai cinétique L1 du résidu Laronde en milieu saturé. A droite la tranche du fond de la cellule après séchage à l'air libre. A gauche les précipités jaunes orangés au fond de la cellule L1 à l'état humide.....	91
Figure 4.7 L'analyse au microscope électronique à balayage (MEB) de la tranche du fond de la cellule de l'essai cinétique L1 du résidu Laronde en milieu saturé.	92
Figure 4.8 Particule de la pyrite illustrant les trois classes utilisées pour décrire la libération d'un minéral d'intérêt (rouge : pyrite) de la gangue associée (vert) : A = verrouillé (<20 % de surface de la particule), B = mixtes (20 – 80 surface % de la particule), C = libéré (>80 % de surface de la particule) (Pilly, 2015).....	97
Figure 4.9 Extrapolation à plus grande échelle et comparaison de la quantité de métal libérée par g/m2/an lorsque les résidus sont remblayés dans une fosse à ciel ouvert ou déposés dans des parcs à résidus pour a) la concentration en cuivre b) la concentration en zinc.	100
Figure 5.1 Diagrammes Eh-pH (A) de la solution du fer ferrique oxydée à l'entrée des essais cinétiques (Fe : 1500 mg/l) et (B) la solution du fer ferreux (Fe : 1906 mg/L) réduit dans le lixiviat à la sortie des essais cinétiques (diagrammes réalisés avec Geochemist's Workbench, 2023). Les conditions mesurées au laboratoire sont indiquées par un rectangle noir.	104
Figure 5.2 Évolution (a) du pH et (b) du potentiel d'oxydoréduction (POR) en fonction du temps à l'entrée et à la sortie des essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétiques.	105
Figure 5.3 Évolution de la concentration en oxygène dissous dans l'eau d'entrée, dans les résidus (2 cm au-dessus de la base des cellules) et à la sortie des essais cinétiques Laronde.	107
Figure 5.4 Évolution de la concentration en fer ferrique dans la solution d'entrée, du fer ferreux dans la solution de sortie et du ΔFe qui représente le produit d'oxydation de la pyrite durant les essais cinétiques pour les résidus (a) Laronde (b) Westwood (c) Synthétique.....	109

- Figure 5.5 Évolution de la concentration des produits d'oxydation des sulfures (sulfate ΔSO_4^{2-} et ΔFe) libérés dans les solutions de sortie durant les tests cinétiques en milieu acide pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétique. Valeur maximale, valeur minimale, médiane, 1^{er} et 3^{ème} quartile calculés pour dessiner la boîte à moustache pour chaque concentration. 111
- Figure 5.6 Évolution du (Fe^{2+}) libéré comme produit d'oxydation indirecte et du (Fe^{3+}) comme agent oxydant sur (a) les résidus synthétiques, (b) les résidus Laronde et (c) les résidus Westwood. Les pointillés noirs correspondent au ratio théorique de 1,07. 113
- Figure 5.7 Images MEB des résidus avant (A.C.D) et après (B.D.F) les essais cinétiques pour les résidus Laronde (A, B), Westwood (C, D) et Synthétiques (E, F) montrant les fractures, les dislocations et les divers changements par rapport à la morphologie de surface initiale de la pyrite.....120
- Figure 5.8 Schéma graphique des différentes étapes de la caractérisation microbiologiques des résidus Laronde et Westwood avant et après les essais cinétiques. 122
- Figure 5.9 (a) Colonies de bactéries ferroxydantes acidophiles des résidus Laronde avant les essais cinétiques (b) observation des mêmes colonies via le microscope électronique à balayage. 123
- Figure 5.10 Évaluation de l'activité des bactéries ferroxidantes acidophiles au démontage de (W4-L4 : essais cinétiques dans un milieu saturé avec du fer ferrique à pH acide). (a) pour les résidus Laronde (b) pour les résidus Westwood. 124
- Figure 5.11 (a) Les colonies des bactéries sulfooxydantes acidophiles des résidus Westwood avant les essais cinétiques (b) observation des colonies via le microscope électronique à balayage MEB. 126
- Figure 5.12 Évaluation de l'activité des bactéries sulphooxydantes acidophiles au moment du démontage de (W4-L4 : essais cinétiques dans un milieu saturé avec du fer ferrique à pH acide). (a) pour les résidus Laronde (b) pour les résidus Westwood. 127
- Figure 5.13 (a) Les milieux de cultures spécifiques pour les bactéries sulfooxydantes neutrophiles ensemencés par les résidus Laronde avant les essais cinétiques (b) Les milieux de cultures spécifiques pour les bactéries sulfooxydantes neutrophiles ensemencés par les résidus Westwood avant les essais cinétiques. 129

- Figure 5.14 Évaluation de l'activité des bactéries sulfoxydantes neutrophiles au moment de démontage de (W4-L4 : essais cinétiques dans un milieu saturé avec du fer ferrique à pH acide). (a) pour les résidus Laronde (b) pour les résidus Westwood. 130
- Figure 5.15 Évolution des métaux libérés en fonction de la concentration en fer ferrique (a) Extrapolation à plus grande échelle pour le cuivre (b) Extrapolation à plus grande échelle pour le Zinc. 133
- Figure 6.1 Évolution du pH et du (POR) en fonction du temps pour les résidus Laronde (a) et Westwood (b), en conditions saturées et en présence d'inclusion du sable lors des essais cinétiques. 136
- Figure 6.2 Évolution des concentrations de sulfates et de la conductivité électrique en fonction du temps et du gradient hydraulique appliqué dans (a) les résidus Laronde (b) les résidus Westwood. Les résultats sont présentés à partir du volume de pore 15 et 20 pour se concentrer sur les résultats représentatifs des réactions se produisant dans les cellules, et non affectés par la qualité initiale de l'eau interstitielle. 137
- Figure 6.3 Évolution de la concentration en oxygène dissous dans l'eau d'entrée et à différentes élévations de colonne en fonction du temps et en fonction des gradients hydrauliques appliqués ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus Laronde (a.b.c.d) et Westwood (e.f.g.h). 139
- Figure 6.4 Évolution des concentrations moyennes de métaux dans les lixiviats durant les essais cinétiques (en mg/L) en fonction du temps et en fonction des gradients hydrauliques appliqués ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus Laronde (a) et Westwood (b). 141
- Figure 6.5 Débits mesurés (points noires) et simulés (lignes bleu) pour différents gradients hydrauliques ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus (a) Laronde et (b) Westwood. 143
- Figure 6.6 Profils de la concentration d'oxygène O_2 mesurés et simulés dans les colonnes Laronde et Westwood pour différents gradients hydrauliques ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus Laronde (a.b.c) et Westwood (d.e.f). Valeur maximale, valeur minimale, médiane, 1^{er} et 3^e quartile calculés pour dessiner la boîte à moustache pour chaque profondeur. 150

- Figure 6.7 Calibration des simulations numériques de la colonne des résidus Laronde (a.b.c et d) et la colonne des résidus Westwood (e.f.g et h). Les valeurs simulées (courbe bleue) comparée aux valeurs mesurées lors des essais au laboratoire (losanges orange).....152
- Figure 6.8 Illustration conceptuelle schématisée du modèle au cours de l'extrapolation des résultats à grande échelle pour les simulations avec MIN3P (maillage : un peu plus de 200 éléments). 156
- Figure 6.9 Évolution de la concentration d'oxygène dissous dans la fosse suite à l'extrapolation des résultats à grande échelle (a) dans l'ensemble de la fosse (b) avec un zoom sur l'inclusion centrée à 75m. 157
- Figure 6.10 Profils simulés des concentrations de sulfates, de calcium de cuivre et de pH en fonction de (Y) au sein de la fosse remblayée par les résidus Laronde (a.b.c.d). Un zoom sur les profils simulés de pH, de concentrations de sulfates, de calcium et de cuivre en fonction de (Y) au niveau de l'inclusion (e.f.g.h). 158
- Figure 6.11 Évolution de la concentration en oxygène dissous en fonction de la largeur de l'inclusion pour le résidu Laronde. Les figures (a.b.c) montrent la vue général au sein de la fosse. Les figures (d.e.f) est un zoom qui montre la concentration d'O₂ au centre de l'inclusion en fonction de Y et pour différentes largeurs d'inclusion. 161
- Figure 6.12 Évolution de la concentration en oxygène le long de l'inclusion à différentes longueurs pour deux résidus de composition minéralogique différente a) résidus Laronde, b) résidus Westwood.....162
- Figure 6.13 Évolution de la concentration en oxygène dissous le long de l'inclusion à différents gradients hydrauliques pour les résidus Laronde. 163
- Figure 6.14 Évolution des valeurs de pH simulés au sein de l'inclusion en fonction de (Y) à différentes compositions minéralogiques de l'inclusion (a) 10% de calcite (b) 25% de calcite (c) et 50% de calcite. 166

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

ABA	Acid-Base Accounting
AEV	Pression d'entrée d'air « Air Entry Value » [ML^{-1}T^2]
ASTM	American Society for Testing and Materials
BCR	British-Columbia Research
C	Concentration d'oxygène dans les pores [ML^{-1} ou MolL^{-1}]
C_a	Concentration d'oxygène dans l'air à l'équilibre [ML^{-3} ou MolL^{-3} ou L^3L^{-3}]
CEBC	Couverture avec effet de barrière capillaire
C_o	Concentration d'oxygène dans l'atmosphère ($C_o \sim 20.9\%$, ou 276 mg/1)
C_p	Pourcentage de pyrite
CRE	Courbe de rétention d'eau
C_w	Concentration d'oxygène dans l'eau à l'équilibre [M L^{-3} ou Mol L^{-3} ou L^3L^{-3}]
C_u	Coefficient d'uniformité [-]
D^*	Coefficient de diffusion apparent [L^2T^{-1}]
D_{10}	Diamètre correspondant à 10 % de particules passantes [L]
D_{50}	Diamètre correspondant à 50 % de particules passantes [L]
D_{60}	Diamètre correspondant à 60 % de particules passantes [L]
D_a°	Coefficient de diffusion libre dans l'air [L^2T^{-1}]
D_e	Coefficient de diffusion effectif [L^2T^{-1}]
D_h	Diamètre effectif équivalent des grains [L]
DMA	Drainage minier acide
D_r	Densité relative
D_w	Coefficient apparent de diffusion dans l'eau [L^2T^{-1}]

D_w°	Coefficient de diffusion libre dans l'eau [L^2T^{-1}]
DRX	Diffraction des rayons X
e	Indice des vides [-]
EDM	Eau déminéralisée
EDS	Spectroscopie de rayons X à dispersion d'énergie
F_a	Flux d'air ou débit spécifique de l'air dissous dans l'eau [$L^3L^{-2}T^{-1}$]
F_0	Flux d'oxygène ou débit spécifique de l'oxygène dissous dans l'eau [$L^3L^{-2}T^{-1}$]
$F(z)$	Flux d'oxygène [$ML^{-1}T^{-2}$]
g	Accélération de la pesanteur [LT^{-2}]
h	Charge hydraulique [L]
H	Constante de Henry [-]
i	Gradient hydraulique [-]
ICP	Spectroscopie d'émission avec plasma atomique à couplage inductif
IS	Indice de saturation
K	Conductivité intrinsèque du milieu [L^2]
k_r	Conductivité hydraulique relative [-]
k_{sat}	Conductivité hydraulique à saturation [LT^{-1}]
k_{ra}	Conductivité relative de l'air dans un milieu partiellement saturé [-]
k_{sa}	Conductivité hydraulique saturée de l'air [LT^{-1}]
k_{sw}	Conductivité hydraulique saturée de l'eau [LT^{-1}]
k_u	Fonction de perméabilité effective du milieu non saturé à l'eau [LT^{-1}]
k_{ua}	Fonction de perméabilité effective du milieu non saturé à l'air [LT^{-1}]
KCM	Modèle de Kozeny Carman Modifié
L	Épaisseur [L]

LD	Limite de détection
m_v	Paramètre du modèle de van Genuchten ($m_v = 1-l/n_v$)
MEB	Microscopie électronique à balayage
MEND	Mine Environnement Neutral Drainage
MRNF	Ministère des Ressources Naturelles et des Forêts
n	Porosité [-]
n_v	Paramètre du modèle de van Genuchten [-]
P	Pression [$ML^{-1}T^{-2}$]
p_a	Pression de l'air [$ML^{-1}T^{-2}$]
PA	Potentiel d'acidité (kg $CaCO_3$ /t)
P_{atm}	Pression atmosphérique [$ML^{-1}T^{-2}$]
PN	Potentiel de neutralisation (kg $CaCO_3$ /t)
PNN	Potentiel de neutralisation net (kg $CaCO_3$ /t)
REM	Règlement sur les effluents des mines et de métaux
S_a	Saturation due aux forces d'adhésion [-]
S_c	Saturation due aux forces capillaires [-]
S_m	Surface spécifique [ML^2]
S_r	Degré de saturation en eau [-]
S_{re}	Degré de saturation effective
T_{on}	Coefficient de tortuosité dans l'air [-]
T	Température en °C
T_w	Coefficient de tortuosité dans l'eau [-]
u_w	Pression de l'eau interstitielle [$ML^{-2}T^{-2}$]
UQAT	Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue

z	Position ou profondeur [L]
α_v	Paramètre du modèle de van Genuchten [-]
μ_a	Viscosité dynamique de la phase gazeuse [$M L^{-1} T^{-1}$]
μ_w	Viscosité dynamique de l'eau [$M L^{-1} T^{-1}$]
θ	Teneur en eau volumique [$L^3 L^{-3}$]
θ_a	Teneur en air volumique [$L^3 L^{-3}$]
θ_{eq}	Porosité en air équivalente [$L^3 L^{-3}$]
θ_s	Teneur en eau volumique saturée [$L^3 L^{-3}$]
ψ	Succion matricielle ([L] ou [$M L^{-1} T^{-2}$])
ψ_a	Pression d'entrée d'air [L] ou [$M L^{-1} T^{-2}$]
ψ_r	Succion résiduelle [L] ou [$M L^{-1} T^{-2}$]
ρ_w	Masse volumique de l'eau [$M L^{-3}$]
ρ_a	Masse volumique de la phase gazeuse [$M L^{-3}$]
ρ_o	Masse volumique de l'oxygène [kg/m^3]
ρ_s	Masse volumique des grains [$M L^{-3}$]

LISTE DES ANNEXES

Annexe A : Granulométrie et classification des résidus miniers	209
Annexe B : Conductivité hydraulique	218
Annexe C : Densité relative	220
Annexe D : Analyses par microscope électronique à balayage (MEB)	225
Annexe E : Préparation des échantillons pour analyse par DRX	234
Annexe F : Analyses des échantillons par microscope électronique a balayage automatisé	236
Annexe G : Analyses des cyanures durant les essais cinétiques	241
Annexe H : Photos du montage et démontage des différents essais cinétiqueS	242
Annexe I : Détermination de la masse volumique sèche, indice des vides et porosité	244
Annexe J : Évaluation qualitative de l'activité bactérienne dans les résidus miniers.	245
Annexe K : La caractérisation pétrographique et minéralogique du sable l	252
Annexe L : Images par MEB automatisé des résidus Laronde et Westwood	253
Annexe M : Calcul des débits volumiques	259
Annexe N : Eléments chimiques retenus et ceux exclus par MIN3P pour le résidu Laronde	260

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

1.1 Contexte de l'étude

L'industrie minière constitue un secteur important de l'économie mondiale en général et de l'économie québécoise en particulier (Aubertin et al., 2002a, 2005). L'extraction des minerais peut se faire soit dans des exploitations à ciel ouvert, soit dans des chantiers souterrains. Le choix de la méthode d'extraction dépend de la topographie, de la géométrie et de la morphologie du gisement ainsi que de la nature de la roche encaissante (Ennaciri et al., 2000). D'importantes quantités de rejets peuvent être générées à chacune des étapes de l'exploitation. L'impact de ces rejets sur l'environnement dépend de leurs propriétés hydrogéologiques, géotechniques et géochimiques (Aubertin et al., 2015). Un des défis en particulier concerne les rejets réactifs qui contiennent des sulfures. Ceux-ci peuvent en effet s'oxyder lorsqu'ils sont exposés à l'oxygène et à l'eau et générer du drainage minier acide (DMA), caractérisé par des pH acides et des concentrations élevées en métaux et en sulfates, ou du drainage neutre contaminé (DNC) (Blowes et al., 2014; Nordstrom et al., 2015; Lindsay et al., 2015).

Au Québec, plusieurs millions de tonnes de rejets de concentrateur (résidus) et de stériles miniers sont produits annuellement (MDDELLC, 2014; MERN 2017). La méthode conventionnelle de gestion des rejets de concentrateur consiste à les entreposer en surface dans des parcs à résidus. Ces derniers nécessitent la construction de digues de rétention de grandes dimensions souvent coûteuses et sujettes à des risques d'instabilités physiques. Les résidus sont en effet usuellement transportés sous forme de pulpe jusqu'au bassin d'entreposage et ils sont déposés dans un état lâche et se consolident lentement en raison de leur teneur en eau initiale élevée et de leur faible conductivité hydraulique (Aubertin et al., 1997).

Les stériles miniers sont, quant à eux, habituellement entreposés dans des haldes dont la surface peut dépasser plusieurs centaines d'hectares et la hauteur plusieurs centaines de mètres. Lorsque les stériles contiennent des minéraux sulfureux, les taux de génération de DMA peuvent être supérieurs à ceux observés dans les parcs à résidus, notamment en raison d'une granulométrie grossière et étalée, de leur faible teneur en eau et des phénomènes de transport de l'oxygène par advection et diffusion (Dawood et Aubertin 2014; Lahmira et al., 2016, 2017).

De nouvelles techniques innovantes de gestion et d'entreposage des rejets miniers ont été proposées au cours des dernières années. Ce type de gestion intégrée est généralement plus efficace lorsqu'elle est planifiée avant même le début des opérations et que des mesures préventives sont mises en place afin de prévenir la génération de DMA ou DNC à la source. On parle ainsi du concept de "conception pour la fermeture" ou "designing for closure" (Aubertin et al., 2016 ; Lévesque, 2019 ; Amar, 2020). Par exemple, les rejets miniers peuvent être utilisés comme remblai rocheux dans les chantiers souterrains avec ou sans ajout d'un agent liant, et dans la construction des barricades (Benzaazoua et Belem., 2012; Pengyu et Li, 2015). Le remblayage souterrain contribue à réduire la quantité de rejets miniers à stocker en surface et à limiter les risques de génération de DMA (Belem et Benzaazoua, 2008). La codisposition des roches stériles et des résidus miniers est une autre approche de gestion intégrée. La technique consiste à déposer simultanément ou par alternance des résidus miniers et des roches stériles dans une aire de stockage unique (Bussière et al., 2007). Les principales techniques de codisposition sont le co-mixage ou Paste Rock (Wickland et al., 2010 ; Charbonneau et al., 2018; Mjonono, 2019), la codisposition par couche (Lamontagne et al., 2000; Lefebvre et al., 2001) et la codisposition par inclusions de roches stériles dans les parcs à résidus IRS (James et al., 2017 ; Essayad et al., 2018). L'objectif du co-mixage est d'augmenter la résistance mécanique des matériaux (amélioration de la stabilité physique) et de réduire la perméabilité à l'air et à l'eau (amélioration de la stabilité géochimique) (Lefebvre et al., 2001a et 2001b; Wilson et al., 2002; Wickland et al., 2005). La disposition par couche consiste à la déposition des couches de résidus (matériaux fins), dans les haldes à stériles (matériaux grossiers) pour réduire le flux d'oxygène et l'infiltration d'eau et ainsi contrôler la génération du DMA (Bussière et al., 2007). Enfin, les IRS, agissent comme des drains et favorisent la dissipation des pressions interstitielles et accélèrent la consolidation des résidus et par conséquent améliorent la stabilité des digues (Ferdosi et al., 2015a, 2015b). Les IRS, permettent aussi d'augmenter la rigidité des parcs à résidus face aux sollicitations dynamiques lors de tremblement de terre par exemple (James et al., 2017 ; Essayad et al., 2018).

Le remblayage des fosses à ciel ouvert constitue une autre alternative de gestion intégrée parfois complémentaire à la co-disposition, pour les exploitations en surface. Les avantages anticipés sont nombreux et incluent en particulier la minimisation de l'empreinte environnementale en surface, la réduction du nombre et de la taille des parcs à résidus et des haldes à stériles, la réduction des risques post-opération, l'amélioration de la stabilité géotechnique et géochimique des rejets, et la

meilleure acceptabilité sociale des projets miniers (notamment en améliorant l'esthétique des sites post-fermeture). Plusieurs fosses ont ainsi fait l'objet d'un remblayage total ou partiel dans le cadre de la fermeture de l'exploitation minière, comme par exemple les mines Whistle et Owl Creek (ON, Canada), Equity Silver (BC, Canada), Solbec et Doyon-Westwood (QC, Canada), ou encore Los Frailes (Spain) (Demers et Pabst, 2021) montrant l'applicabilité de la méthode en pratique (Kumar et al., 2010; MEND, 2015). L'approche est aussi régulièrement utilisée pour les résidus des mines de charbon (Park et al., 2019) et de sables bitumineux (Dompierre et Barbour, 2016).

Néanmoins, plusieurs incertitudes et inconnues limitent en partie ou compliquent l'application du remblayage des fosses à ciel ouvert. Ainsi, un des principaux défis concerne les rejets réactifs qui contiennent des sulfures et qui peuvent générer du DMA. La déposition des rejets réactifs dans les fosses pourrait permettre de limiter les réactions d'oxydation, grâce notamment à un meilleur contrôle des échanges avec l'atmosphère et le milieu environnant. Cependant, il existe également un risque que les flux latéraux d'oxygène (gazeux et/ou dissous) à travers le roc fracturé puissent contribuer à l'oxydation des rejets et donc à la génération de DMA. L'oxygène dissous dans l'eau souterraine pourrait ainsi constituer une source d'oxygène significative, surtout si les flux hydrogéologiques sont importants (Spiessl et al., 2007; Ben Abdelghani, 2009; Rousseau, 2019).

Par exemple, dans la fosse remblayée de la Mine Solbec, le volume total d'eau estimé traversant les rejets déposés dans la fosse est d'environ $1,2 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{an}$ (soit $33 \text{ m}^3/\text{jours}$) (MEND 2015 Report 2.36.1b Solbec Mine). Les flux advectif d'oxygène à travers le milieu rocheux fracturé au-dessus de la nappe pourraient également contribuer à l'oxydation des rejets réactifs déposés dans les fosses (Villain et al., 2015; Ben Abdelghani et al., 2015).

Avec la multiplication des mines à ciel ouvert de grandes dimensions, l'industrie a donc besoin de bien évaluer et de mieux comprendre le comportement hydrogéologique et géochimique des rejets qui peuvent être retournés dans les fosses, afin de réduire les incertitudes de cette approche et de maximiser le remblayage des fosses.

1.2 Problématique générale

La synthèse réalisée par le MEND (2015) sur 12 études de cas de remblayage de mines à ciel ouvert à travers le monde (Canada, Australie, Espagne, Allemagne, Guyana) a contribué à évaluer et

identifier les paramètres critiques permettant de contrôler les échanges avec l’atmosphère d’une part et avec le milieu environnant d’autre part.

Concernant les échanges avec l’atmosphère, plusieurs types de recouvrements (plus de détails dans le chapitre 2, section 2.4.1) peuvent être adaptés aux conditions du site, au climat, à la topographie, aux matériaux disponibles et aux propriétés des rejets réactifs. Le contrôle de l’oxydation dans les fosses est souvent assuré par le maintien d’un degré de saturation élevé dans les rejets, l’eau jouant le rôle de barrière à l’oxygène. L’ennoiement des rejets et la formation d’un lac de fosse (ou *pit lake* en Anglais) constituent donc un moyen efficace pour limiter la génération de DMA (Schulze et al., 2011; McCullough et al., 2013; Golder, 2017).

Lorsque la nappe phréatique est située plus profondément que les rejets déposés (au moins en partie) au-dessus du niveau de la nappe, des recouvrements de type barrière à l’oxygène peuvent être utilisés. Ces couvertures sont généralement constituées de plusieurs couches de sols dont le contraste des propriétés hydrogéotechniques vont permettre de garder une certaine épaisseur de matériaux saturés, limitant ainsi les flux d’oxygène jusqu’aux rejets réactifs. Concernant les échanges entre les rejets remblayés dans la fosse et le milieu encaissant (à travers le massif rocheux fracturé), plusieurs risques ont été identifiés:

- Les flux latéraux d’oxygène (gazeux et/ou dissous) à travers le milieu rocheux fracturé qui peut être relativement perméable à la périphérie de la fosse en raison des sautages (Rousseau et Pabst, 2021) peuvent contribuer à augmenter les flux d’oxygène dissous et gazeux à travers les rejets remblayés (Belfadhel, 2000).
- Le caractère discret des mouvements de l’eau à travers les fractures du massif rocheux (Rousseau et Pabst, 2018) complique l’évaluation et le contrôle des flux d’oxygène dissous et/ou le suivi de l’évolution des qualités d’eau.
- Enfin, il est généralement plus facile de déposer les rejets dans la fosse à la fin des opérations. Or, le remplissage a posteriori d’une fosse peut contribuer à augmenter les risques de génération de DMA en raison de la pré-oxydation des rejets (déposés temporairement en surface et laissés exposés à l’air) et des murs de la fosse (Davis et Ashenberg, 1989; Blowes, 2003; Gammons, 2009). La génération d’acide pourrait alors être accélérée via le fer ferrique (oxydation indirecte). Dans ce cas, un recouvrement

n'empêchera plus la génération de DMA, même s'il est efficace comme barrière à l'oxygène.

Une étude plus complète de la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans les fosses est donc nécessaire afin de mieux comprendre les échanges avec le milieu environnant et pouvoir, à terme, développer la méthode pour d'autres opérations minières à ciel ouvert.

1.3 Hypothèse de recherche

Il est possible d'entreposer les rejets miniers réactifs dans les fosses à ciel ouvert en optimisant leur déposition afin de contrôler la génération du DMA et d'éviter la contamination du milieu environnant.

1.4 Objectif général de la thèse

Évaluer la stabilité géochimique de résidus miniers réactifs déposés dans les fosses et évaluer le rôle de la codisposition sur le contrôle de la génération de DMA.

1.5 Objectifs spécifiques

OS1 : Évaluer le taux de génération de DMA de résidus réactifs envoyés en milieu saturé à pH neutre et à différentes concentrations d'oxygène dissous.

OS2 : Évaluer l'influence des eaux acides contaminées à différentes concentrations du fer ferrique sur la stabilité géochimique des résidus miniers déposés dans une fosse à ciel ouvert.

OS3 : Évaluer l'efficacité des inclusions sur la stabilité géochimique des résidus remblayés dans des fosses à différentes échelles au moyen de modélisations numériques et des données expérimentales disponibles.

1.6 Contributions originales

La demande croissante en minéraux stratégiques et critiques nécessaires à la transition énergétique (Lepesant, 2018) entraînera inévitablement une augmentation de la production de déchets miniers. Le remblayage des fosses est une approche d'élimination alternative aux installations de stockage de déchets conventionnelles qui présente des avantages significatifs (Chapitre 2). Dans la plupart des cas, la réhabilitation des fosses consiste à les remplir de déchets miniers puis à les inonder (McCullough et al., 2013). Les couvertures d'eau agissent comme barrière à l'oxygène car la

concentration d'oxygène et le coefficient de diffusion sont beaucoup plus faibles dans l'eau que dans l'air (Awoh, 2020).

De nombreuses études ont confirmé jusqu'ici l'efficacité de l'ennoiement sur la stabilité géochimique des rejets miniers. Cependant, ces travaux considéraient généralement l'atmosphère comme unique source d'oxygène et négligeaient l'effet de l'oxygène dissous présent dans les eaux souterraines sur l'oxydation des résidus saturés. En effet, les flux d'eau souterraine sont généralement négligeables pour les parcs à résidus en surface (notamment en raison des tapis d'étanchéité installés à la base des parcs) et relativement faibles pour les fosses. Cependant, avec l'augmentation de la taille des fosses, les débits d'eau souterraine tendent à augmenter également, et des études récentes ont montré que la perméabilité du roc fracturé n'était parfois pas négligeable (Villain 2004, Rousseau 2021). Cette étude est ainsi la première à étudier l'effet à long terme de ces flux d'oxygène dissous sur la génération de DMA dans les fosses remblayées.

Plusieurs études ont démontré que la technique de la codisposition des rejets de concentrateurs avec les roches stériles connue sous le nom d'IRS décrite ci haut (James et Aubertin, 2009, 2010; James et al., 2017; Essayad et al., 2018) présente plusieurs avantages de point de vue géotechnique. Quant aux résultats des travaux de cette thèse, ils vont permettre d'évaluer l'efficacité des inclusions sur la stabilité géochimique des résidus remblayés dans des fosses à différentes échelles au moyen des données expérimentales disponibles et de modélisations numériques.

Dans ce travail, on évaluera le rôle des inclusions de stériles pour contrôler le débit d'eau et d'oxygène et optimiser leur conception afin de réduire le risque de génération de DMA dans une fosse à ciel ouvert remblayée avec des résidus miniers.

Ces travaux permettront aux opérateurs miniers de mieux comprendre le comportement géochimique des résidus miniers déposés dans les fosses en milieu saturé et devraient contribuer à mettre en place des critères pour la déposition dans les fosses. Les résultats de ce projet sont applicables à diverses exploitations, dont certaines ont déjà entrepris ou planifié la déposition des rejets dans les fosses (notamment avec des rejets pré-oxydés).

1.7 Organisation de la thèse

Après cette brève introduction (chapitre 1), le chapitre 2 présente une revue de littérature sur la géochimie du drainage minier acide, les cinétiques de réactions du DMA, l'écoulement de l'eau

dans les milieux poreux et les transferts de gaz (et en particulier de l'oxygène). Le chapitre 2 inclut aussi une présentation des principales méthodes de restauration des parcs à résidus miniers avec un zoom sur le concept du remblayage des fosses à ciel ouvert par les rejets miniers en précisant les limitations et les contraintes de ce dernier. On décrit aussi le code numérique MIN3P qui sera utilisé dans ce projet. L'objectif de cette simulation sera d'évaluer quel pourrait être le comportement géochimique et hydrogéologique à long terme des résidus réactifs déposés dans une fosse avec ou sans codisposition.

Le chapitre 3 présente la méthodologie expérimentale utilisée pour répondre aux objectifs de cette étude avec caractérisation physicochimique, minéralogique et microbiologique des résidus miniers employés.

Le chapitre 4 présente les principaux résultats des essais cinétiques en colonne effectués au laboratoire en conditions saturées et non saturées. L'objectif principal de ce chapitre est d'évaluer expérimentalement l'effet de l'oxygène dissous sur l'oxydation directe de différents résidus miniers saturés. Les résultats ont également été appliqués au cas du remblayage d'une fosse à grande échelle et des recommandations pratiques sont proposées afin de limiter le taux de génération de DMA de résidus réactifs envoyés dans une fosse en milieu saturé à pH neutre et à différentes concentrations d'oxygène dissous. Le chapitre 5 s'intéresse à l'évaluation expérimentale de l'effet du fer ferrique en solution sur l'oxydation indirecte de différents résidus en milieu saturé et acide au moyen d'essais cinétiques au laboratoire (Chapitre 3.3.2). Une solution acide avec différentes concentrations de fer ferrique (Fe^{3+}) a été introduite dans les cellules afin de provoquer l'oxydation indirecte des résidus. Une extrapolation de ces résultats à plus grande échelle afin d'évaluer l'ampleur et l'influence des eaux acides contaminées par différentes concentrations du fer ferrique sur la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans une fosse a été présentée.

Les résultats des essais cinétiques avec codisposition des résidus réactifs avec des matériaux inertes sont présentés au chapitre 6. L'objectif principal du chapitre 6 est d'évaluer expérimentalement et numériquement le rôle d'inclusions de roches stériles dans le contrôle des flux d'eau et d'oxygène sur la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans les fosses. Les simulations numériques ont été extrapolées pour étudier l'effet de la largeur d'inclusion, du gradient hydraulique et de la composition minéralogique des résidus sur la génération de DMA. Le chapitre 7 présente une synthèse et une discussion générale des résultats obtenus. La thèse se termine avec une conclusion

(chapitre 8) qui met l'accent sur les contributions de ce travail tout en identifiant ses limites. Des recommandations ainsi que la proposition de nouvelles voies de recherche ont été formulées. Certaines informations et données complémentaires sont rassemblées et présentées dans les annexes.

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

2.1. Caractéristiques des rejets miniers

Les types de rejets solides générés par une exploitation minière comprennent essentiellement les résidus miniers produits par les opérations de concentration de minerais (Métallurgie extractive: Hydrométallurgie, Minéralurgie, Pyrométallurgie) et les roches stériles non traitées provenant des opérations d'extraction (Aubertin et al., 2002a; Bussière et al., 2007). Les propriétés physiques, hydrogéologiques et géochimiques ainsi que la composition minéralogique de ces matériaux, ont une grande influence sur leur réactivité (Elghali et al., 2018).

2.1.1 Caractéristiques des rejets de concentrateur ou résidus miniers

Les rejets de concentrateur ou résidus miniers sont constitués de roches broyées (et de produits chimiques de traitement), dont les éléments valorisables ayant un intérêt commercial ont été déjà extraits. Ils proviennent des usines de concentration du minerai et ils sont le plus souvent acheminés vers les parcs à résidus par pipeline (Aubertin et al., 2002b). Les rejets de concentrateur sont composés de matériaux fins et contiennent souvent plus de 70 à 80% de particules d'une taille inférieure à 80 μm (Aubertin et al., 2002a; Bussière et al., 2007). Leurs propriétés varient d'un site à l'autre, mais ils se caractérisent généralement par (Bussière et al., 2007) :

- Un D_{10} compris entre 0,001 et 0,004 mm, et un D_{60} compris entre 0,01 et 0,05 mm. Le coefficient d'uniformité C_U ($C_U = D_{60}/D_{10}$) est typiquement compris entre 8 et 18.
- Un indice des vides (e) compris entre 0,6 et 1,7 pour la fraction fine, et 0,6 à 0,9 pour la fraction grossière. Des indices de densité qui varient entre 30% et 50% (Saleh-Mbemba, 2016).
- Une densité relative des grains D_r qui est fonction de la minéralogie du minerai est habituellement comprise entre 2,6 et 2,9 pour les rejets non générateurs de DMA (Bussière, 1993; Aubertin et al., 1996) et de 2,9 et 4,5 pour les résidus sulfureux.
- Une conductivité hydraulique k_{sat} qui varie avec la granulométrie et l'indice de vide (e), mais qui est généralement comprise entre 10^{-5} et 10^{-8} m/s (Bussière et al., 2005).

Les résidus sont généralement classés comme des silts sablonneux de faible plasticité suivant la classification des sols (ASTM D-2487), (Aubertin et al., 2002a). La déposition hydraulique des rejets entraîne souvent un grano-classement à l'intérieur des parcs, les plus grossiers et/ou les matériaux les plus denses se concentrent près du point de déposition, alors que les grains plus fins, sont déplacés vers le centre du parc (Bussière et al., 2005). Les propriétés des résidus dans un bassin de rétention peuvent donc varier à la fois verticalement et horizontalement (Bussière et al., 2005).

2.1.2 Stériles miniers

Les stériles miniers sont constitués principalement de blocs de roche de tailles variables. On y trouve une proportion plus ou moins importante de particules fines ($< 80 \mu\text{m}$), mais également des blocs dont la taille peut dépasser le mètre (Smith et al., 2013; Dawood and Aubertin, 2014). Généralement, le coefficient d'uniformité C_U des stériles miniers issus de l'exploitation d'une mine en roches dures est supérieur à 10 (Barbour et al., 2001; Aubertin et al., 2002b; Peregoedova, 2012).

Les stériles miniers possèdent un D_{60} et un D_{10} typiquement compris entre respectivement 1 mm et 80 mm et de 0,02 mm et 3 mm. En moyenne, ils sont composés de 30 - 40% de gravier (5 - 20 mm), 60% de sable ($80 \mu\text{m}$ - 5 mm) et 5% de particules fines ($< 80 \mu\text{m}$). Les stériles sont ordinairement très perméables et ont une porosité en place très variable (0,2 à 0,4) (Peregoedova, 2012). Les valeurs de la conductivité hydraulique saturée (k_{sat}) des stériles peuvent varier selon la granulométrie des matériaux et l'échelle de la mesure. Les conductivités hydrauliques saturées mesurées au laboratoire varient entre 10^{-5} et 10^{-6} m/s (Gamache Rochette, 2004; Hernandez, 2005). Les courbes de rétention d'eau des stériles sont similaires à celles des matériaux sableux avec une pression d'entrée d'air AEV généralement inférieure à 10 cm (Martin et al., 2017).

Plusieurs travaux antérieurs ont étudié l'effet de la granulométrie du stérile minier sur sa réactivité (Erguler & Kalyoncu Erguler, 2015; Lapakko *et al.*, 2006). Plus la taille des particules est fine plus la réactivité est importante. Récemment, avec le développement de la minéralogie automatisé, des paramètres texturaux ont été développés pour décrire l'exposition des minéraux. Notamment, le degré de libération minérale ou encore le degré d'exposition du minéral qui peut être défini comme la partie libérée du minéral par rapport à sa totalité (Benzaazoua et al., 2017a). Il prend en considération l'effet de la granulométrie de l'échantillon (surface spécifique) et la granulométrie du minéral lui-même (Elghali et al., 2018).

2.2 Géochimie du drainage minier

2.2.1 Oxydation des minéraux sulfureux

Le phénomène de DMA résulte de l'oxydation des minéraux sulfureux présents dans certains rejets miniers (Blowes et al., 2014; Plante et al., 2021). Les solutions de drainage acide produites sont caractérisées par un pH faible suite à la production d'acide sulfurique, des concentrations élevées en sulfates et en métaux (notamment le fer et aussi certains métaux toxiques tels que l'arsenic, le plomb et le mercure), et des valeurs de conductivité électrique élevées (Aubertin et al., 2002b; Blowes et al., 2014).

2.2.2 Étapes de la formation du DMA

Le processus d'oxydation des sulfures métalliques est généralement décomposé en trois phases (Nordstrom et al., 2011b; Nordstrom et al., 2015). Habituellement, le minéral de pyrite (FeS_2) est utilisé pour représenter les différentes réactions suite à son abondance dans la plupart des minerais exploités (Jambor et Blowes, 1998; Blowes et al., 2003). Dans les parcs à résidus, les minéraux sulfureux responsables de la formation de DMA sont multiples (Blowes, 2003, Lindsay et al., 2015). La galène (PbS), la sphalérite (ZnS) et la chalcopryrite (CuFeS_2) peuvent aussi se retrouver dans les rejets miniers mais avec des quantités plus faibles car ils sont concentrés et valorisés en amont sous forme de métaux de base (Nordstrom et al., 2015).

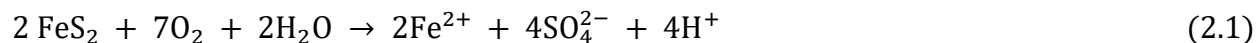
Certains sulfures s'oxydent et produisent des protons en présence d'oxygène ou de fer ferrique (pyrite (FeS_2), pyrrhotite (Fe_{1-x}S)), d'autres (comme la sphalérite et la galène) peuvent réagir avec l'oxygène en absence d'eau sans générer d'acide, tout en libérant du zinc et du plomb respectivement (très soluble) et ne produisent de l'acide que lors de l'oxydation par le fer ferrique, (Janzen et al., 2000; Chopard et al., 2017; Blowes et al., 2014).

Le tableau 2.1, présente les différentes réactions d'oxydation par l'oxygène et par le fer ferrique pour les principaux minéraux sulfureux.

Tableau 2.1 Réactions d'oxydation par l'oxygène et par le fer ferrique pour les principaux minéraux sulfureux (Tiré de Bussière 2005 et adapté de Rimstidt et al., 1994).

Minéral	Réaction
Oxydation par l'oxygène	
Pyrrhotite	$Fe_{1-x}S + (2 - x/2)O_2 + xH_2O \rightarrow (1 - x)Fe^{2+} + SO_4^{2-} + 2xH^+$
Sphalérite	$ZnS + 2O_2 \rightarrow Zn^{2+} + SO_4^{2-}$
Chalcopryrite	$CuFeS_2 + 4O_2 \rightarrow Cu^{2+} + Fe^{2+} + 2SO_4^{2-}$
Galène	$PbS + 2O_2 \rightarrow Pb^{2+} + SO_4^{2-}$
Arsénopyrite	$2FeAsS + 13/2 O_2 + 3H_2O \rightarrow 2(AsO_4)^{3-} + 6H^+ + 2Fe^{2+} + 2SO_4^{2-}$
Oxydation indirecte par le fer ferrique	
Pyrrhotite	$Fe_{1-x}S + (8 - 2x)Fe^{3+} + 4H_2O \rightarrow (9 - 3x)Fe^{2+} + SO_4^{2-} + 8H^+$
Sphalérite	$ZnS + 8Fe^{3+} + 4H_2O \rightarrow Zn^{2+} + 8Fe^{2+} + SO_4^{2-} + 8H^+$
Chalcopryrite	$CuFeS_2 + 16Fe^{3+} + 8H_2O \rightarrow Cu^{2+} + 17Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 16H^+$
Galène	$PbS + 8Fe^{3+} + 4H_2O \rightarrow Pb^{2+} + 8Fe^{2+} + SO_4^{2-} + 8H^+$
Arsénopyrite	$FeAsS + 11Fe^{3+} + 7H_2O \rightarrow H_3AsO_3 + 11H^+ + 12Fe^{2+} + SO_4^{2-}$

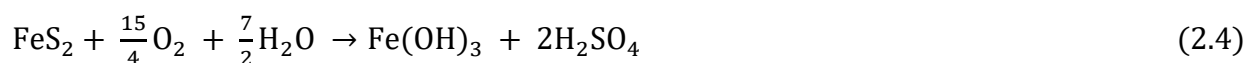
- Dans une première phase, l'oxydation directe (notamment de la pyrite) par l'oxygène domine et entraîne une baisse progressive du pH (équation 2.1) (Blowes et al., 2003; Blowes et al., 2014; Plante et al., 2021).



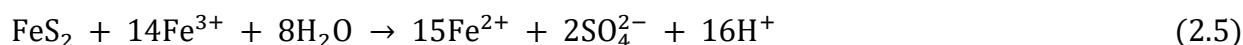
- Dans une deuxième étape, le fer ferreux est oxydé en fer ferrique selon l'équation (2.2). La précipitation d'hydroxyde de fer $Fe(OH)_3$ comme phase secondaire contribue à l'acidification du milieu (équation 2.3). Les bactéries acidophiles telles *Acidithiobacillus ferroxidans* commencent à se multiplier et permettant de catalyser l'oxydation du fer ferreux en fer ferrique (Akcil et Koldas, 2006), (voir aussi section 2.2.3).



La réaction globale (2.4) d'oxydation directe de la pyrite peut ainsi s'écrire (Baker et Banfield, 2003):



- Pour des pH inférieurs à 3,5, le fer oxydé sous forme ferrique joue le rôle d'un agent oxydant pour la pyrite selon la réaction 2.5; c'est l'oxydation indirecte (Akcil et Koldas, 2006):



Des phases chimiques intermédiaires partiellement oxydées à base de soufre (soufre natif (S_0), sulfites (SO_3^{2-}), thiosels $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ (thiosulfates), $\text{S}_4\text{O}_6^{2-}$, $\text{S}_3\text{O}_6^{2-}$ (polythionates) et d'autres sont formées lors des réactions d'oxydation des sulfures métalliques (Blowes et al., 2003; Plante et al., 2021).

2.2.3 Mécanismes microbiens

Les bactéries peuvent jouer un rôle important de catalyseur durant la phase d'oxydation des minéraux sulfureux (Jambor et al., 2005; Lindsay et al., 2009). Ainsi, l'oxydation bactérienne permettait d'activer et stimuler la réaction d'oxydation abiotique par un facteur de 3 à 300 dans certaines conditions (Belzile et al., 2004), (Figure 2.1). De nombreuses espèces de bactéries ont été identifiées dans les parcs à résidus, mais elles peuvent être regroupées principalement en deux types (Crundwell, 2003; Kuang et al., 2013):

- les bactéries chimiolithotrophes acidophiles ferrooxydantes (IOB) qui oxydent le fer ferreux Fe(II) en fer ferrique Fe(III) .
- les bactéries chimiolithotrophes acidophiles sulfooxydantes (SOB) qui oxydent le S^0 (soufre natif) en H_2SO_4 (acide sulfurique).

Parmi les espèces que l'on retrouve communément dans les rejets miniers, *Acidithiobacillus ferrooxidans* est la plus courante, Il s'agit d'une bactérie strictement acidophile qui ne peut se développer qu'à des pH compris entre 1 et 4. Elle est mésophile (température optimum de 35°C), et autotrophe (fixe le CO_2 avant son utilisation comme source de carbone), elle oxyde à la fois le soufre, le fer ferreux et la pyrite (Crundwell, 2003; Blowes et al., 2003; Baker et Banfield, 2003). Une autre espèce, *Leptospirillum ferrooxidans* peut oxyder seulement le fer et peut se développer à une température plus élevée (30 to 40°C) et un pH plus faible entre (0,7 et 4) par rapport à *Acidithiobacillus ferrooxidans* (Quatrini et al., 2019). Elle a aussi une affinité plus élevée pour Fe^{2+} (Suzuki, 2001; Baker et Banfield, 2003) qu'elle utilise comme source d'énergie. *Acidithiobacillus thiooxidans* est également une bactérie autotrophe qui se développe à des pH compris entre 0,5 et

5,5 sur le soufre élémentaire ou des composés sulfureux comme les thiosulfates ($\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$) (Kamizela et al., 2021).

Le développement des bactéries nécessite des conditions ambiantes favorables (Chen et al., 2021). Les principaux facteurs influençant l'activité bactérienne dans la production d'acide incluent: la densité de la population bactérienne, la concentration des éléments nutritifs inorganiques (K, Ca, P, Mg), la présence ou non d'inhibiteurs, la teneur en eau et le degré d'aération (Hulshof et al., 2006; Chen et al., 2021).

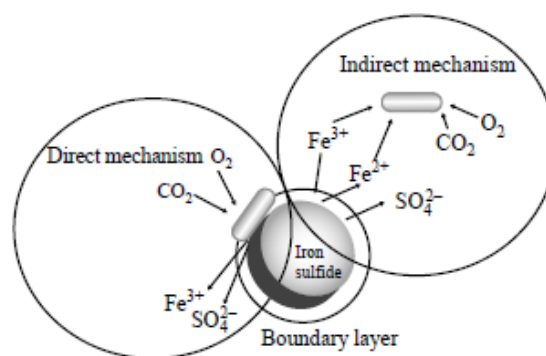
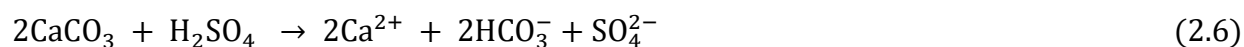


Figure 2.1 Comparaison des deux mécanismes microbiologiques direct et indirect de l'oxydation des sulfures métalliques (Tiré Blowes et al., 2003).

2.2.4 Neutralisation

Les rejets miniers peuvent aussi contenir d'autres minéraux qui peuvent réagir avec l'acide produit et le neutraliser. Ces minéraux neutralisants appartiennent à trois classes principales : les carbonates, les hydroxydes et les silicates. La capacité neutralisante (ou pouvoir tampon) de ces espèces constitue un moyen naturel d'atténuation de la génération du DMA (Jambor et Blowes., 1998; Lindsay, 2009).

Les minéraux neutralisant les plus efficaces pour tamponner le pH sont les carbonates et en particulier la calcite (CaCO_3), la dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) et l'ankérite ($\text{Ca}(\text{Fe},\text{Mg})(\text{CO}_3)_2$). Les carbonates permettent de maintenir le pH entre 5 et 7 dans les aires d'accumulation de rejets miniers (Aubertin et al., 2002b; Blowes et al., 2003, Lindsay et al., 2009). Par exemple, la réaction de la calcite avec l'acide sulfurique s'écrit :



Les carbonates n'ont pas tous la même capacité neutralisante et si la dissolution de la calcite est assez rapide pour neutraliser le pH des eaux interstitielles des rejets entre 6 et 7,5, la dissolution des autres carbonates est plus lente (Moncur et al., 2005). La réactivité relative des carbonates communément acceptée est la suivante : calcite > dolomite > ankérite magnésienne > ankérite > sidérite (Blowes et Ptacek., 1994; Blowes et al., 2003).

La dissolution des carbonates peut être limitée suite à la précipitation de phases secondaires à la surface des grains (Lindsay et al., 2009, 2015).

Plusieurs hydroxydes présentent également un certain pouvoir neutralisant. Par exemple les hydroxydes ferriques $\text{Fe}(\text{OH})_3$, et les hydroxydes d'alumine $\text{Al}(\text{OH})_3$, permettent de tamponner le pH entre 4 et 5,5 (Lindsay et al., 2009). Par exemple, les hydroxydes ferriques peuvent être redissous dans des eaux acides et consommer des ions hydrogène (Lottermoser, 2010) :



Les silicates peuvent aussi contribuer à tamponner le pH, mais leur pouvoir neutralisant est plus faible que celui des carbonates et des hydroxydes (Jurjovec et al., 2002). La dissolution des silicates exceptés la phase inerte du quartz, peut être congruente (dissolution complète en éléments soluble) ou incongruente (dissolution partielle ou complète avec précipitation de nouveaux composants qui résulte des produits de la réaction) (Plante, 2010).

2.2.5 Produits d'oxydation

La forte variation des teneurs en métaux et sels dans les eaux de DMA, ainsi que les mécanismes de neutralisation mentionnés plus haut, sont à l'origine de précipitation des minéraux secondaires qui ont un effet important sur la qualité chimique des eaux (Lottermoser and Ashley., 2006; Petrunic et al., 2009). Ces minéraux secondaires se forment essentiellement dans la frange capillaire où le degré de saturation ainsi que le niveau de la nappe phréatique sont très variables (Nordstrom, 2011 ; Plante et al., 2021).

La jarosite ($\text{KFe}_3(\text{SO}_4)_2(\text{OH})_6$), la goethite ($\text{FeO}(\text{OH})$), le gypse (CaSO_4) et la ferrihydrite ($\text{Fe}^{3+}_{10}\text{O}_{14}(\text{OH})_2$) sont parmi les précipités les plus communs sur les sites miniers (Jambor et al., 2000; Petrunic et al., 2009). Le fer sous sa forme oxydée Fe^{3+} précipite principalement sous forme de goethite ($\text{FeO}(\text{OH})_3$) par contre la précipitation du Fe^{2+} est plus rare puisqu'elle nécessite généralement des milieux très alcalins (Nordstrom et Alpers., 1999; Blowes et al., 2014).

Les précipités de sulfates se présentent généralement sous forme de sels solubles qui cristallisent en période de sécheresse et peuvent par la suite se remettre en solution en période humide (Nordstrom et Alpers., 1999, Aubertin 2002a; Petrunic et al., 2009). La formation de minéraux secondaires peut entraîner la formation d'horizons indurés (hard pan) (DeSisto et al., 2011; Nordstrom et al., 2015; Elghali et al., 2018) et parfois provoquer un certain colmatage des pores (Moncur et al., 2005, 2009; Graupner et al., 2007; DeSisto et al., 2011).

La formation du hard pan modifie considérablement la réactivité des minéraux sulfureux par le phénomène de passivation par enrobage (Elghali et al., 2018). Notamment, la formation des précipités secondaires comme les oxy-hydroxydes de fer permet de diminuer la mobilité des métaux sous certaines conditions de (Eh, pH) (DeSisto et al., 2011).

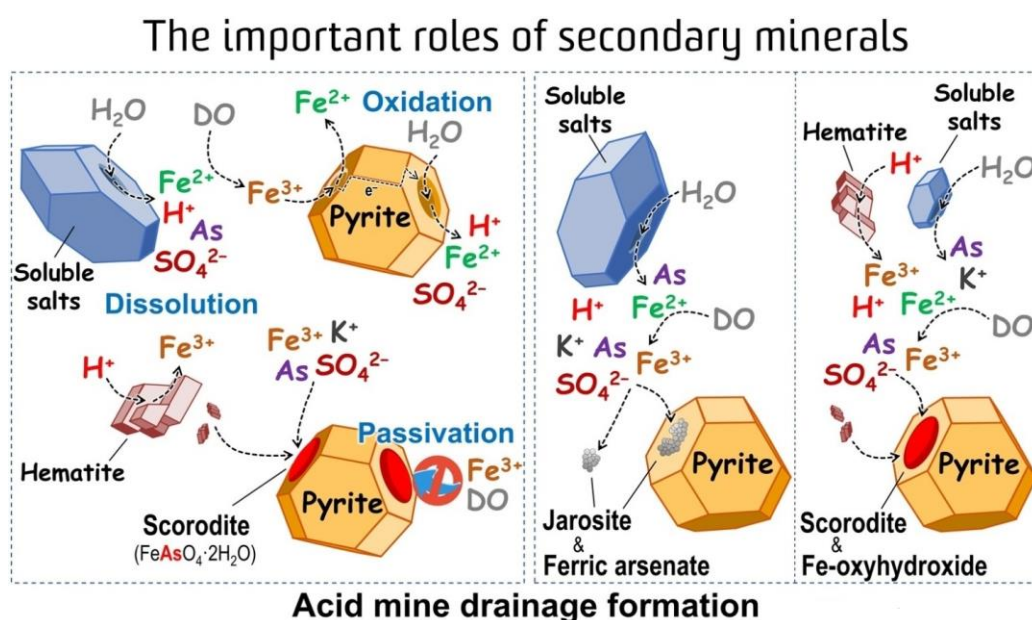


Figure 2.2 Exemple de formation des phases secondaires (Tiré Carlito Baltazar et al., 2020).

Les travaux de Carlito Baltazar (2020) ont démontré les rôles cruciaux joués par les phases minérales secondaires formées lors de l'altération naturelle des rejets miniers contenant de la pyrite, des sels solubles (mélantérite, $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) et oxydes métalliques (hématite, Fe_2O_3) sur la formation de DMA et la mobilité de l'As (Figure 2.2). La mobilité de l'As dans des conditions acides était limitée par sa précipitation sous forme d'arséniate ferrique, de scorodite ou de phase arséniate Fe/Al, y compris sa forte adsorption sur les oxyhydroxydes de Fe.

2.2.6 Drainage neutre contaminé

Un autre genre de contamination appelée drainage neutre contaminé (DNC), parfois appelée lixiviation des métaux (Plante et al., 2014) est un drainage qui a un pH neutre, mais dans lequel on retrouve les métaux en concentrations élevées. La solubilité de nombreux métaux à des pH proches de la neutralité est généralement faible, tels que le fer (Fe), l'aluminium (Al) (Moncur et al., 2005; Lindsay et al., 2009; Roy, 2019), mais certains restent mobiles même à des valeurs de pH neutres et à des concentrations élevées dans les lixiviats de drainage, tels que, le cobalt (Co), manganèse (Mn), nickel (Ni), plomb (Pb), cadmium (Cd) et zinc (Zn) (Plante, 2014; Moncur et al., 2005; Lindsay et al., 2009). Plusieurs processus peuvent mener au DNC (Bussière et al., 2005; Ethier, 2011; Plante 2010, 2014; Pétel, 2017).

- a. Suite à la diminution des valeurs du pH, l'oxydation des sulfures générateurs d'acide, provoque la lixiviation d'autres phases minéralogiques riches en métaux présents dans les rejets miniers. Cependant, des minéraux neutralisants également présents dans le milieu sont capables de maintenir le pH proche de la neutralité. Ceux-ci peuvent être des carbonates et des silicates qui neutralisent l'acidité produite en libérant des ions neutralisants comme le magnésium (Mg), calcium (Ca) et manganèse (Mn) (Benzaazoua et al., 2004; Ethier, 2011; Plante, 2014).
- b. Le DNC peut aussi être engendré par l'oxydation de minéraux sulfureux non générateurs d'acide comme la chalcopryrite, la sphalérite et la galène, (Plante et al., 2011) sans acidification du milieu, provoquant ainsi la libération respectivement du cuivre, du zinc et du plomb et (Stantec, 2004; Villeneuve, 2004; Bussière et al., 2005; Roy, 2019).
- c. Le DNC peut aussi être généré à partir des résidus qui sont entreposés sous un recouvrement en eau. Cette méthode de contrôle de drainage minier acide peut provoquer une mise en solution de certains métaux (Stantec, 2004; Bussière et al., 2005; Plante 2010, 2014).

2.3 Prédiction des cinétiques du drainage minier acide

Deux types d'essais sont utilisés pour évaluer le comportement géochimique des rejets miniers et leur potentiel de génération de DMA. L'objectif des tests statiques est d'examiner l'équilibre entre la production d'acide et les réactions neutralisantes en faisant un bilan entre le potentiel de génération d'acide (PA) et de sa neutralisation (PN). Ces tests sont couramment utilisés pour classer les rejets miniers comme générateurs d'acide ou non, en se basant sur le Pouvoir net de

neutralisation ($PNN=PN-PA$) et/ou le rapport PN/PA (Plante et al., 2015). Les essais cinétiques consistent à soumettre les rejets miniers à une oxydation contrôlée (et parfois accélérée) au laboratoire (Plante et al., 2012; Bouzahzah et al., 2015), et renseignent sur les taux des réactions d'oxydation et de neutralisation ainsi que les taux de libération de contaminants potentiels.

2.3.1 Essais statiques

Le principe général des essais statiques consiste à faire un bilan du potentiel de génération d'acidité (PA) et du potentiel de neutralisation (PN) du rejet minier étudié (MEND, 2009). Les minéraux sulfureux sont considérés comme les principaux générateurs d'acide (acidogènes), alors que les carbonates et les silicates sont identifiés comme les deux principales familles de minéraux neutralisants ou acidivores (Blowes et al., 2003; Bouzahzah, 2006; Bouzahzah, 2008; Bouzahzah et al., 2015). Ces essais statiques n'offrent aucune information quant aux vitesses des réactions (Bussière et al., 1999). Ce type d'essai ne peut pas être utilisé pour des matériaux géologiques avec une teneur en soufre inférieur à 0,04% (MELCC, 2020) ils peuvent être considérés comme non générateur d'acide. Différentes variantes de tests statiques peuvent être utilisées :

- Essais statiques chimiques:
 - ✓ Sobek modifié par Lawrence et Wang (1997).
 - ✓ Méthode du carbone inorganique.
 - ✓ Day et al. (1997) Kwong modifié par Li (1997).
 - ✓ Méthode statique de génération d'acide, ou NAG test.
- Essais statiques minéralogiques:
 - ✓ Kwong (1993).
 - ✓ Lapakko (1994).
 - ✓ Lawrence et Scheske (1997).
 - ✓ Paktunc (1999a et 1999b).

Les détails sur le principe et le mode opératoire des différents tests statiques sont disponibles dans différents documents (Price, 2009; Bouzahzah, 2013; Bouzahzah et al., 2014b).

Une approche multidisciplinaire de caractérisation et complète des rejets miniers est généralement nécessaire, elle est réalisée par une analyse par diffraction aux rayons X (DRX), microscopie optique et électronique, chimie totale et le calcul de la stœchiométrie des minéraux. L'analyse, l'interprétation et la synthèse de toutes ces données permettent d'avoir une caractérisation

minéralogique la plus précise possible des rejets miniers, et par conséquent choisir le test statique le plus approprié (Bouzahzah et al., 2014a, b).

2.3.2 Essais cinétiques

L'objectif des essais cinétiques est de déterminer avec plus de précision le potentiel de génération d'acide d'un rejet et/ou matériel géologique ainsi que l'évolution de la qualité des eaux de drainage en fonction du temps en simulant des conditions d'oxydation plus représentatives des conditions de terrain (Villeneuve, 2004; Benzaazoua et al., 2001, 2004; MEND, 2009; Villeneuve et al., 2009). Par contre ils sont plus coûteux, et nécessitent plusieurs semaines à plusieurs mois d'essais. Les principaux essais cinétiques employés sont (Villeneuve, 2004):

- Cellule humide D5744 (ASTM 2013).
- Essais en colonne (Demers et al., 2011; Larochelle et al., 2019).
- Flacons agités (Bouzahzah et al., 2015).
- Mini-cellules d'altération (Villeneuve et al., 2009).

Les essais cinétiques consistent généralement à lessiver périodiquement un échantillon et à analyser les lixiviats (pH, ORP, conductivité électrique, acidité, alcalinité, concentrations en métaux). Les essais cinétiques servent au calcul des taux d'oxydation et de dissolution, renseignent sur la composition chimique des effluents, permettent d'évaluer les réactions de précipitation secondaire qui peuvent avoir lieu et par conséquent une prédiction de DMA plus précise. Chaque type d'essais possède des avantages et des inconvénients, et le choix de l'essai le plus approprié dépend des objectifs de l'étude.

En revanche, les ratios L/S utilisés durant les essais cinétiques au laboratoire sont différents des ratios L/S du terrain. Les essais cinétiques du laboratoire vont simuler seulement un écoulement hydrique vertical (1D). Par conséquent, le bilan hydrique, les conditions climatiques et biologiques du terrain ne peuvent pas être reproduites au laboratoire. D'ailleurs, plusieurs auteurs ont remarqué des différences de comportements géochimiques pour les mêmes matériaux testés au laboratoire et sur le terrain (Banwart et al., 2002; Plante et al., 2014).

2.3.2.1 Essai cinétique en cellule humide

Contrairement aux autres tests cinétiques, l'essai cinétique en cellule humide est normalisé par la norme (ASTM D5744, 2013). C'est l'essai cinétique le plus pratiqué par les compagnies minières (Bouzahzah et al., 2015). Demers et al. (2008) et Hamdi et al. (2011) ont observé des résultats différents en termes de réactivité pour les mêmes échantillons soumis à des tests en duplicata. et ont montré que les rejets étaient plus réactifs pour un degré de saturation compris entre 20 et 80 %, et moins réactif autrement (Bouzahzah et al., 2015). Des changements de l'essai ont donc été présentés par (Bouzahzah et al., 2010) qui consiste à éviter le dessèchement de l'échantillon avec ajout d'eau déionisée pendant l'étape d'injection d'air sec et en maintenant un degré de saturation optimal entre 40 et 60% afin d'assurer une réactivité maximale. La durée des essais en cellule humide est variable; elle est comprise entre 20 et 40 cycles de rinçage ou plus. Le test se termine lorsque l'objectif de l'essai est atteint et les résultats sont stabilisés durant les derniers cycles. La norme (ASTM 5744-96, 2013) décrit les différentes étapes de l'essai.

2.3.2.2 Essai cinétique en colonne

Bien que les essais cinétiques en colonne ne soient pas normalisés, les recommandations de la conception de ces tests sont fournies dans la norme ASTM D4874 (ASTM 2006), peuvent être adaptés selon les objectifs recherchés. Les colonnes peuvent être instrumentées afin de mesurer les teneurs en eau, les succions et les concentrations d'oxygène en plusieurs points (Demers et al., 2011; Bouzahzah et al., 2015); des ports de prélèvement des gaz et des eaux interstitielles peuvent aussi être installés. Les colonnes n'ont pas de dimension standard et la masse des échantillons peut varier de 1 à plusieurs dizaines de kilogrammes (Aubertin, 2002a; Larochelle et al., 2019). De l'eau distillée ou de l'eau météorique sont ajoutées régulièrement au sommet de la colonne, et sont récupérées au bas de la colonne (Figure 2.3). Les essais en colonnes peuvent aussi être utilisés pour tester les scénarios de restauration (Dagenais, 2005 ; Demers, 2008; Pabst, 2011; Awoh, 2012).

Les tests cinétiques en colonne sont reproductibles quand une méthodologie stricte est élaborée (Demers et al., 2011). Benzaazoua et al. (2001, 2004) ont comparé les résultats d'essais en cellules humides aux résultats des essais en colonnes pour différents échantillons. De façon générale, les auteurs ont remarqué que le potentiel d'oxydoréduction semblait plus élevé dans les cellules humides, confirmant qu'il s'agissait d'un milieu plus oxydant. La diminution du pH en fonction du

temps dans les colonnes est généralement moins rapide, la précipitation de phases minéralogiques secondaires dans les essais en cellule est moins importante et la mise en solution des minéraux est plus rapide.

Les essais cinétiques en colonnes peuvent être effectués sur de roches stériles, des résidus miniers, ainsi qu'un mélange des deux rejets. Les résultats de Wickland et al., (2009) démontrent que le mélange des roches stériles et les résidus miniers peut engendrer des dépôts denses avec des conductivités hydrauliques inférieurs à ceux des stériles seuls, ceci a permis de réduire les flux à travers le mélange des rejets et par conséquent, le potentiel de génération de drainage minier acide. La stabilité géotechnique et géochimique des rejets mixtes est améliorée (Wickland et al., 2009).

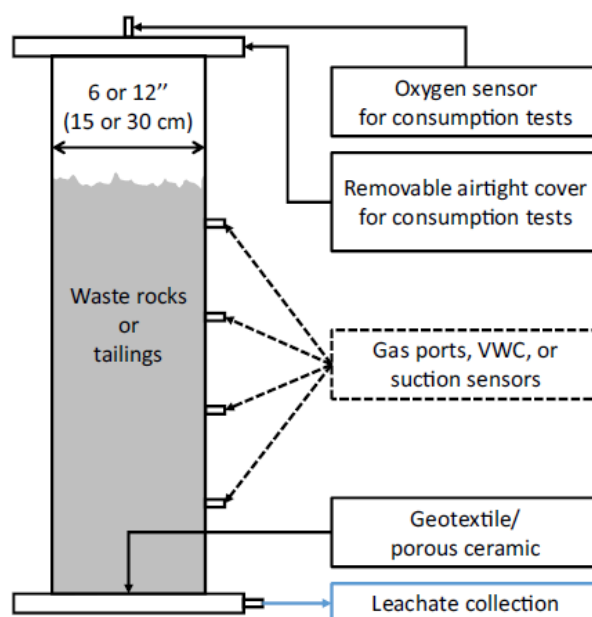


Figure 2.3 Configuration d'un test en colonne avec les principales composantes (Hard Rock Mine Reclamation, 2021).

Les essais cinétiques permettent d'étudier l'évolution des charges cumulées en calcium, magnésium et manganèse, en fonction des charges cumulées en sulfate, ce qui permet d'obtenir les courbes d'oxydation-neutralisation (Awoh et al., 2014; Benzaazoua et al., 2004; Bouzahzah et al., 2014a; El Adnani et al., 2016). Les espèces utilisées sont les sulfates qui représentent le principal produit d'oxydation des sulfures et la somme de Calcium + Magnésium + Manganèse, qui représente les produits de dissolution des carbonates. L'extrapolation de la courbe d'oxydation-neutralisation permet de déterminer si l'échantillon est potentiellement générateur d'acide

(Benzaazoua et al., 2002, Villeneuve, 2004). Ils permettent aussi de calculer les taux d'épuisement des éléments associés aux minéraux neutralisants et celui de l'épuisement du soufre (Bussière et al., 2004).

Plus il y a de mesures lors d'un essai cinétique, plus c'est facile de l'interpréter (mais plus les coûts reliés au test sont cependant importants). Ainsi, la modélisation géochimique vient compléter les prédictions sur le comportement géochimique d'un matériau quelconque. Les modèles numériques de transport réactif permettent de simuler les comportements à très long terme de systèmes complexes. En se basant sur les résultats de ces essais cinétiques, des simulations numériques de transport réactif peuvent être calibrées et par la suite utilisées pour tester divers scénarios (Pabst, 2011 ; Demers et al., 2013).

2.3.3 Simulations numériques de transport réactif

La capacité à prévoir précisément l'évolution de la qualité des eaux de drainage et la migration des contaminants constitue un des éléments critiques dans la compréhension et la minimisation des risques liés à la restauration des sites (Mayer et al., 2003; Molson et al., 2004). La géochimie des rejets est un ensemble complexe de réactions d'oxydoréduction, de dissolution et de précipitation de minéraux. La prédiction du DMA nécessite généralement d'utiliser des outils de modélisation numériques pour étendre l'analyse à des conditions de terrain et d'évaluer le comportement des résidus réactifs à long terme. L'utilisation de logiciels géochimiques et ou de transport réactif est ainsi de plus en plus fréquente dans ce type d'étude (Amos et Mayer, 2006; Pabst et al., 2017; Javadi, 2019; Kalonji et al., 2020).

Un des avantages de la modélisation numérique est que plusieurs scénarios peuvent être simulés et testés. En se basant sur des paramètres représentatifs du système et modèle conceptuel précis, les résultats des simulations se rapprochent généralement des études expérimentales et des observations de terrain (Ouangrawa et al., 2009; Pabst, 2011; Vandenberg, 2011; Pabst et al., 2017). Plusieurs logiciels commerciaux ou de recherche existent pour réaliser des modélisations géochimiques. Le choix du type de modèle dépend des objectifs de la modélisation et des données disponibles (Maest, 2005). Parmi les modèles disponibles, PHREEQ C3 (Parkhurst et Appelo, 2013), PFLOTRAN (Lichtner et al. 2018a; Trinchero et al., 2018), et MIN3P (Mayer, 1999 ; Mayer et al., 2002) sont fréquemment employés pour les études hydrogéochimiques dans le domaine minier.

Le modèle Min3P a été employé dans plusieurs études et permis une fois calibré de bien reproduire les mesures expérimentales de laboratoire et de terrain (Demers et al., 2010b; Pabst, 2011 ; Pabst et al., 2017; Javadi et al., 2019; Raymond et al., 2020). Récemment, ce code a été utilisé par seigneur et al. (2021) pour simuler et interpréter les processus qui affectent la quantité et la qualité du drainage des stériles de la mine d'Antamina au Pérou (Tableau 2.2).

Tableau 2.2 Liste de certains travaux qui ont utilisé le code MIN3P.

Publication	Auteurs, Année
Modeling of Thermal-Hydrological-Chemical (THC) processes during waste rock weathering under permafrost conditions.	Yi, X., Su, D., Seigneur, N., & Mayer, K. U. (2021).
Numerical Modeling of a Laboratory-Scale Waste Rock Pile Featuring an Engineered Cover System.	Raymond, K.E., Seigneur, N., Su, D., Poaty, B., Plante, B., Bussière, B., Mayer, K.U. (2020).
Reactive transport modeling of unsaturated hydrology and geochemistry of neutral and acid rock drainage in highly heterogeneous mine waste rock at the Antamina.	Javadi, M. (2019).
Diavik waste rock project: A conceptual model for temperature and sulfide-content dependent geochemical evolution of waste rock–Laboratory scale.	Wilson, D., Amos, R. T., Blowes, D. W., Langman, J. B., Ptacek, C. J., Smith, L., & Sego, D. C. (2018).
Reactive transport modelling of the hydro-geochemical behaviour of partially oxidized acid-generating mine tailings with a monolayer cover.	Pabst, T., Molson, J., Aubertin, M., & Bussière, B. (2017).
Numerical modeling of contaminated neutral drainage from a waste-rock field test cell.	Demers, I., Molson, J., Bussière, B., & Laflamme, D. (2013).
Reactive transport modelling of mine tailings columns with capillarity-induced high water saturation for preventing sulfide oxidation.	Ouangrawa, M., Molson, J., Aubertin, M., Bussière, B., Zagury, G.J., (2009).
Reactive transport modeling of column experiments for the remediation of acid mine drainage.	Amos, R. T., Mayer, K. U., Blowes, D. W., & Ptacek, C. J. (2004).

Logiciel Min3P

Le code Min3P est un modèle de transport et d'écoulement en 1D, 2D, 3D (Mayer, 2000; Mayer et al., 2002). Il prend en considération l'écoulement en milieu saturé et non saturé, les réactions chimiques, les processus de transport des gaz par diffusion, dispersion et advection, ainsi que l'équilibre solide-liquide-gaz. Les réactions géochimiques prise en considération par le logiciel sont la dissolution et la précipitation, l'hydrolyse, la complexation, les échanges ioniques et la dissolution de gaz dans la phase aqueuse. Le code Min3P a été déjà utilisé dans plusieurs projets pour simuler la génération et le traitement du drainage minier acide (Mayer, 2000; Mayer et al., 2002; Ouangrawa, 2007; Demers, 2008; Pabst, 2011; Wilson et al., 2018; Javadi et al., 2019; Raymond et al., 2020).

2.3.3.1 Les équations d'écoulement

L'équation de l'écoulement de l'eau à saturation changeante est basée sur l'équation de Richard (1931) et les hypothèses d'un fluide incompressible et de l'absence de convection (Neuman, 1973). L'équation de conservation de la masse du fluide peut être écrite comme suit (Su, Xie et Mayer., 2018):

$$S_r S_s \frac{\partial h}{\partial t} + n \frac{\partial S_r}{\partial t} - \nabla x [K_r \bar{K} \nabla h] - Q_a = 0 \quad (2.8)$$

Avec,

S_r : degré de saturation [$L^3 L^{-3}$].

S_s : coefficient spécifique de stockage [L^{-1}].

h : charge hydraulique [L].

t : temps [T].

n : porosité [$L^3 L^{-3}$].

Q_a : paramètre [T^{-1}].

K_r : conductivité hydraulique relative du milieu poreux.

$\bar{K}$: tenseur de conductivité hydraulique saturée [LT^{-1}].

Le degré de saturation effectif est défini dans le code MIN3P par l'équation de van Genuchten (1980):

$$S_{re} = \frac{S_r - S_{rr}}{1 - S_{rr}} = (1 + (\alpha_v \psi^{nvG})^{-m_{vG}}) \quad (2.9)$$

S_{re} : degré de saturation effectif.

S_{rr} : degré de saturation résiduel.

La perméabilité relative est définie dans MIN3P par Mualem (1976) et van Genuchten (1980) et elle s'écrit comme suit :

$$K_r = S_{re}^\lambda \left(1 - \left(1 - S_{re}^{1/mvG} \right)^{mvG} \right)^2 \quad (2.10)$$

λ : Degré de connectivité des pores.

2.3.3.2 Les équations de transport

La simulation du transport réactif comprend la solution simultanée du transport advectif et dispersif des espèces dissoutes, le transport diffusif de gaz et les contributions des réactions géochimiques impliquant des espèces aqueuses, gazeuses et minérales (Lichtner, 1996a) :

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle S_r n T_j^w \rangle + \frac{\partial}{\partial t} \langle S_g n T_j^g \rangle + \nabla \langle q_w T_j^w \rangle - \nabla \langle S_r n D_w \nabla T_j^w \rangle - \nabla \langle S_g n D_g \nabla T_j^g \rangle - \sum Q_j^w = 0 \quad (2.11)$$

Avec,

S_g : saturation en gaz (-)

T_j^w : concentration dans la phase aqueuse du composé j (M.L⁻³)

T_j^g : concentration dans la phase gazeuse du composé j (M.L⁻³)

q_w : vitesse de Darcy (L T⁻¹)

D_w : coefficient de dispersion en phase aqueuse (L²T⁻¹)

D_g : coefficient de dispersion en phase gazeuse (L²T⁻¹)

Q_j^w : paramètres de débit source ou fuite (L³T⁻¹)

La variation de la masse minérale dans le temps peut s'écrire (Steefel et Lasaga, 1994) :

$$\frac{\partial \varphi_i}{\partial t} = V_i^m \cdot R_i^m \quad (2.12)$$

Avec: $i = 1, N_m$

φ_i : fraction volumique du minéral i (-)

V_k^m : volume molaire du minéral i (-)

R_k^m : taux de dissolution-précipitation du minéral i (Mol. L⁻³. T⁻¹)

N_m : nombre de minéraux.

2.3.3.3 Mouvement des gaz et effet du pH

Le transport d'oxygène à travers un milieu poreux partiellement saturé est décrit dans MIN3P par la loi de Fick. Le code peut être modifié pour tenir compte des processus de diffusion à deux phases (eau et gaz), selon la formulation proposée par Aachib et al., 2004 (Pabst et al., 2017):

$$D_P = \frac{1}{n^2} (D_p^0 \cdot \theta_p^{3.4}) \quad (2.13)$$

Avec,

p : phase (air ou eau).

D_p^0 : coefficient de diffusion d'oxygène dans la phase libre p (m² s⁻¹).

$\theta_p^{3.4}$: teneur volumique en eau et en air sans dimension.

Lorsque le pH est inférieur à 3,5 le fer ferrique Fe (III) peut devenir le principal oxydant des sulfures métalliques suite à l'oxydation indirecte (équation 2.5) (Blowes et al., 2013). Ces aspects ne sont pas inclus dans le code MIN3P. La réactivité de la pyrite peut être calibrée sur la base des résultats des essais en colonne, en tenant compte des réactions d'oxydation directe et indirecte au même temps (Pabst et al., 2017). Dans ce cas, les taux de réaction d'oxydation de la pyrite sont plus élevés que dans d'autres travaux qui ont étudié des sulfures frais (par exemple Molson et al., 2008; Ouangrawa et al., 2009; Demers et al., 2013a).

2.4 Remblayage des fosses avec les rejets miniers

Au Québec, depuis janvier 2014, l'exploitant minier doit payer une taxe pour chaque tonne de rejets exposé en surface dans les plates formes d'accumulation. Par cette action le ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques (MDDELCC) souhaite encourager les compagnies minières à réduire la quantité de rejets miniers déposés en surface et à maximiser leur valorisation (MDDELCC, 2014). L'objectif général est de réduire l'empreinte environnementale des activités minières en développant des approches de gestion de rejets rationnelles et responsables (MDDELCC, 2014). Dans certains cas le remplissage total ou partiel des fosses avec des rejets miniers (p.ex., résidus, stériles ou boues de traitement) est considéré par le ministère comme une méthode de valorisation des rejets miniers (MDDELCC,

2014). Cependant, pour que le remblayage d'une fosse soit acceptable, l'exploitant doit obtenir un certificat d'autorisation de la part du MDDELCC (Charbonneau, 2014). Certaines études doivent être réalisées pour que le certificat d'autorisation soit délivré, notamment, la caractérisation des rejets et l'étude de leurs impacts sur la qualité des eaux souterraines (Jalbert, 2014).

Au Québec, le remblayage des fosses est considéré comme une méthode de valorisation, quand ces deux conditions sont respectées (Directive 019) :

- « La valorisation des résidus miniers est incluse dans le plan de réaménagement et de restauration qui a été approuvé par le MERN ».
- « Les résidus doivent être à faible risque selon les dispositions de la Directive 019 ou de catégorie I et II du Guide de valorisation des matières inorganiques non dangereuses de source industrielle comme matériau de construction ».

2.4.1 Avantages du remblayage des fosses

Le remblayage des fosses des mines à ciel ouvert est déjà employé dans quelques projets miniers au Canada et ailleurs à travers le monde. Cette approche a fait l'objet, au cours des dernières années, d'un intérêt grandissant (MEND, 2015). Les fosses peuvent être remblayées sur toute la hauteur pour maximiser la quantité de rejets entreposés, mais l'ajout d'un recouvrement pour éviter l'oxydation des rejets réactifs au-dessus du niveau phréatique est nécessaire (Bussière et Guittonny, 2020). Lorsque le remblayage de la fosse est partiel et concerne seulement la partie située en dessous du niveau phréatique un recouvrement en eau est créé naturellement (McCullough et al., 2013).

La fosse peut être remblayée par les résidus, les stériles ou les deux. Des stratégies de co-disposition peuvent être choisies pour entreposer des rejets de concentrateurs et des roches stériles en même temps. D'ailleurs, les travaux de cette thèse vont étudier ce dernier cas.

A la mine de Kimheden (Suède), la fosse a été remblayée qu'avec des stériles miniers et recouvert d'une couverture de type barrière à l'oxygène (Villain et al., 2015), à la mine Whistle en Ontario (Ayres et al., 2012) la totalité des 6 millions de tonnes de roches stériles génératrices d'acide ont été remblayés, puis recouverts par une barrière à l'oxygène et à l'eau de type CEBC (MEND, 2015).

Les avantages anticipés d'une telle approche sont nombreux (MEND, 2001; Puhlovich et Coghil, 2011):

Aspects géotechniques et physiques : Renforcement de la stabilité des murs des fosses, réduction de la maintenance à long terme des ouvrages de confinement, immobilisation physique de manière permanente des rejets ce qui diminue les risques associés aux instabilités géotechniques des structures d'entreposage (MEND, 2001; Puhlovich et Coghil, 2011).

Aspects économiques et sociétaux : Meilleure acceptabilité sociale des projets miniers grâce à un meilleur confinement des rejets et l'amélioration de l'esthétique du site lors de la fermeture. L'utilisation des fosses peut être une exigence réglementaire dans certains cas (par exemple pour les mines d'uranium en Saskatchewan, au Canada) (MEND, 2001 ; MEND, 2015; Puhlovich et Coghil, 2011).

Aspect environnemental : Amélioration de la stabilité géochimique des rejets miniers en isolant chimiquement les rejets réactifs de l'atmosphère dans des structures géologiques stables (Castendyk et Eary, 2009). La technique permettrait également de réduire le nombre de digues, construites et les risques liés aux déversements des résidus seront réduits.

2.4.2 Limitations et contraintes du remblayage des fosses

Plusieurs contraintes liées aux aspects hydrologiques, géochimiques, géotechniques et d'autres aspects relatifs pour chaque site peuvent cependant rendre le remblayage des fosses plus complexe en pratique (MEND, 2015) :

- Limitations opérationnelles : Pour des raisons sécuritaires, une fosse ne peut être utilisée pour l'entreposage des rejets miniers que lorsque l'exploitation minière est terminée et que les ressources minérales sont épuisées. Ceci nécessite des installations de stockage temporaires augmentant ainsi les risques environnementaux et les coûts d'exploitation (MEND, 2015; Rimélé et al., 2018). Parmi les défis opérationnels liés au remblayage des fosses est la « stérilisation » de la ressource qui peut limiter tout développement futur de récupération et retraitement de ces gisements potentiels autrefois considérés comme non rentables. L'engouement actuel sur les métaux dits critiques et stratégiques poussé par la transition énergétique a provoqué l'augmentation des cours des matières premières ce qui pourrait rendre ses ressources économiquement viables et exploitable.

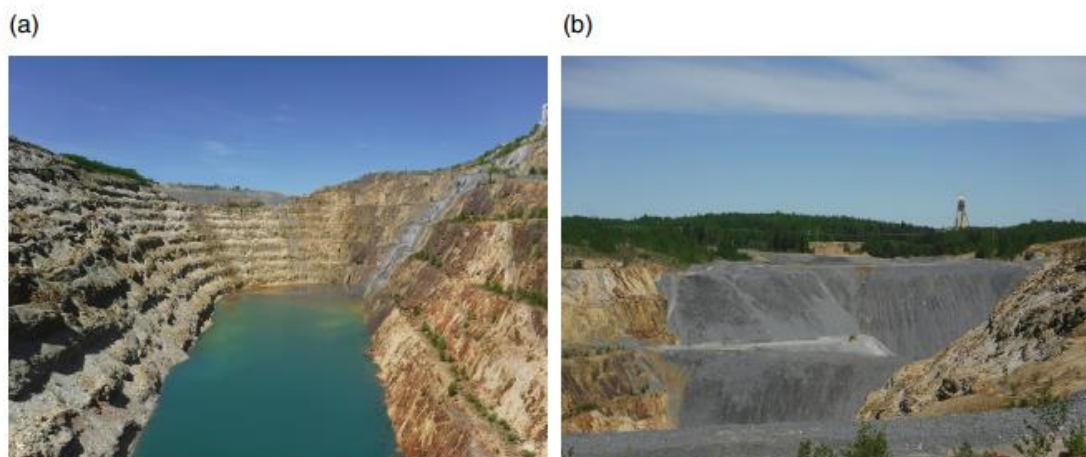


Figure 2.4 (a) Dépôt des résidus en fosse de la mine Westwood (IAMGOLD) et (b) Stériles (à droite) dans l'ancienne fosse de la mine Doyon. Les résidus sont directement évacués de la surface de la fosse.

- Limitations hydrologiques et géochimiques : la mise en solution des métaux et la production d'acide peuvent être accentuées par une variation saisonnière des niveaux d'eau dans les rejets réactifs déposés dans la fosse. En effet l'entreposage des rejets peut se faire dans des conditions sèches, lorsque la nappe phréatique est basse, cette technique est notamment employée à la mine Kimheden (Suède). Ce type de déposition même avec recouvrement a été remis en question à cause de la poursuite de l'oxydation des stériles miniers (Villain et al., 2015). Également l'entreposage des rejets peut se faire en conditions saturés (Bussière et Guittonny, 2020) lorsque la nappe phréatique est assez élevée, cette technique est employée à la mine de Don Rouyn où 700 000 mètres cubes de résidus réactifs riche en sulfures sont entreposés sous le niveau phréatique et une couverture en eau a été utilisée afin de limiter la diffusion d'oxygène (Awoh et al., 2013). En effet certaines méthodes d'entreposage des rejets dans les fosses ont été proposées (ajout de chaux ou de calcite) afin d'assurer leurs stabilité géochimique (Ayres et al., 2012) en les conservant dans des conditions permettant de contrôler leurs réactivité (MEND, 2015). Les parois de la fosse, fracturées et exposées, peuvent aussi présenter un potentiel de génération de DMA. Les rejets situés au-dessus du niveau phréatique pourraient également être oxydés par l'oxygène atmosphérique à travers le roc fracturé, même après la construction d'un recouvrement au-dessus des rejets (Villain et al., 2015; Dragila et al., 2015). Des tassements différentiels peuvent être entraînés suite à la consolidation des rejets (Essayad, 2015; Saleh Mbemba, 2016;

Boudrias, 2018) entreposés dans les fosses et altérer par la suite la performance des recouvrements en surface qui visent à limiter les interactions avec l'atmosphère (Bussière et Guitttonny, 2020).

2.4.3 Concept et approches de remblayage des fosses avec des rejets miniers

Chaque projet de remblayage représente un cas particulier en fonction de la géométrie de la fosse, de la géologie du massif rocheux et des conditions hydrogéologiques et géochimiques autour et dans la fosse (Castendyk et Eary, 2009). Une bonne connaissance de l'hydrogéologie locale et régionale et une étude des effets du remblayage de la fosse sur les eaux souterraines régionales sont nécessaires à la planification de la disposition dans les fosses, cela inclut des études hydrogéologiques, géotechniques et géochimiques associées à des modèles de prédictions (Ben Abdelghani et al., 2015).

La stratégie habituelle de remblayage des fosses consiste à déposer les résidus directement depuis la surface sous forme de pulpe et sont donc soumis à la consolidation et aux déformations à long terme (Levesque, 2019). Les résidus, initialement lâches, se consolident et l'excès d'eau est principalement évacué vers la surface des rejets. Le tassement dans une fosse remblayée peut être important, notamment en raison de l'épaisseur des résidus déposés qui parfois peut dépasser plusieurs centaines de mètres (Puhlovich and Coghill, 2011). La géométrie de la fosse et la présence de bancs peuvent également induire des tassements différentiels (Puhlovich et Coghill 2011). L'élimination en fosse des résidus filtrés ou épaissis peut résoudre une grande partie de ces problèmes, mais augmente considérablement les frais de fonctionnement (Mise en place d'un épaisseur ou filtre à bande). Les rejets peuvent être déposés sous forme de gâteau avec moins de 15% d'eau en pâte avec une teneur en eau entre 15 et 30% ou épaissis avec une teneur en eau entre 30 et 55% (Martin, 2018).

L'une des options de remblayage des fosses (utilisation de structures d'ingénierie) consiste à installer des drains au fond et sur les parois de la fosse (MEND, 2015) pour accélérer la consolidation des résidus et minimiser la conductivité hydraulique réduisant par la suite le flux d'eau souterraine qui traverse les rejets (Figure 2.5). Le système de drainage peut se composer de plusieurs couches constituées de roches concassées ou de sable. (Cameco, 2010 ; MEND, 2015).

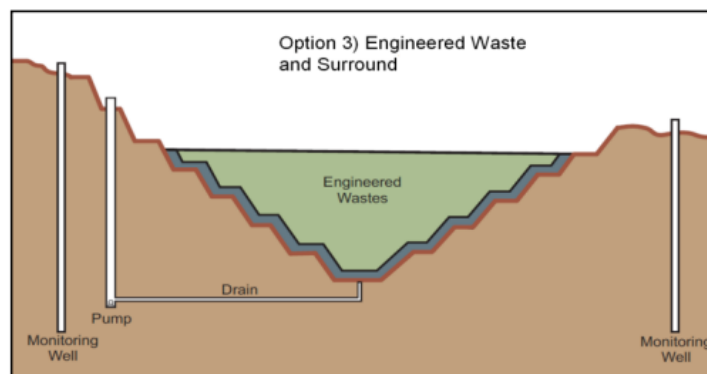


Figure 2.5 Présentation d'une disposition des rejets avec conception d'un système de drainage (Tiré de MEND, 2015). Déviation latérale du drain qui permet d'acheminer les eaux d'infiltration des résidus dans le puit de collecte puis pompées vers l'extérieur.

La technique de l'enveloppe perméable est une autre méthode utilisée pour contrôler les échanges avec le milieu environnant en réduisant l'écoulement au sein de la fosse et minimisant la dispersion de contaminants depuis la fosse vers l'environnement. Elle consiste à placer à la périphérie de la fosse une couche de matériau plus perméable que les rejets remblayés afin de réduire les interactions avec l'eau souterraine (Figure 2.6; Rousseau, 2019). Cette technique a notamment été utilisée pour le site Rabbit Lake, en Saskatchewan où une couche de gravier et de sable ont été utilisées pour limiter le flux advectif et diffusif de l'uranium depuis les résidus vers le milieu environnant (Rabski et Belfadhel, 2000). La présence de l'enveloppe diminue donc les gradients hydrauliques et les débits à travers les rejets par rapport à la situation sans enveloppe. La couche de sable employée dans l'enveloppe perméable sert également à limiter le transport des contaminants par diffusion (Thériault, 2004 ; MEND, 2015).

Cette technique n'est efficace que lorsque la conductivité hydraulique de l'enveloppe perméable est au moins 100 fois plus élevée que celle des rejets (Rousseau et Pabst, 2018). Notamment, elle repose sur l'existence d'un contraste de perméabilité entre les rejets et les matériaux de l'enveloppe, plus le ratio entre la perméabilité de l'enveloppe et des rejets est grand, plus la technique de l'enveloppe perméable est efficace (Ben Belfadhel, 2000; Thériault, 2004; Rousseau et Pabst, 2018). Ainsi, la diminution de la conductivité hydraulique des résidus permet d'augmenter l'efficacité de la technique.

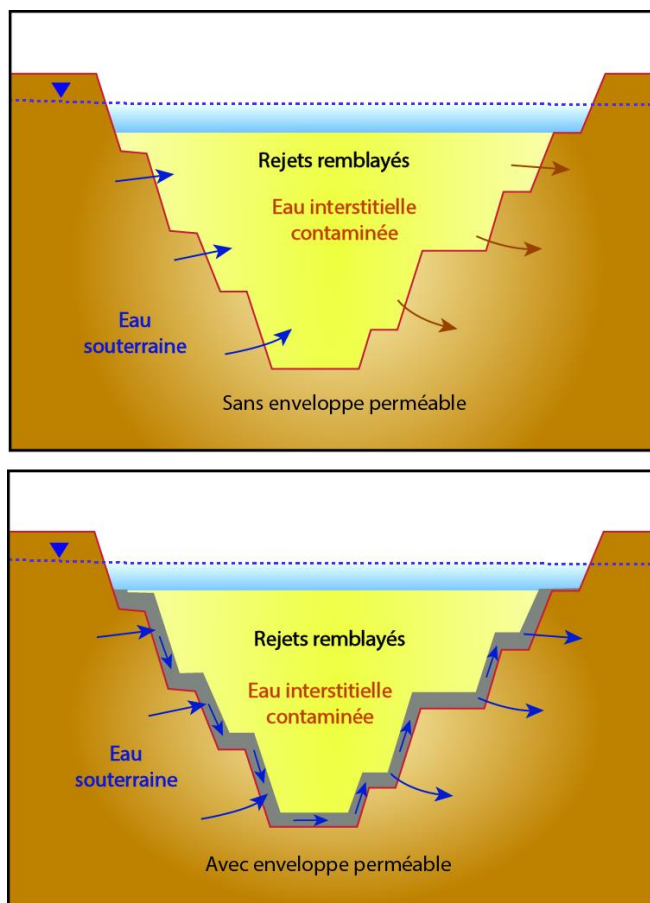


Figure 2.6 Concept d’une enveloppe perméable (a) Sans enveloppe perméable, l’eau souterraine circule à travers les rejets remblayés et contribue à disperser des contaminants dans l’environnement (b) avec enveloppe perméable, l’eau souterraine est déviée autour des rejets (adapté; Rousseau, 2019).

Lorsque les rejets sont moins perméables que le massif rocheux fracturé, l’écoulement régional contourne naturellement la fosse et il n’est généralement pas nécessaire d’utiliser une enveloppe perméable (Belfadhel, 2000 ; Thériault, 2004). La conductivité hydraulique des résidus peut également être réduite dans ce but, notamment en augmentant et en accélérant la densification des rejets. Par exemple, une couche de sable peut être installée à la base des résidus au fond de la fosse favorisant ainsi le drainage et la consolidation (Thériault, 2004 ; MEND, 2015).

Quand les rejets ont un fort potentiel d’acidification, l’ajout d’un agent neutralisant pendant le remblayage peut être nécessaire. Par exemple la mine Whistle était une mine à ciel ouvert à base

de nickel-cuivre qui a utilisé ce type de remblayage (Ayres et al., 2005), son potentiel de production d'acide était environ 44 kg $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{t}$. L'agent neutralisant utilisé au cours de ce projet a été ajouté aux rejets pendant le remblayage à un taux moyen de 1,8 kg/t pour minimiser la génération du drainage minier acide. Au total 11 462 tonnes de chaux ont été ajoutées pour neutraliser l'acidité produite (Ayres et al., 2012). Le traitement alcalin des rejets remblayés n'a été que peu utilisé en pratique suite aux entrées continues d'afflux acide dans la fosse (Lu, 2004 ; MEND, 2015).

2.5 Fermeture et restauration des fosses

Le confinement des rejets remblayés dans les fosses doit être conçu afin de limiter la génération du DMA et éviter la contamination du milieu environnant. Des systèmes de recouvrements similaires aux recouvrements conventionnels (voir section ci-dessous) peuvent généralement être adaptés à la restauration des fosses remblayées (MEND, 2004, 2015). Leur objectif reste le même que pour les aires d'entreposage en surface, à savoir réduire la formation et le transport du DMA (Gammons, 2009).

2.5.1. Couverture en eau

Lorsque ce type de recouvrement est choisi pour assurer la stabilité des résidus miniers générateurs de DMA (ou DNC), l'exploitant doit prendre en considération les valeurs conservatrices des facteurs de sécurité recommandés comme la période de sécheresse prolongée la plus critique, la précipitation maximale probable (PMP), la crue maximale probable (CMP), le séisme maximal crédible (SMC), et les impacts des changements climatiques sur ces paramètres (MERNF, 2022).

Ce type de recouvrement peut être utilisé pour des rejets miniers secs et qui sont situées au-dessus de la nappe phréatique (Figure 2.7). Le recouvrement en eau permet de créer une barrière à l'oxygène et par conséquent limiter la génération de DMA. Le principe de cette technique se base sur le grand gradient du coefficient de diffusion de l'oxygène entre l'eau et l'air (le coefficient de diffusion de l'oxygène dans l'eau est environ 10 000 fois plus faible que celui dans l'air) (Mbonimpa et al., 2003; Awoh et al., 2013b). L'apport d'oxygène devient donc trop faible pour la génération de DMA (Awoh et al., 2021).

Seuls les concepts de couvertures artificielles (Utilisation des réservoirs construits ou des fosses à ciel ouvert) sont présentés ci-dessous, car l'élimination sous-marine des déchets miniers a été

interdite dans la plupart des pays y compris le Canada (Coumans, 2002). Ses impacts environnementaux sur la flore et la faune sous-marines peuvent être néfastes (Dold, 2014).



Figure 2.7 La couverture d'eau sur le site de Louvicourt (Chaire industrielle Polytechnique-UQAT en environnement et gestion des résidus miniers).

L'efficacité d'un recouvrement en eau ainsi que la qualité de ces eaux dépend de différents facteurs, à savoir :

- 1)** le transport de l'oxygène: les eaux du recouvrement peuvent être chargés par l'oxygène dissous, qui peut être véhiculé vers l'eau interstitielle des résidus qui se trouve à l'interface eau-résidus (Blanchette et al., 2001; Elberling et Damgaard, 2001; Awoh et al., 2013).
- 2)** l'érosion et la remise en suspension des particules suite à l'effet des vents. Le vent provoque des vagues qui entraînent des contraintes de cisaillement à l'interface eau-résidus. Une partie des résidus miniers peut être remise en suspension, une fois que les contraintes (τ_{tot}) sont plus grandes que la contrainte de cisaillement critique (τ_{cr}), $\tau_{\text{tot}} > \tau_{\text{cr}}$ (Catalan et Yanful, 2002; Mian et Yanful, 2004; Samad et Yanful, 2005).
- 3)** la libération des métaux: Les réactions d'oxydation des sulfures présents dans les rejets miniers par l'oxygène dissous provoqueront l'augmentation de l'acidité dans la couverture aqueuse et par conséquent une lixiviation et libération des métaux dans le milieu. (Peacy et Yanful, 2003; Awoh et al., 2014).

La performance des recouvrements en eau peut être améliorée en augmentant l'épaisseur de la couverture en eau et en ajoutant une couche fine de matériaux granulaire à la surface des rejets (Yanful et Catalan, 2002; Awoh et al., 2014). Le programme de surveillance (Monitoring) de l'installation est nécessaire pour évaluer la performance de la technique et corriger rapidement toute anomalie détectée. Le programme de surveillance des couvertures en eau comprend plusieurs paramètres, à savoir : Évaluation du bilan hydrique et données météorologiques; surveillance géotechnique pour évaluer la stabilité physique des digues; surveillance environnementale pour évaluer les risques de migration des contaminants vers la nappe phréatique (ce qui peut affecter la qualité des eaux souterraines); suivi de la qualité de l'eau de la couverture et de l'eau interstitielle dans les déchets inondés et surveillance de la végétation pour limiter la croissance des arbres qui pourraient affecter la stabilité physique de la digue (Hard Rock Mine Reclamation, 2021).

2.5.2 Couvertures multicouches

Ce type de recouvrement est employé sur plusieurs sites miniers au Québec, au Canada et ailleurs (Aubertin et al., 1996, 2002a; MEND, 2001, 2004; 2015). Son objectif est l'isolement des rejets miniers réactifs de l'environnement extérieur en limitant les flux d'oxygène et en réduisant les infiltrations vers les rejets sous-jacents. Il implique l'utilisation de différents matériaux :1) des matériaux naturels : argile, sable, silt, gravier, etc. 2) des matériaux synthétiques : géotextiles, géomembranes, etc. 3) et des matériaux composites : les géocomposites bentonitiques (Aubertin et al., 1996, 2002a).

Les CEBC permettent de limiter la diffusion de l'oxygène aux rejets réactifs (Yanful, 1993 ; Aubertin et al., 1999, 2002a, 2015 ; Bussière, 1999,2001; MEND, 2004). La position de la nappe phréatique et le climat sont deux facteurs clés qui déterminent le nombre de couches utilisés (Aubertin et al., 1995, 1999). Elles sont typiquement constituées de 5 couches. Une couche superficielle pour la croissance des plantes et la restauration paysagère (figure 2.8), une couche de protection pour contrer l'érosion profonde, une couche drainante, une couche de rétention d'eau et une couche de support de matériau grossier. La couche drainante souvent constituée de matériaux grossiers, permet de favoriser un effet de barrière capillaire, empêche les remontées d'eau et limite l'assèchement de la couche sous-jacente. (Bussière et al., 2001).



Figure 2.8 La couverture multicouche sur le site Barvue (Abitibi-Témiscamingue) (Ministère des ressources naturelles et des forêts).

La couche de rétention d'eau est la couche qui limite l'infiltration d'oxygène vers les résidus grâce à son degré saturation élevée. Le contraste de granulométrie et de conductivité hydraulique avec les matériaux des autres couches lui permet de rester saturé par effet de barrière capillaire. La couche de support constituée de matériaux grossiers se draine en effet rapidement. Une fois drainée, sa faible conductivité hydraulique empêche l'eau de la couche de rétention d'eau de se drainer (Bussière et al., 2001, Aubertin et al., 2002b).

Durant la conception de la CEBC, il y a des étapes spécifiques qu'il faut suivre. Pour plus de détail voir la méthodologie de conception proposée par plusieurs auteurs (Yanful et al., 2006; INAP, 2009; Hard Rock Mine Reclamation, 2021). Récemment, des études ont proposé de prendre en considération les conditions climatiques extrêmes futures (Hotton et al., 2020). Pour que la technique de la CEBC puisse atteindre sa performance, des projections climatiques à long terme à l'aide des modèles numériques doivent être réalisés (Hotton et al., 2020; Lieber et al., 2021).

2.5.3 Nappe surélevée avec couverture monocouche

Le principe de la nappe surélevée repose sur le rehaussement du niveau de la nappe phréatique afin de préserver un degré de saturation élevé dans les résidus miniers réactifs et limiter par conséquent leur oxydation (Dagenais, 2005 ; Dagenais et al., 2006 ; Ouangrawa et al., 2009, 2010 ; Pabst, 2011; Hard Rock Mine Reclamation, 2021). Pour maîtriser le bilan hydrique et préserver le niveau

de la nappe phréatique à la position cible, une couverture monocouche peut être installée à la surface des rejets réactifs (Pabst et al., 2018).

La nappe phréatique peut être surélevée par rapport à son niveau naturel selon essentiellement trois méthodes (MEND, 1996; Ouangrawa, 2009,2010). **1)** changement du bilan hydrique par exemple grâce à une canalisation des eaux de ruissellement vers le parc à résidus; une réduction des suintements en construisant des digues plus imperméables ou une réduction de l'évaporation en installant une couverture de matériaux grossiers (couverture monocouche) au-dessus des résidus, **2)** Optimisation de rétention d'eau des résidus, elle peut se faire par un épaissement des résidus (augmentation de leur densité en place) (Crowder et al., 2002, Grabinsky et al., 2002), **3)** Mise en place d'une barrière hydraulique qui freine l'écoulement horizontal des eaux souterraines (Nicholson et Tibble., 1995; MEND, 1996; Ouangrawa, 2009, 2010).

La distance entre la nappe et la surface des rejets doit être aux alentours de $\frac{1}{2}$ AEV (valeur d'entrée d'air) pour des résidus frais non oxydés (Ouangrawa, 2010). D'autres études récentes ont recommandé d'élever l'eau encore plus (Pabst et al., 2017a, 2017b; Ethier et al., 2018). Pour empêcher une oxydation supplémentaire, la préservation de la nappe phréatique à la surface des résidus réactifs peut être plus efficace (Figure2.9).

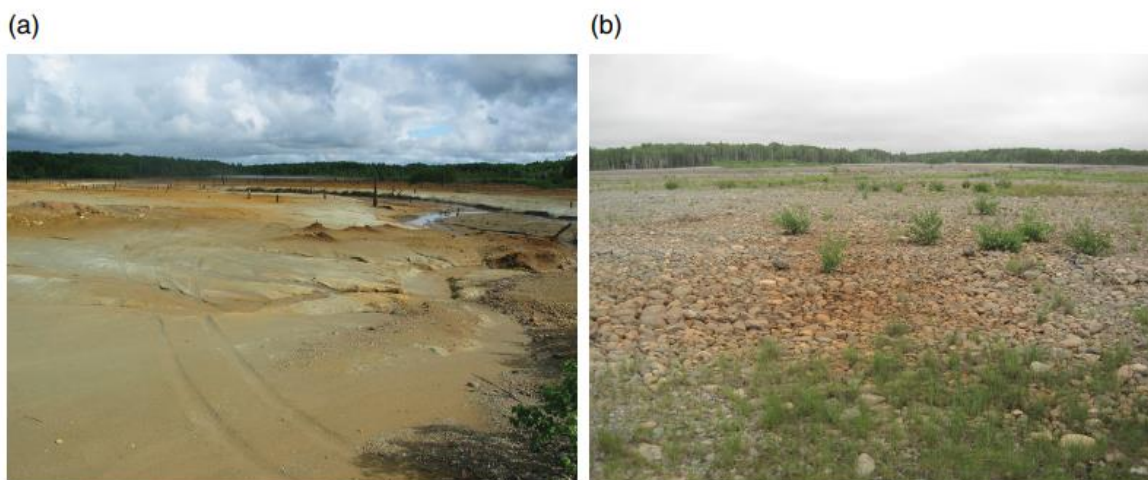


Figure 2.9 La nappe surélevée avec couverture monocouche sur le site Aldermac avant (a) et après (b) restauration. (Chaire industrielle Polytechnique-UQAT en environnement et gestion des résidus miniers).

Un recouvrement monocouche peut être installé sur les rejets afin de limiter l'évaporation et de maximiser l'infiltration. Il est généralement constitué de matériaux grossiers ayant une valeur d'entrée d'air faible (Ouangrawa et al., 2009, 2010 ; Pabst, 2011; Ethier et al., 2018). Les sols naturels, tels que le sable ou le gravier, sont généralement utilisés comme une barrière contre l'évaporation. Cependant, il est essentiel de caractériser ces matériaux et s'assurer qu'ils peuvent être efficaces pour jouer le rôle de barrière contre l'évaporation ou barrière à l'oxygène (Pabst et al., 2018).

L'épaisseur de cette couche doit être d'au moins 0,5 à 2 m, selon ses propriétés hydrogéologiques et sa granulométrie (Dagenais et al., 2006; Ouangrawa, 2007; Pabst, 2011). Les travaux menés ces dernières années ont illustré la possibilité d'utiliser des résidus miniers non générateurs de DMA (cas au site Manitou-Goldex ; Bussière et al., 2011; Demers et al., 2013; Ethier et al., 2013, 2014, 2018) ou des résidus traités par désulfuration (comme au site minier Detour Lake ; Dobchuk et al., 2013; Bussière et al., 2004; Bussière, 2007). L'utilisation de résidus désulfurés peut parfois provoquer la libération des métaux et sulfates dans les eaux interstitielles qui peuvent dépasser les normes environnementales. Surtout quand il s'agit des métaux mobiles à des pH proche de la neutralité (DNC), (Hard Rock Mine Reclamation, 2021). Cette technique avec résidus désulfurés a été validée en laboratoire par des modèles numériques et aussi sur le terrain par les auteurs suivants : (Demers et al., 2008; Ouangrawa et al., 2009, 2010; Ethier et al., 2018).

Tableau 2.3 Différents types de systèmes de recouvrements mis en place sur des fosses remblayées par des rejets miniers.

Mine	Pays	Type de recouvrement	Référence
Lorraine	Quebec Canada	CEBC	(Dagenais et al., 2005)
Bouchard Hébert	Quebec Canada	CEBC	(Bernier et al., 2005)
Louvicourt	Quebec Canada	Couverture en eau	(Ouellet et al., 2011)
Detour Lake Gold	Ontario, Canada	Nappe surélevée+ Couverture monocouche	(Dobchuk et al., 2013)
Solbec Cupra	Quebec Canada	Couverture en eau	(MEND, 2015)
South Mine pit Lake	Tennessee, USA	Couverture en eau	Wyatt et al., 2006 & Golder (2017)
Manitou	Quebec Canada	Nappe surélevée+ Couverture monocouche	(Ethier et al., 2018)
Mount Polley	British Columbia	Couverture en eau	(Mc Cullough et al., 2020)

2.5.4 Approches de gestion alternative : Inclusions drainantes

Le concept des inclusions drainantes consiste à co-disposer les résidus miniers et les roches stériles sous forme d'inclusions pour améliorer la stabilité physique des parcs à résidus (James et al., 2017). Cette nouvelle approche de gestion alternative pourrait aussi être utile dans le remblayage en fosse. L'ajout des roches stériles permettra d'accélérer la consolidation des résidus, optimiser la quantité des rejets remblayés, réduire les risques de la liquéfaction, augmenter la résistance des résidus et réduire les tassements différentiels (Essayad, 2015; Saleh Mbemba, 2016; Boudrias, 2018). Elle permet aussi la dissipation des pressions interstitielles dans les rejets et contribue à augmenter la résistance mécanique des résidus entreposés (Saleh Mbemba, 2016). La résistance mécanique

élevée des roches stériles permet aussi un renforcement structurel (Ferdosi et al., 2015; Jahanbakhshzadeh et Aubertin, 2020; Contreras et al., 2020; Zafarani et al., 2020) et peut limiter considérablement les déplacements des rejets en cas de séisme (Ferdosi et al., 2015a, 2015b),

Des travaux récents ont montré que si les IRS (Figure 2.10) sont bien conçus, l'érosion interne et la migration des résidus au contact de l'IRS ne devraient pas altérer significativement leur capacité de drainage à court ou à long terme (Essayad et al., 2018).

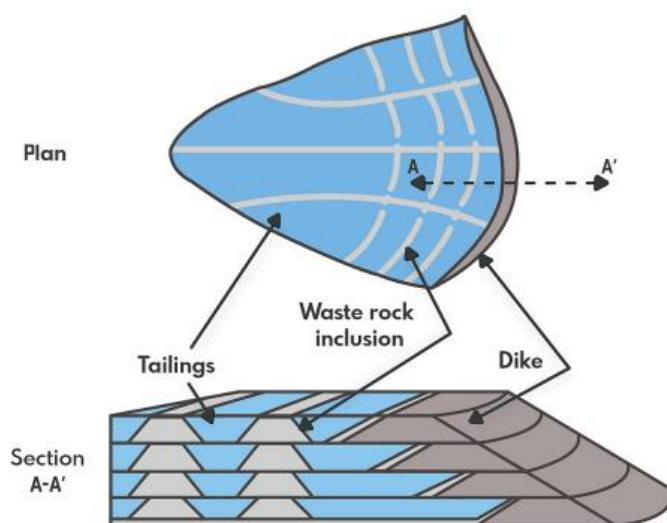


Figure 2.10 Schéma des inclusions en roches stériles (IRS) dans un parc à résidus. Les inclusions de roches stériles fournissent un renforcement structurel aux barrages de résidus et accélèrent la consolidation des résidus (Tiré de Hard Rock Mine Reclamation, 2021).

2.5.5 Désulfuration des rejets

Une autre méthode de gestion alternative des rejets miniers est la désulfuration environnementale (Demers et Pabst, 2021a). Son objectif est de retirer les sulfures des résidus afin d'augmenter leur pouvoir neutralisant avant leur déposition dans les parcs à résidus. Le principale processus utilisé pour éliminer les sulfures est la flottation (Benzaazoua et al., 2000). D'autres techniques minéralogiques ont été testées à savoir la séparation gravimétrique ou magnétique, qui ont donné de bons résultats de désulfuration environnementale dans certains cas particuliers (Wills et Finch, 2015). Quant aux procédés de séparation hydrométallurgiques, ils se font par lixiviation acide ou basique dans le but de récupérer les métaux précieux tels que l'or et l'argent (Blondin, 2005). Les résidus désulfurés ayant un potentiel de neutralisation supérieur et avec une faible

quantité de soufre (<0,5%) peuvent être valorisés dans la construction de recouvrement comme matériaux alternatif (Demers et al., 2008, 2009 ; Demers et Pabst, 2021a). Le recyclage et la réutilisation de ce rejets au lieu du sol naturel, est avantageux en termes de performances environnementales et économiques (Demers et al., 2008b; Ait-Khouia et al., 2022).

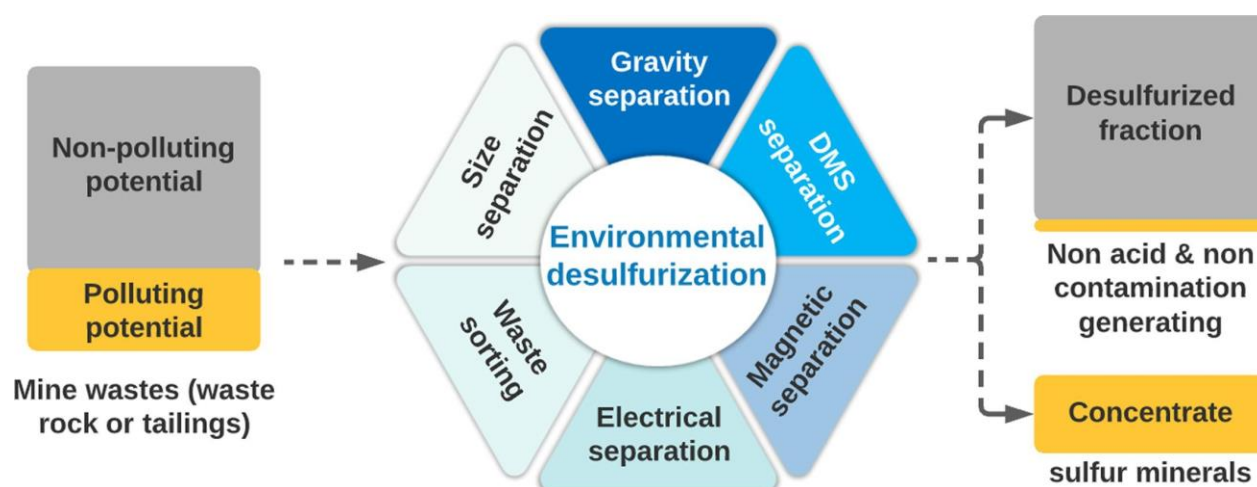


Figure 2.11 Schéma des différentes techniques minéralogiques et hydrométallurgiques pour la désulfuration des rejets miniers (Tiré de Ait-Khouia et al., 2021).

2.6. Défis liés au diverses méthodes d'entreposage dans les fosses

L'entreposage des rejets dans les fosses dépend des caractéristiques hydrogéotechniques et géochimiques des rejets remblayés ainsi que des spécificités du site (MEND, 2015).

2.6.1 Remblayage en conditions sèches

En théorie, les systèmes de couverture artificielle au cours de la restauration des fosses (voir section ci-dessus) pourraient être installés au-dessus de rejets réactifs remblayés pour empêcher leur oxydation (Adu-Wusu et Yanful., 2007), mais les études de cas sont rares car seul un nombre limité de compagnies minières qui ont appliqué ce concept à ce jour (MEND, 2015). L'option de remplir les fosses au-dessus de la nappe phréatique jusqu'à la surface maximiserait la quantité des déchets qui peuvent être déposés mais une grande partie de ces rejets, peuvent devenir partiellement désaturés et exposés à l'oxydation et à la génération de DMA. Des études antérieures sur des fosses

récupérées ont également montrés que les déchets remblayés pourraient continuer à s'oxyder malgré des systèmes de couverture efficaces (Villain et al., 2013). L'oxygène peut s'écouler à travers les fissures de roche fracturée et atteindre les rejets réactifs par les côtés (Villain et al., 2015). Notamment, les trois sources d'oxygène dans une fosse sont 1) le transport d'oxygène à travers le roc fracturé 2) la production d'oxygène photosynthétique, et 3) le transport d'oxygène dissous dans les eaux souterraines (Villain et al., 2015).

L'élévation de la nappe phréatique dans les rejets miniers déposés dans les fosses peut varier au cours du temps. Pendant les périodes de flux relativement faibles (généralement l'hiver) une grande partie des rejets peut être non saturée (Villain, 2014). Le transport d'oxygène par diffusion et advection est favorisé par de faibles degrés de saturation (Lefebvre et al., 2001, Ritchie, 2003, Fala et al., 2005). Si en plus les parois des fosses sont fracturées, l'oxygène pourra atteindre les rejets remblayés par les côtés, malgré la présence d'une couverture qui sera sur le dessus (Vilain, 2014). Les grands flux d'eau, favorisés par des massifs rocheux très perméables le long des parois dynamitées, peuvent également apporter des quantités importantes d'oxygène dissous, qui peut oxyder les déchets remblayés et générer du DMA. En effet les fractures présentes dans le massif rocheux à proximité des fosses peuvent influencer leurs stabilités géotechniques, faciliter et accélérer le transfert de l'oxygène atmosphérique vers la fosse, et augmenter le risque de propagation des contaminants dans l'aquifère (Thériault, 2004). La migration des contaminants et l'écoulement des eaux ont lieu principalement dans ces fractures par rapport au roc intact généralement considéré quasi imperméable (Ben Abdelghani, 2009). La longueur des fractures varie de quelques microns à plusieurs kilomètres (Berkowitz, 2002). Les écoulements dans les milieux fracturés sont complexes et hétérogènes à tous les niveaux, provoquant ainsi des propriétés hydrauliques variables (Le Goc, 2009).

L'écoulement dans une fracture est influencé aussi par des processus géochimiques, notamment l'écoulement de l'eau chargée en éléments chimiques à travers une fracture peut provoquer une précipitation de phases secondaires, ce qui peut influencer la conductivité hydraulique de cette dernière (Benlahcen, 2003). À l'inverse, sa conductivité hydraulique peut augmenter suite à une dissolution et altération des minéraux de remplissage (Thériault, 2004).

Les interactions avec les murs de la fosse sont également une préoccupation majeure en ce qui concerne l'apport d'ions Fe^{3+} qui peuvent déclencher la réaction d'oxydation indirecte des sulfures

réactifs (Ben Abdelghani et al., 2015). En effet, l'excavation de la fosse pendant l'exploitation et son exposition à l'atmosphère peut exposer des parties du minerai et des roches du mur de la fosse à l'oxygène atmosphérique (Castro et Moore, 2000). L'oxydation des minéraux sulfureux à la surface du roc peut provoquer la libération d'acide, de sulfates et de métaux notamment le fer ferrique (Jambor, 2005; Villain et al., 2015). L'étendue de l'oxydation des sulfures dépend de la surface des minéraux sulfureux exposés et de la durée de l'exploitation minière. La surface réactive totale de la roche pour une fosse peut être significative. Par exemple, la surface réactive de la fosse à la mine Island Copper, en Colombie britannique, Canada, a été estimée à plus de $2 \times 10^8 \text{ m}^2$ (MEND, 2015).

Par conséquent, des approches d'élimination stratégique (par exemple, trier et placer les rejets réactifs au cœur de la fosse et plus profondément) doivent être envisagés et planifiés dès le début des opérations (Guerin et al., 2006).

2.6.2 Remblayage en conditions saturées

Le remblayage des rejets en conditions saturées peut se faire lorsque la nappe phréatique est suffisamment élevée. Dans ce cas, la restauration des fosses consiste souvent à les remplir avec une quantité limitée de rejets et puis les inonder (Schultze et al., 2011). Des lacs de fosse sont généralement conçus (McCullough et al., 2013) de sorte que l'eau du réseau régional est dirigée vers la fosse, l'empêchant ainsi de migrer vers l'environnement. Ces lacs de fosses diffèrent physiquement des lacs naturels à cause des profondeurs relatives plus élevées entraînant ainsi moins de brassage. Un lac naturel typique à une profondeur relative Z_r (calculée d'après la profondeur, pondérée par le critère de superficie) inférieure à 2%, bien que certains puissent dépasser 5%, alors que les lacs des fosses ont des profondeurs relatives entre 10 et 40% (Wetzel, 2001). La grande profondeur relative des lacs de fosse, combinée avec les fortes concentrations de solides dissous dans certaines eaux des fosses, entraîne une stratification stable des eaux des lacs de la fosse (Kumar et McCullough., 2010).

Le concept de piège hydraulique peut être modifié au fil du temps (par exemple, en raison du changement climatique et bilan hydrique) (Miller et al., 2014).

L'élévation finale du lac de la fosse dépend des conditions hydrologiques locales et des propriétés hydrogéologiques du massif rocheux environnant (McCullough et al., 2013, 2015). Les principaux

apports d'eau dans une fosse sont les précipitations, l'eau souterraine et les eaux de surface (ruissellement depuis le bassin versant environnant). Les principales pertes d'eau dans une fosse sont liées à l'évaporation et aux éventuelles sorties des eaux en surface ou souterraines. La quantité d'eau stockée dans un lac de fosse ΔS peut s'exprimer par le bilan hydrogéologique suivant (Gammons et al., 2009):

$$\Delta S = P + SW_{in} + GW_{in} - (E + T + SW_{out} + GW_{out}) \quad (2.14)$$

Avec P , les précipitations qui tombent directement dans la fosse ; E l'évaporation ; T l'évapotranspiration (si couvert végétal, mais souvent négligeable) ; SW_{in} ruissellement des eaux de surface, SW_{out} éventuels prélèvements d'eau dans le lac et GW_{in} et GW_{out} écoulements entrant et sortant de l'eau souterraine. Toutes les variables ont des unités de $m^3/jour$ (E et P étaient multipliés par la superficie du lac).

La fosse peut se comporter de deux façons : elle peut soit jouer le rôle de piège hydraulique, lorsque le niveau piézométrique environnant est situé au-dessus de la cote du lac (Figure 2.12 a) ; soit celui d'un réservoir où l'eau ne fait qu'entrer d'un côté et sortir de l'autre (Figure 2.12 b). Ce dernier type se rencontre particulièrement dans les zones où la nappe phréatique régionale possède un fort gradient hydraulique (Gammons et al., 2009). Lorsque le niveau dans la fosse est supérieur au niveau phréatique local, l'eau ne fait que sortir (le cas de la fosse source).

Le temps nécessaire pour que le niveau piézométrique dans la fosse atteigne l'équilibre dépend de la géométrie de la mine, de son volume, du type de minéralisation et du climat. Il peut varier de quelques semaines en milieu humide à plusieurs décennies en milieu aride (Castendyk et Eary, 2009).

L'écoulement des eaux souterraines a une incidence directe sur les caractéristiques des eaux de la fosse (Kumar et al., 2009) et la hauteur finale du lac de la fosse est contrôlée en partie par l'élévation de la nappe phréatique locale (Levy et al., 1997; Gonzalez et al., 2018). La fosse peut croiser plusieurs aquifères et la profondeur et le débit de chaque aquifère auront une incidence sur le taux de remplissage (McCullough et al., 2015). La qualité de l'eau souterraine s'approche généralement de l'équilibre géochimique avec l'aquifère à travers laquelle elle s'écoule (Kumar et al., 2009). Après l'inondation d'une fosse, l'oxydation des minéraux sulfureux par l'oxygène atmosphérique sera limitée en raison de la faible solubilité de O_2 dans l'eau (Gonzalez et al., 2018).

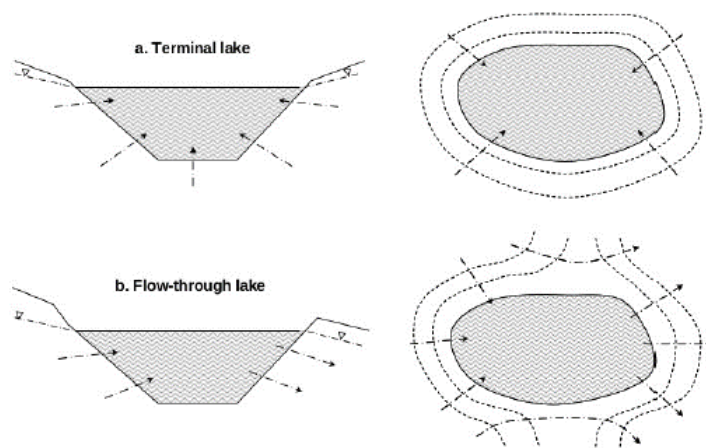


Figure 2.12 Régimes hydrologiques des fosses : (a) la fosse constitue un piège hydraulique (b) la fosse n'est qu'un réservoir ou l'eau entre et sort de l'autre côté. Les traits pointillés à gauche représentent des courbes de niveau appelées courbes iso piézométrique.

Cependant, la stabilité géochimique des rejets remblayés dans les fosses demeure un défi. Même lorsque les rejets sont remblayés dans des formations géologiques profondes et peu connectées avec la surface et le milieu environnant, des interactions avec l'eau souterraine sont attendues (Puhlovich et Coghill, 2011). Néanmoins, le risque géochimique associé aux rejets déposés dans les fosses n'est que peu documenté dans la littérature. Ainsi, les travaux de cette thèse permettront aux opérateurs miniers et aux autres parties prenantes de bien évaluer et de mieux comprendre le comportement géochimique des rejets qui peuvent être retournés dans les fosses, afin de réduire les incertitudes de cette approche et d'en favoriser l'application.

CHAPITRE 3 METHODOLOGIE

3.1 Résidus miniers étudiés

Dans ce projet, trois types de résidus ont été testés : deux résidus provenant de deux sites miniers (Laronde et Westwood) situés en Abitibi-Témiscamingue (Québec, Canada) et un résidu synthétique constitué de pyrite pure broyée et de sable.

3.1.1 Résidus minier Westwood

La mine d'or Westwood est située dans la région de l'Abitibi-Témiscamingue (Québec, Canada) à 2,5 kilomètres à l'est de l'ancienne mine d'or Doyon dans le canton de Bousquet, à environ 40 kilomètres à l'est de Rouyn-Noranda et à 80 kilomètres à l'ouest de Val-d'Or (Demers, 2016). Le site minier Doyon couvre une superficie de 1817 hectares (Coulibaly, 2016).

La minéralisation de la mine Westwood se compose des filons de pyrite-sphalérite riches en or avec des bandes locales de sulfures massifs et des veines riches en sulfures avec un peu d'or, tous inclus dans un halo riche en pyrite disséminée (IamGold, 2017). La mine souterraine Westwood a commencé la production au premier trimestre en 2013. Une partie des résidus générés est utilisée pour remblayer la fosse Doyon et le reste est utilisé pour le remblayage souterrain (Lévesque, 2019).

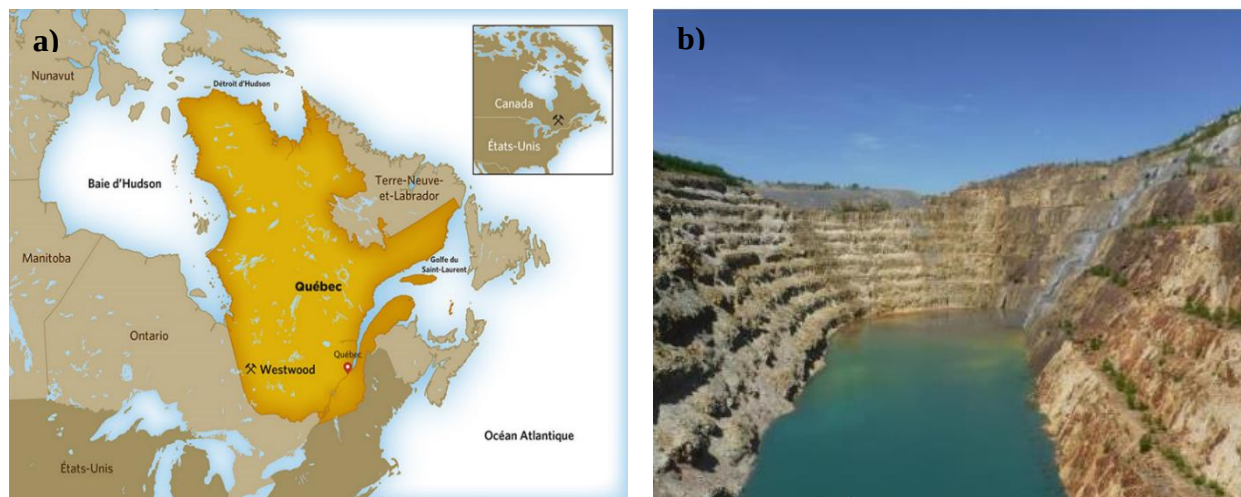


Figure 3.1: a) Localisation de la propriété Doyon (Site web d'IAMGOLD 2021), b) La fosse Doyon (IRME 2018).

3.1.2 Résidus minier Laronde

La mine Laronde est une mine souterraine polymétallique située entre Rouyn-Noranda et Val-d'Or, en Abitibi-Témiscamingue. Le traitement du minerai se fait par des procédés minéralogiques de flottation et de cyanuration pour produire de l'or et de l'argent, ainsi que des concentrés de zinc et de cuivre. Sa minéralisation or-cuivre et zinc-argent se présente sous forme de lentilles sulfureuses massives et disséminées (Kalonji-Kabambi, 2020).

Environ 2382000 tonnes de rejets de concentrateur sont générés annuellement dont 77% sont déposés dans le parc à résidus et 23% renvoyés sous terre comme remblais (Golders et associés, 2012).

3.1.3 Résidus synthétiques

Des résidus synthétiques (80% pyrite + 20% sable) ont été préparés en mélangeant de la pyrite pure avec du sable (considéré géochimiquement inerte). L'utilisation d'un résidu synthétique sert à simplifier le milieu réactif et en contrôler la minéralogie et la granulométrie constituantes. Les cristaux de pyrite ont été obtenus auprès de la compagnie Minroc Science Inc., spécialisée dans la collecte, la préparation et la vente de minéraux, de roches et de fossiles destinés aux milieux académique et scientifique. La pyrite a été broyée à sec dans un broyeur à boulets au laboratoire de géochimie du département CGM à Polytechnique Montréal. Le sable était un sable standard d'Ottawa (GENEQ.inc). Tous les échantillons ont été stockés dans des récipients hermétiques pour éviter l'oxydation des sulfures.

3.1.4 Échantillonnage et préparation des échantillons

Des échantillons frais ont été échantillonnés par les opérateurs miniers de chaque entité minière puis envoyés au laboratoire de l'Institut de Recherche en Mines et Environnement (IRME) à Polytechnique Montréal. Les échantillons ont été placés sous une couche d'eau dans des barils en polyéthylène (volume 120 litres) hermétiquement clos pour éviter leur oxydation durant le transport. Au laboratoire, les matériaux ont été homogénéisés (ASTM C702, 2018) puis caractérisés. Les résidus non utilisés étaient constamment conservés sous l'eau pour éviter l'oxydation des sulfures jusqu'à leur utilisation ultérieure.

3.2 Caractérisation des résidus

La caractérisation des différents matériaux prélevés sur le terrain a été réalisée dans les laboratoires de Polytechnique Montréal et de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue UQAT (Québec, Canada). L'analyse des cyanures dans les résidus a été réalisée aux laboratoires Maxxam Analytique Inc. (Montréal). L'analyse automatisée quantitative (AQM) a été réalisée au laboratoire de la caractérisation minéralogique de REMINEX (Maroc).

3.2.1 Propriétés physiques

Les courbes granulométriques de chacun des résidus testés ont été obtenues par tamisage sec (ASTM D7928-17) et essai par hydromètre (ASTM D422-07). La détermination de la densité relative des grains solides a été obtenue par pycnomètre à eau (ASTM D854-05) et confirmée pour certains échantillons par pycnomètre à hélium (Micromeritics Accupyc 1330).

La surface spécifique a été déterminée par méthode indirecte basée sur les propriétés géotechniques des résidus (Kovacs, 1981) :

$$S_s(m^2/kg) = \frac{\alpha \times 100}{\rho_s D_H} \quad (3.1)$$

Où α [-] : facteur de forme ($6 \leq \alpha \leq 18$; ici $\alpha = 10$ a été utilisé ici comme dans le modèle original de Kovacs), et D_H [L] : diamètre de particule équivalent.

La conductivité hydraulique saturée (k_{sat}) de chaque résidus a été évaluée au moyen d'essais de perméabilité à charge constante et à charge variable dans des perméamètres à parois rigides (ASTM D2434-06) et comparée avec les modèles prédictifs modifiés Kozeny-Carman (KCM) (Mbonimpa et al., 2002) et Kozeny-Carman (KC) (Chapuis et Aubertin., 2003).

Le tableau 3.1 présente les propriétés hydrogéotechniques des résidus miniers étudiés dans le cadre de ce projet. Les propriétés hydrogéotechniques des matériaux testés étaient typiques des résidus miniers en roche dure (ex. Aubertin et al., 2002a; Bussière, 2007). Les résidus naturels ont été classés comme limons sableux à faible plasticité (ASTM D7928-2017). La densité spécifique augmentait avec la teneur en soufre (voir également chapitre 4) et était d'environ 3,2 pour les résidus Laronde, 2,8 pour les résidus Westwood et 4,9 pour les résidus synthétiques. La conductivité hydraulique saturée des résidus de Laronde et de Westwood était d'environ $3,5 \times 10^{-6}$ m/s et 4×10^{-6} m/s pour un taux de vide d'environ 0,74 et 0,65, respectivement. Les résidus

synthétiques sont un peu moins perméables avec $k_{sat} = 2,5 \times 10^{-3}$ m/s pour un taux de vide $e = 0,56$. Les conductivités hydrauliques saturées mesurées en laboratoire ont été relativement bien prédites par les modèles Kozeny Carman (KC ; Chapuis et Aubertin, 2003) et Kozeny Carman modifié (KCM ; Mbonimpa et al., 2002).

Tableau 3.1 Propriétés physiques des résidus miniers Laronde, Westwood et Synthétiques. Les valeurs moyennes et les plages mesurées sont indiquées. ND : Non déterminé.

Propriétés	Laronde (n=2)	Westwood (n=2)	Synthétique (n=2)
Densité spécifique (-)	3,15 [3,14;3,16]	2,81 [2,79;2,83]	4,94 [4,92;4,95]
D10 (mm)	0,005 [0,005;0,006]	0,004 [0,004]	0,08 [0,07;0,09]
D60 (mm)	0,038 [0,035;0,041]	0,034 [0,031;0,037]	0,28 [0,27;0,29]
Coefficient d'uniformité (CU = D60/D10) (-)	7,0 [6,3;7,6]	9,0 [7,8;9,3]	3,5 [3,4;3,6]
< 80 μm (%)	84 [82;85]	90 [89;91]	10 [9,1;10,2]
< 2 μm (%)	7,2 [6,0;8,4]	4,9 [4,3;5,9]	ND
Conductivité hydraulique saturée (m/s)	$3,5 \times 10^{-6}$ [2×10^{-6} ; 5×10^{-6}]	4×10^{-6} [3×10^{-6} ; 5×10^{-6}]	$2,5 \times 10^{-3}$ [2×10^{-3} ; 3×10^{-3}]

3.2.2 Propriétés chimiques

L'analyse chimique des résidus a été effectuée au moyen d'un spectromètre d'émission atomique au plasma couplé inductif (ICP-AES) après une digestion multi-acide (avec HNO_3 , Br_2 , HF) et pour les 20 éléments suivants : aluminium (Al), arsenic (As), bore (B), baryum (Ba), béryllium (Be), bismuth (Bi), calcium (Ca), cadmium (Cd), cobalt (Co), chrome (Cr), cuivre (Cu), fer (Fe), magnésium (Mg), manganèse (Mn), sodium (Na), nickel (Ni), plomb (Pb), soufre (S), sélénium (Se) et zinc (Zn).

Les analyses ont été réalisées avec l'équipement ICP-AES (Perkin Elmer 3000 DV) au laboratoire de chimie analytique à l'UQAT, la précision relative de l'équipement est inférieure 5% (Foudhaili, 2019). La précision de l'analyse dépend aussi de tout le processus de la préparation des échantillons (pesée, pipetage) et de la matrice de l'échantillon analysé.

Le soufre total et le carbone inorganique total ont été mesurés au moyen d'un analyseur de combustion Carbone/Soufre à la fournaise LECO CS-400 (CEAEQ, 2006). Le potentiel de production d'acide (AP) a été calculé en supposant que le soufre était exclusivement contenu dans la pyrite et le potentiel de neutralisation (NP) a été déterminé à partir de mesures de carbone en considérant que celui provenait uniquement des carbonates. Le potentiel de neutralisation nette (PNN) a été défini comme la différence entre AP et NP ($PNN = NP - AP$). (Paktunc et al., 1999; Plante et al., 2010; Bouzahzah et al., 2013).

Les résultats des analyses à la fournaise LECO réalisées sur les différents matériaux avant le montage des colonnes sont présentés au tableau 3.2. Les pourcentages de carbone et soufre totaux sont des valeurs moyennes sur plusieurs échantillons analysés. On y indique également les plages de variations des résultats. Les résultats des calculs sont présentés au tableau 3.2.

Tableau 3.2 Composition élémentaire des résidus Laronde, Westwood et synthétique déterminée par analyse à la fournaise LECO et évaluation du potentiel d'acidification. Les valeurs moyennes et les plages mesurées sont indiquées. PA : Potentiel d'acidification ; PN : Potentiel de Neutralisation ; PNN (=PN-PA) : Potentiel Net de Neutralisation ; ND : Non déterminé.

Propriétés	Laronde (n=2)	Westwood (n=2)	Synthétique (n=1)
Teneur en Soufre (%)	15,5 [15,1;15,9]	3,8 [3,7;3,9]	33,6
Teneur en Carbone (%)	0,06 [0,05;0,06]	0,41 [0,40;0,42]	< 0,001
PA (kg CaCO ₃ /t)	486 [472;497]	119 [116;122]	1050
PN (kg CaCO ₃ /t)	4,9 [4,9]	34 [33;35]	0,07
PNN (kgCaCO ₃ /t)	-481 [-492;-467]	-84 [-85;-83]	-1050

Tableau 3.3 Composition chimique élémentaire des résidus Laronde, Westwood et synthétiques déterminée par ICP (la valeur moyenne et plage mesurée pour chaque élément). Les teneurs en éléments sont exprimées en mg/kg. Seule une sélection d'éléments pertinents pour cette étude est présentée.

Eléments	Laronde (n=5)	Westwood (n=5)	Synthétique (n=1)
Fe	$1,15 \times 10^5$ [$1,14 \times 10^5$; $1,17 \times 10^5$]	$6,17 \times 10^4$ [$6,08 \times 10^4$; $6,25 \times 10^4$]	$3,23 \times 10^5$
S	$1,31 \times 10^5$ [$1,30 \times 10^5$; $1,33 \times 10^5$]	$3,73 \times 10^4$ [$3,66 \times 10^4$; $3,79 \times 10^4$]	$3,41 \times 10^5$
Al	$3,69 \times 10^4$ [$3,63 \times 10^4$; $3,73 \times 10^4$]	$6,26 \times 10^4$ [$6,19 \times 10^4$; $6,34 \times 10^4$]	373
Zn	582 [572;589]	1020 [1010;1020]	2062
Cu	45 [29;57]	< 10	< 10
Ni	< 5	< 5	< 5
As	< 5	< 5	< 5
Mg	1500 [1440;1560]	$1,61 \times 10^4$ [$1,59 \times 10^4$; $1,63 \times 10^4$]	25
Ca	4720 [4560;4860]	$1,78 \times 10^4$ [$1,75 \times 10^4$; $1,80 \times 10^4$]	105
K	6870 [6770;6940]	$1,57 \times 10^4$ [$1,55 \times 10^4$; $1,58 \times 10^4$]	103
Na	4500 [4390;4580]	$1,02 \times 10^4$ [$1,00 \times 10^4$; $1,03 \times 10^4$]	475
Ba	213 [211;217]	559 [546;570]	4,0
Mn	241 [235;251]	483 [473;493]	34,8
Ti	866 [857;874]	3760 [3690;3830]	< 20
Co	< 5	< 5	20.2

Les résidus de Laronde étaient composés principalement de quartz (61%) et contenaient une grande variété de silicates (dont chlorite, muscovite, orthose, albite et paragonite) représentant plus de 20% (Tableau 3.4). Aucun carbonate n'a été détecté par les analyses DRX (Tableau 3.4) et la teneur en carbone était inférieure à 0,06% selon les résultats de l'analyse à la fournaise LECO (Tableau 3.2), indiquant un très faible potentiel de neutralisation (PN). Des traces de carbonates ont également été observées au MEB sous forme de calcite. Les analyses chimiques ont démontrées que la teneur en soufre des résidus Laronde se situait entre 13,1% (Tableau 3.3) et 15,5% (Tableau 3.2), correspondant à 24,5% en poids et 29,0% en poids de pyrite, respectivement (en supposant

que la pyrite était le seul sulfure ce qui semblait réaliste selon l'analyse DRX ; Tableau 3.4). Cette estimation de la teneur en pyrite était significativement supérieure aux 18,2% détectés par DRX (Tableau 3.4) ou aux 19,6% en poids estimés à partir de la densité spécifique.

De tels écarts sont typiques des résidus miniers et peuvent s'expliquer par la variabilité du matériau et la précision de chaque méthode de mesure. Dans tous les cas, les résidus de Laronde étaient fortement acidogènes, avec un potentiel d'acidification (PA) supérieur à 450 kg CaCO_3/t et une valeur de NP inférieure à 5 kg CaCO_3/t (Tableau 3.2). Des traces de zinc et de cuivre ont également été détectées dans les résidus de Laronde (Tableau 3.3), ce qui concorde avec la présence de petites quantités de sphalérite et de chalcopryrite observées par d'autres méthodes de caractérisation minéralogiques.

Les résidus de Westwood étaient composés principalement de minéraux silicatés, notamment du quartz (41%), de la chlorite (11%), de la muscovite (11%) et de l'albite (14%; Tableau 3.4). La teneur en soufre des résidus de Westwood était d'environ 3,8% (Tableaux 3.2 et 3.3), ce qui représente une teneur en pyrite d'environ 3,7% en poids, ce qui correspondait bien aux 5,0% en poids de pyrite détectés par DRX (Tableau 3.4). Les résidus de Westwood étaient significativement moins générateurs d'acide que les résidus de Laronde, avec un PA de 119 kg CaCO_3/t et un PN de 33 kg CaCO_3/t (Tableau 3.2). La pyrite était le seul sulfure observé avec DRX, mais le MEB a également détecté la présence de petites quantités de chalcopryrite (CuFeS_2). La DRX a également montré la présence de calcite (3,5%) et de dolomite (2,2%; Tableau 3.4). Ces phases minéralogiques ont été confirmée par analyse MEB et ICP avec 1,8% en poids de calcium et 1,6% en poids de magnésium (Tableaux 3.3 et 3.4).

Les résidus synthétiques étaient composés essentiellement de quartz (22%) et de pyrite (72%; Tableau 3.4). La teneur en soufre des résidus synthétiques était d'environ 34% (Tableaux 3.3 et 3.4) avec un PA de 1050 kg CaCO_3/t et un PN < 0,1 kg CaCO_3/t (Tableau 3.2). Les résultats de la composition chimique obtenus par analyse ICP ont confirmé que les deux principaux éléments chimiques étaient le fer et le soufre (Tableau 3.3). Les analyses MEB ont montré que les particules de pyrite étaient libres et accessibles dans les trois échantillons. Les teneurs totales en cyanure ont également été mesurées dans les résidus Laronde et Westwood et étaient inférieures à la limite de détection (c'est-à-dire < 0,003%).

3.2.3 Propriétés minéralogiques

La caractérisation minéralogique des résidus miniers a été effectuée par diffraction des rayons X (DRX : Bruker A.X.S. Advance D8) au laboratoire de l'UQAT. L'analyse par microscope électronique à balayage (MEB) a été effectuée au Centre de caractérisation microscopique des matériaux (CM²) de Polytechnique Montréal au moyen d'un microscope électronique à balayage. L'analyse automatisée quantitative (AQM) a été aussi effectuée au laboratoire de caractérisation minéralogique Reminex, pour la caractérisation des trois résidus miniers et du sable. Les échantillons ont été homogénéisés, broyés, puis préparés en sections polies minces pour analyse. Les caractérisations AQM ont été réalisées à l'aide d'un microscope ZEISS Sigma VP couplé à des spectromètres Bruker EDS X Flash 30/60. Les données minéralogiques ont été fournies par le logiciel Mineralogic. Les analyses AQM fournissent des informations entièrement quantifiées sur la minéralogie modale et la texture, y compris la libération, l'association minérale et le comportement élémentaire du comportement des sulfures.

- **Principe de la DRX**

La DRX est une technique utilisée pour l'identification des phases minéralogiques, l'étude des structures cristallines et de l'espacement atomique d'un matériau. Elle est basée sur l'interaction de rayons X monochromatiques avec un échantillon cristallin (Connolly, 2005). Ces rayons X sont générés par un tube cathodique, filtré pour produire un rayonnement monochromatique, concentré, et dirigé vers l'échantillon. L'interaction des rayons incidents avec l'échantillon produit une interférence constructive (un rayon diffracté) lorsque les conditions satisfont la loi de Bragg :

$$2 \times d \times \sin \theta = n \times \lambda$$

Où n est un nombre entier, λ est la longueur d'onde des rayons X, d est l'espacement inter-réticulaire générant la diffraction, et θ est l'angle de diffraction. Cette loi relie la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique à l'angle de diffraction et à l'espacement du réseau dans un échantillon cristallin. Les rayons X diffractés sont ensuite détectés, traités et comptés. La conversion des raies de diffraction en espacements d permet d'identifier le composé, car chaque composé possède un ensemble d'espacements d uniques.

Les diffractomètres à rayons X sont constitués de trois éléments de base : un tube à rayons X, un porte-échantillon et un détecteur de rayons X (Connolly, 2005).

- **Principe du MEB**

Le MEB permet de scanner la surface des échantillons (matière) à travers l'émission d'un faisceau d'électron à faible énergie. Son principe repose sur l'application de l'énergie cinétique pour produire des signaux sur l'interaction des électrons avec la matière. Ces électrons sont de trois types : électrons secondaires, électrons rétrodiffusés et électrons rétrodiffusés diffractés. Les électrons secondaires et rétrodiffusés sont utilisés pour produire une image. Les électrons secondaires émis par l'échantillon permettent la détection de la morphologie et la topographie de l'échantillon, tandis que les électrons rétrodiffusés montrent le contraste en nuances de gris de la composition chimique des éléments de l'échantillon analysé (Regourd et al., 1975).

La source des électrons et les lentilles électromagnétiques proviennent de lampes à filament de tungstène placées en haut de la colonne du microscope. Les électrons sont émis après l'application d'une énergie thermique à la source d'électrons, qui se déplacent ensuite vers l'anode à charge positive. Lorsque les électrons secondaires atteignent et entrent dans le détecteur, ils frappent un scintillateur qui émet des éclairs de lumière qui sont convertis en courant électrique par un photomultiplicateur, envoyant un signal au tube cathodique. Celui-ci produit une image qui peut être visualisée et photographiée (Kogel & Lewis, 2001). L'information sur la composition chimique semi-quantitative de l'échantillon caractérisé, est fournie à partir du spectromètre à dispersion d'énergie (EDS).

- **Principe de la minéralogie quantitative automatisée (MQA)**

En raison de la complexité de certains rejets miniers, les caractéristiques minéralogiques et microtexturales ne peuvent pas être correctement quantifiées à l'aide des méthodes de microscopie optique ou MEB traditionnelles. Les systèmes de microscopie électronique à balayage automatisée telles que Mineralogic, MLA (Mineral Liberation Analyzer), TIMA (TESCAN Integrated Mineral Analyzer) et QEMSCAN (Quantitative Evaluation of Minerals using Scanning Electron Microscopy) offrent une solution idéale pour de telles tâches.

Ces systèmes fonctionnent à travers une analyse d'image automatisée adaptée aux systèmes MEB, qui identifie les minéraux et leurs textures à l'aide de la spectrométrie à dispersion d'énergie (EDS) et de l'imagerie par électrons rétrodiffusés (BSE) (Fandrich et al., 2007). Les analyses de minéralogie quantitative automatisée (MQA) fournissent une minéralogie modale et des informations texturales entièrement quantifiées, y compris la taille des grains, le degré de

libération, l'association minérale et le comportement élémentaire. La description précise de ces propriétés est importante pour le traitement métallurgique. Grâce à la technologie automatisée, elles peuvent être mesurées pour de grandes populations de particules et avec une grande précision (Fandrich et al., 2007).

Les résultats de la DRX des différents échantillons sont synthétisés au tableau 3.4. On indique également les plages des valeurs mesurées. Les diffractogrammes de diffraction des rayons X sont présentés à l'annexe E.

Tableau 3.4 Caractérisation minéralogique des résidus Laronde, Westwood et synthétique déterminée par DRX. Les teneurs en minéraux sont données en % poids. Les valeurs moyennes et les plages mesurées sont indiquées. ND : Non détecté.

Mineral	Laronde (n=3)	Westwood (n=3)	Synthétique (n=1)
Quartz SiO ₂	60,7 [59;61]	41,2 [37;45]	22,0
Pyrite FeS ₂	18,2 [18;19]	5,0 [4;5]	71,7
Chlorite (Fe,Mg,Al) ₆ (Si,Al) ₄ O ₁₀ (OH) ₈	4,1 [4;5]	11,4 [9;13]	ND
Muscovite KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀) (OH, F) ₂	1,1 [0,5;3]	11,5 [1;22]	ND
Orthoclase KAlSi ₃ O ₈	7,6 [5;11]	ND	ND
Paragonite NaAl ₂ [(OH)2 AlSi3O10]	4,5 [0,5;9]	ND	ND
Albite NaAlSi ₃ O ₈	3,8 [3;5]	14,3 [13;16]	ND
Gypse CaSO ₄	ND	1,5 [1;2]	ND
Corundum Al ₂ O ₃	ND	9,3 [8;11]	ND
Rutile TiO ₂	ND	1,2 [0,5;2]	2,2
Calcite CaCO ₃	ND	2,6 [1;4]	ND
Dolomite CaMg (CO ₃) ₂	ND	2,0 [1;3]	ND
Analcime NaAlSi ₂ O ₆ ·H ₂ O	ND	ND	4,1

NB : La source du corundum est expliquée par l'utilisation du corps broyant (broyeur à boulet) à base d'Al₂O₃.

L'analyse automatisée quantitative (AQM) des résidus Laronde, Westwood et synthétique indique que la composition est dominée par Fe (10% en poids - 6% en poids et 40% en poids respectivement) et S (13% en poids, 3% en poids et 42% en poids respectivement). Les résidus de Westwood étaient caractérisés par des quantités importantes de calcium (environ 1,7 % en poids)

et de magnésium (environ 1,8% en poids) correspondant aux carbonates. L'analyse automatisée quantitative montre que les résidus étaient principalement composés de quartz et que le principal minéral sulfuré était la pyrite. La teneur en pyrite détectée par MEB-Zeiss était de (19,9%) et (6,5%) et (72%) respectivement pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétique. Des carbonates, principalement de la dolomite (2,8%) et de la calcite (2,7%), ont été identifiés par AQM dans les résidus de Westwood. Pour les résidus de Laronde, la caractérisation DRX n'a pas permis de détecter les carbonates, mais le MEB-Zeiss a détecté des carbonates sous forme de calcite (0,3%). L'analyse MEB-Zeiss a également détecté la présence de chalcopryrite (CuFeS_2) dans l'échantillon de Westwood et Laronde (Figure 3.2).

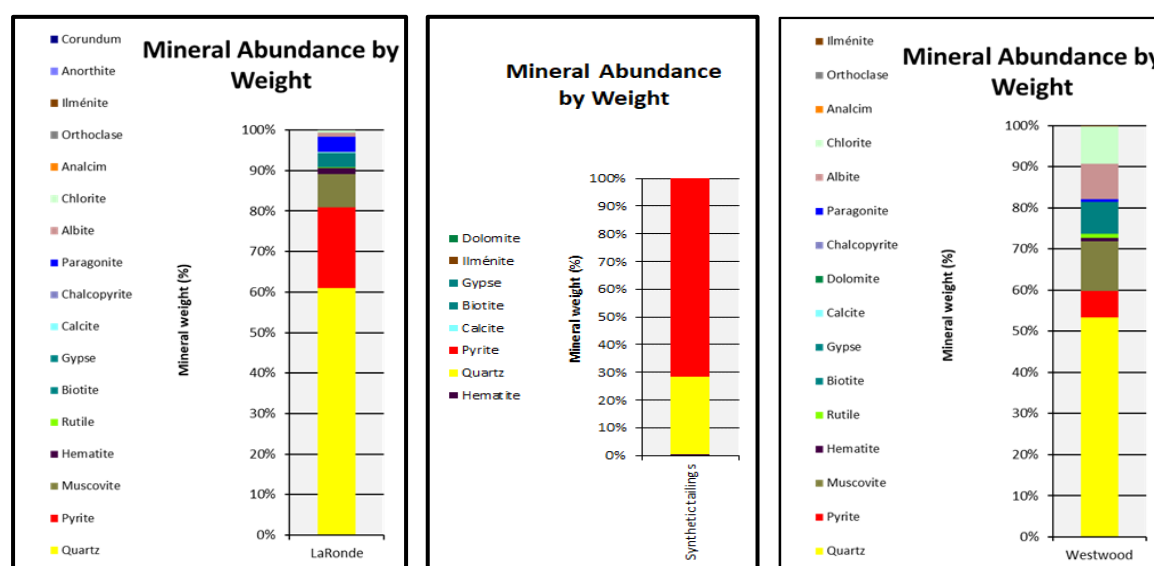


Figure 3.2 Évaluation quantitative des phases minérales à l'aide d'un MEB-EDS automatisé (Zeiss sigma) (A) Abondance minérale en poids des résidus Laronde (B) Abondance minérale en poids des résidus synthétiques (C) Abondance minérale en poids des résidus Westwood

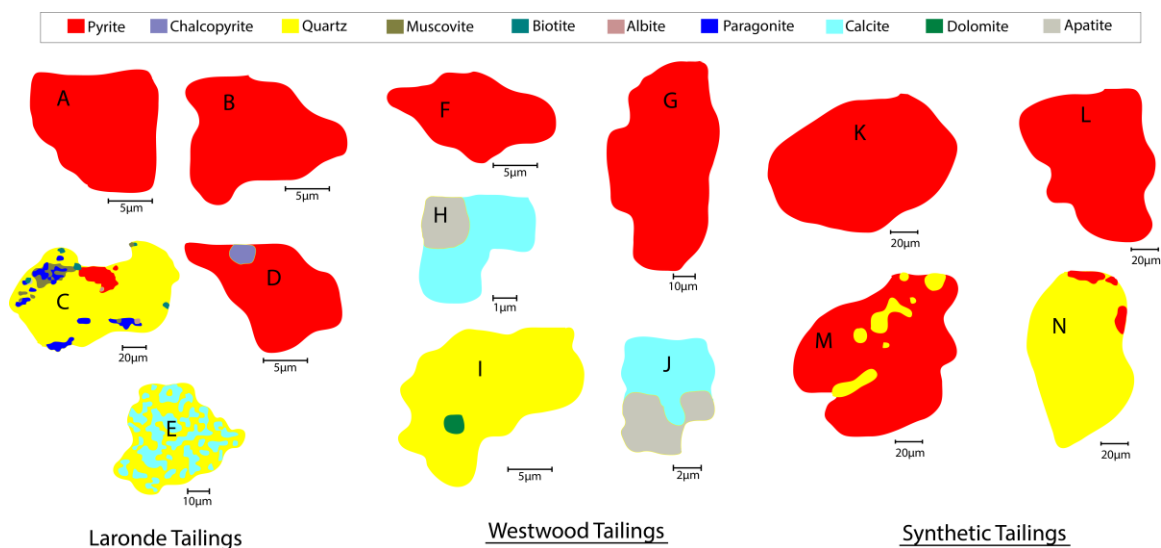


Figure 3.3 Cartes minérales pour les grains sélectionnés. Grain **A** et **B** : Particule de pyrite libre, **C**: grains composites composés de quartz, pyrite, muscovite, biotite et albite. **D** : Particule de pyrite avec inclusion de chalcopyrite. **E** : quartz en association avec de la calcite. Grain **F** et **G** : Particule de pyrite libre. **H** et **J** : grain de calcite avec inclusions d'apatite. **I** : Grain de quartz avec inclusion de dolomite. **K** et **L** : particules de pyrite libre. **M** : Grain de pyrite avec inclusions de quartz. **N** : Grain de quartz avec inclusion de pyrite.

3.2.4 Propriétés microbiologiques

Une évaluation microbiologique qualitative a été réalisée avant et après les essais cinétiques pour les résidus Westwood et Laronde selon la méthode développée par Zagury et al. (1997b), et détaillée dans Ouangrawa (2007). Cette approche se compose des phases suivantes: (1) incubation dans des conditions aérobies sur un agitateur incubateur orbital pendant 4 à 5 semaines dans différentes cultures, selon le type de bactéries recherchées. (2) suivi du pH et du potentiel d'oxydo-réduction (POR) pour les échantillons non stérilisés et stérilisés, les échantillons stérilisés étant utilisés comme témoins. Pour l'évaluation de l'activité des populations bactériennes ferrooxidantes acidophiles, 2,25 g de résidus sont placés dans un Erlenmeyer de 500 mL. Ensuite deux types de milieux de culture liquides sont utilisés (S1 et S2). S1 est une solution à 0,3% w/v sulphate d'ammonium $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ et 1 % (p/v) de $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ dans une fiole jaugée de 1000 ml. S2 est une solution à 0,3 % (p/v) de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ dans une fiole jaugée de 1000 ml.

Les solutions ont ici été préparées selon le protocole défini par Zagury et al. (1997b). En même temps, une partie des résidus ont été stérilisés directement avec chlorure du mercure (HgCl_2) afin d'être utilisés comme des cultures témoins. Les témoins contiennent le même milieu de culture que les échantillons non stérilisés (Wolf et al., 1989; Trevors, 1996; Ouangrawa, 2007). Le pH a été ajusté à 3,5 deux fois pendant 24 heures avec 0,5 N d'acide sulfurique H_2SO_4 avant le début de l'incubation.

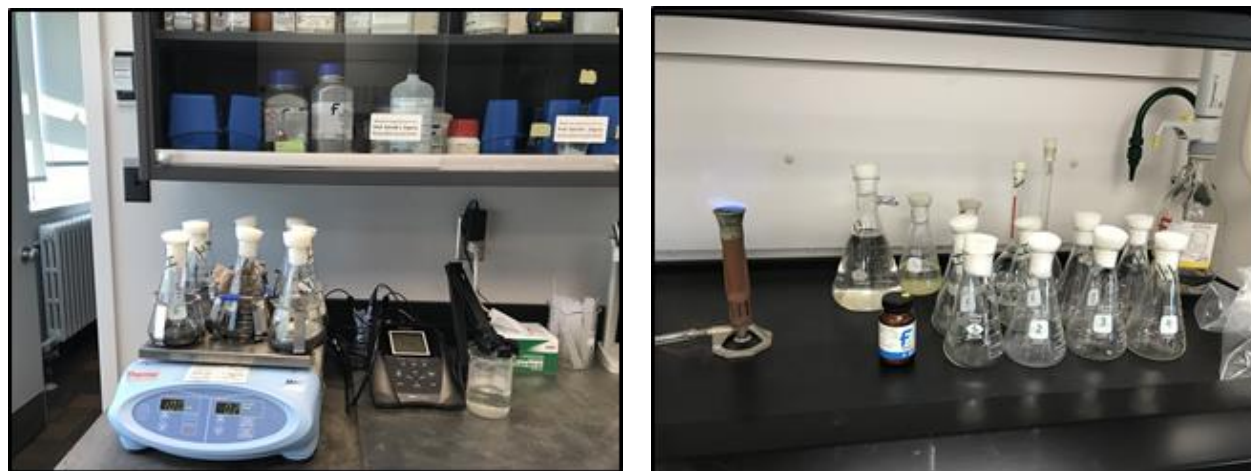


Figure 3.4 Évaluation qualitative de l'activité des bactéries : Agitateur rotatif + erlenmeyer contenant le résidu et le milieu de culture.

Deux cultures ont également été employées pour évaluer l'activité des populations sulfoxydantes neutrophiles et acidophiles. Le premier milieu de culture était constitué de 0,3 % (p/v) KH_2PO_4 et de 0,4 g/l $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ préparé selon Zagury et al. (1997). Le deuxième milieu de culture a été préparé en ajoutant 1,5 g de soufre comme substrat à 150 mL du premier milieu de culture. La stérilisation des échantillons a été effectuée comme mentionné précédemment, c'est-à-dire en ajoutant du chlorure de mercure. Le pH initial a été ajusté avec NaOH 2N pour les bactéries sulfoxydantes neutrophiles. La même procédure a été appliquée pour les bactéries sulfoxydantes acidophiles à la différence que le pH a été ajusté à 4 avec H_2SO_4 0,5N. Tous les échantillons ont été ensuite incubés à une vitesse de 175 tr/min et à température ambiante (23°C) pendant au moins 4 à 5 semaines. Le pH et l'ORP étaient mesurés à intervalles réguliers (une fois tous les 1 à 2 jours) au moyen d'une électrode pH avec compensation automatique de la température couplée à un HI5522 pH / mv / compteur ISE. Le potentiel d'oxydation-réduction a été mesuré avec une électrode combinée Pt/Ag/AgCl couplée à HI5522 Benchtop pH/mv/ISE Meter. La

lecture a ensuite été corrigée (+ 263 mV) par rapport à l'électrode d'hydrogène normale (ENH), (ASTM D1498-2014).

Les principaux résultats de la caractérisation microbiologique des deux résidus Laronde et Westwood avant et après les tests cinétiques sont présentés au tableau 3.5. L'évolution du pH de chaque culture bactérienne et l'interprétation des résultats est présenté dans le chapitre 5.

Tableau 3.5 Distribution des bactéries ferrooxydantes acidophiles, sulfooxydantes acidophiles et neutrophiles au temps initial W0-L0 (avant tests cinétiques) et au démontage de L1-L4 et W1-W4. (W1-L1 : essais cinétique en milieu saturé à pH neutre), (W4-L4 : essai cinétique en milieu saturé à pH acide). (+) indique la présence tandis que (-) indique que les micro-organismes n'ont pas été détectés.

Caractérisation microbiologique W0-L0 (Avant les tests cinétiques)			
	Bactéries ferrooxydantes acidophiles	Bactéries sulfooxydantes neutrophiles	Bactéries sulfooxydantes acidophiles
Westwood (W0)	+	+	+/-
Laronde (L0)	+	-	+/-
(W1-L1: Après les tests cinétiques en milieu saturée à pH neutre)			
	Bactéries ferrooxydantes acidophiles	Bactéries sulfooxydantes neutrophiles	Bactéries sulfooxydantes acidophiles
Westwood (W1)	++	++	+
Laronde (L1)	++	+	+
(W4-L4: Après les tests cinétiques en milieu saturé à pH acide)			
	Bactéries ferrooxydantes acidophiles	Bactéries sulfooxydantes neutrophiles	Bactéries sulfooxydantes acidophiles
Westwood (W4)	+++	-	++++
Laronde (L4)	++-	-	-

Les résultats de l'évaluation des bactéries ferrooxydantes acidophiles au temps initial, avant le test cinétique, montrent la présence de ce groupe de micro-organismes pour les deux résidus Laronde et Westwood (Voir chapitre 5).

Pour l'évaluation de l'activité des bactéries sulfooxydantes acidophiles, pour les résidus Laronde, les essais ne montrent pas de variation significative des valeurs de pH pour les milieux sans ajout

de soufre élémentaire en début d'essai. Ceci peut s'expliquer par la faible activité de cette population bactérienne. Le même comportement a été observé pour les résidus de Westwood. L'activité de cette population bactérienne est très faible pour les deux résidus (Voir chapitre 5).

3.3 Essais cinétiques

3.3.1 Essais cinétiques en milieu saturé à pH neutre

Dans cette étude, les essais cinétiques ont été effectués dans des cellules cylindriques en plexiglas d'une hauteur de 20 cm et d'un diamètre interne de 9 cm (Figure 3.5). Le couvercle et la base en acrylique avaient deux orifices permettant de contrôler l'écoulement d'eau dans les échantillons. Les concentrations en oxygène étaient mesurées en continu au moyen de sondes (Pressens Dipping Probes) couplées à un enregistreur (OXY10). Trois sondes étaient installées dans les résidus à 2 cm, 4 cm et 6 cm au-dessus de la base des résidus et deux sondes supplémentaires étaient installées à l'entrée et à la sortie de chaque cellule. Le système (OXY-10, Oxygen Meter Precision Sensing GmbH), détecte l'oxygène dans les phases, liquide (oxygène dissous), et gazeuse (pression partielle d'oxygène). Les capteurs optiques ont été calibrés individuellement. Chaque capteur a été calibré selon les recommandations du fournisseur, en utilisant deux points de calibration:

- Cal0: 0% d'oxygène dans une solution d'eau désaérée mélangée avec du sulfite de sodium (Na_2SO_3) à une concentration de 1g/100ml.
- Cal 100: 100% d'oxygène dans une eau sursaturée en air.

Les capteurs sont sensibles aux variations de température. Les calibrations et les mesures ont été réalisées pour une température d'environ 22°C.

Tableau 3.6 Caractéristiques des essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et synthétiques en milieu saturé et insaturé à pH neutre.

Tailings	Test	Saturation	H (cm)	D (cm)	W (g)	n (-)
Laronde	L1	Saturé	19,9	9,0	1467	0,44
	L2	Saturé	20,0	9,0	1463	0,43
	L3	Insaturé	5,2	10,4	661	0,42
Westwood	W1	Saturé	20,0	9,9	1278	0,39
	W2	Saturé	20,1	9,6	1175	0,40
	W3	Insaturé	5,3	10,4	600	0,42
Synthetic	S1	Saturé	17,8	9,6	1540	0,36

Au total, six cellules ont été utilisées : deux cellules L1 et L2 pour les résidus Laronde, deux cellules W1, W2 pour les résidus Westwood et une cellule S1 pour les résidus synthétiques. Les résidus ont été compactés directement dans les cellules en 5 couches d'environ 3 cm d'épaisseur au moyen d'un marteau compacteur (2,5 kg). Le même nombre de coups a été appliqué à chaque couche pour obtenir un indice des vides uniforme dans l'échantillon (Tableau 3.6). La porosité a été estimée lors de la mise en place et confirmée au démontage (aucune variation significative entre le début et la fin des tests n'a été observée). Un géotextile (plus perméable que l'échantillon) et une fine plaque de plastique perforée ont été placés en haut et en bas de chaque cellule pour homogénéiser le débit d'eau. Les cellules ont été saturées en appliquant un faible débit ascendant d'eau désaérée.

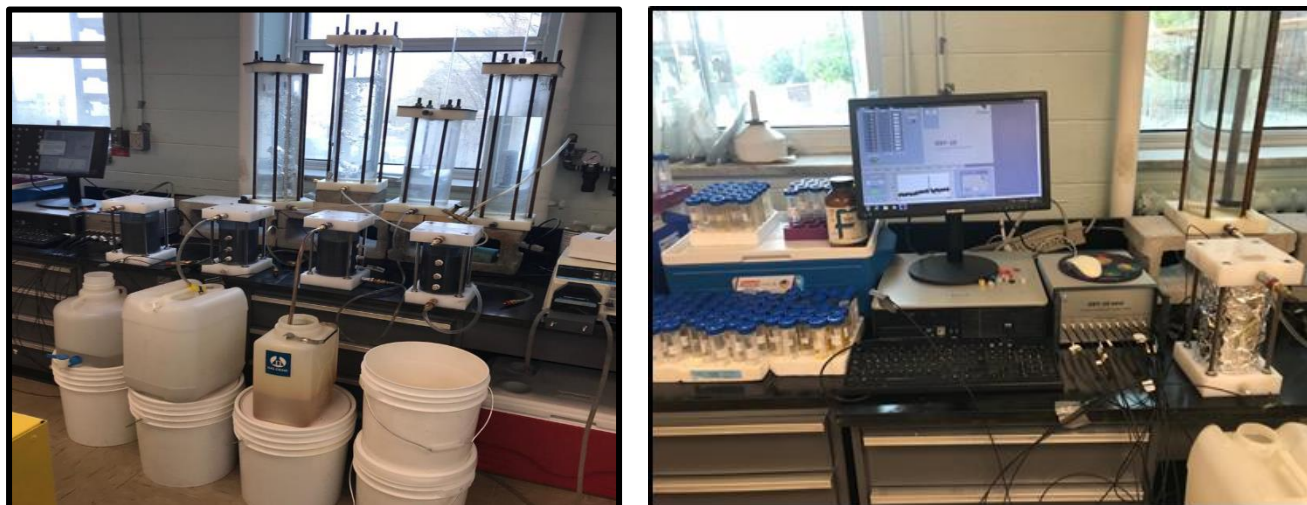


Figure 3.5 Essais cinétiques en milieu saturé à différentes concentrations en oxygène dissous pour les résidus Laronde, Westwood et synthétiques avec instrumentation des cellules.

Les essais ont ensuite été réalisés en appliquant un débit d'eau distillée vertical, ascendant et constant à l'aide de cellule Mariotte. Le gradient hydraulique a été maintenu autour de 2 et a été choisi selon les recommandations de la norme ASTM D5856-15 afin d'éviter le mouvement des particules fines et l'érosion interne. La charge d'entrée était maintenue au moyen d'une cellule Mariotte, et la charge de sortie était contrôlée par le tube de sortie qui servait aussi à l'échantillonnage de l'eau. L'eau d'entrée (eau distillée) a été régulièrement échantillonnée et caractérisée (Tableau 3.8). Sa qualité est restée relativement constante au cours des tests, à l'exception de la concentration en oxygène dissous. La concentration d'oxygène dans l'eau entrante a été modifiée au cours des essais en conditions saturées ($0\% \pm 5\%$; $50\% \pm 5\%$; $100\% \pm 5\%$). L'eau à 0% d'oxygène a été préparée au moyen d'une colonne de désaération de l'eau munie d'une pompe à vide (Fischer Lav-3/220). Après 30 minutes sous vide, l'eau était transférée directement vers la cellule Mariotte. Des sachets absorbeurs d'oxygène ont été suspendus dans la cellule Mariotte afin de maintenir une concentration de 0% d'oxygène durant toute la durée des essais. La concentration réelle d'oxygène est confirmée par les capteurs à l'entrée.

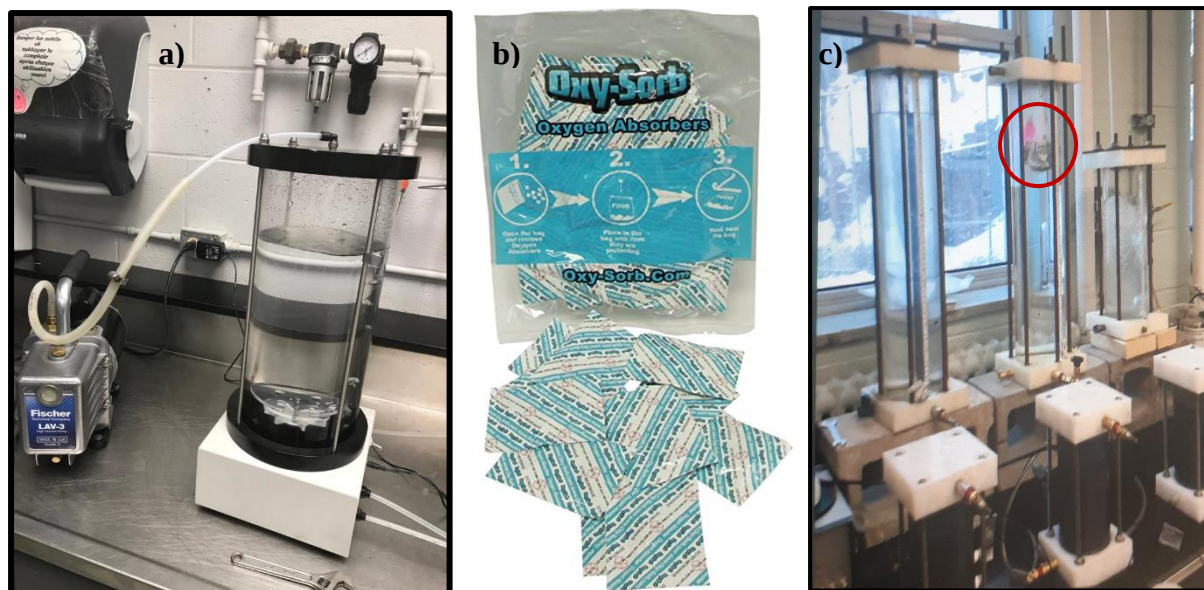


Figure 3.6 a) Colonne de désaération de l'eau au laboratoire, b) sachets absorbeurs d'oxygène, c) les sachets absorbeurs d'oxygène suspendus dans la cellule Mariotte durant les tests cinétiques.

Le lixiviat a été échantillonné en continu à la sortie des cellules dans des tubes à essai en plastique avec joint en silicone pour laboratoire (100 mL) et filtré sous vide à $0,47\ \mu\text{m}$ (papier filtres qualitatifs Whatman disques à plat). Les échantillons ont ensuite été acidifiés en utilisant 2% v/v de concentré d'acide nitrique (HNO_3) (méthodes APHA 3010, 1995) avant d'être envoyés pour analyse chimique avec une fréquence d'une fois par semaine (Balayage ICP à l'UQAT). La concentration en sulfate a été analysée quotidiennement à l'aide d'une méthode colorimétrique avec du chlorure de baryum (BaCl_2) avec un spectrophotomètre (LaMotte 2000) à Polytechnique Montréal au laboratoire de Géochimie du département CGM. Une courbe d'étalonnage a été tracée en utilisant des solutions étalons certifiées et l'intervalle d'analyse se situe entre 6 et 100 ppm. Le pH, la conductivité électrique et le potentiel d'oxydoréduction (POR) ont été mesurés quotidiennement. Le pH a été mesuré au moyen d'une électrode à compensation de température automatique connectée à un pH-mètre HI5522 pH / mv / ISE (Hanna Instruments). Le POR a été mesuré en utilisant une électrode combinée Pt/Ag/ AgCl avec un appareil de mesure de pH/mv/ ISE HI5522 Benchtop. La lecture a été corrigée (+263 mV) pour l'électrode à hydrogène normale (ENH) (ASTM D1498-2014). Un conductimètre HI 76312 équipé d'une sonde en platine 4 anneaux / TDS avec capteur de température interne a été utilisé pour mesurer la conductivité électrique (l'effet de la température a été automatiquement compensé).

Tableau 3.7 Caractéristiques et durée des essais des résidus Laronde, Westwood et synthétiques en milieu saturé à différentes concentrations en oxygène dissous.

	i (-)	Cycle/durée de test (jours /volume des pores)				Total
		[O ₂] = 100%	[O ₂] = 50%	[O ₂] = 0%	[O ₂] = 100%	
L1	2	24 / 80	17 / 64	9 / 34	9 / 34	59 / 212
L2	2	24 / 73	14 / 54	8 / 30	13 / 49	59 / 206
W1	2	20 / 29	11 / 25	11 / 25	7 / 17	49 / 96
W2	2	20 / 34	11 / 25	11 / 25	7 / 17	49 / 101
S1	2	19 / 60	9 / 31	9 / 31	8 / 27	45 / 149

La durée des essais cinétique L1 et L2 était de 2 mois. De l'eau à différentes concentrations d'oxygène dissous (100% $\pm$ 5% d'eau oxygénée ou $\pm$ 8,72 mg/l, 50% $\pm$ 5% d'eau oxygénée ou $\pm$ 4,36 mg/l et 0 % $\pm$ 5 % d'eau non oxygénée d'O₂) a été utilisée pour alimenter les colonnes. La durée du premier cycle était de 24 jours, ce qui correspondait à un volume de pore équivalent de 80 (-) avec une eau à 100% d'oxygène dissous. Par la suite une eau à 50% $\pm$ 5% d'eau oxygénée a été utilisée pour le deuxième cycle qui a duré 17 jours ce qui correspondait à un volume de pore équivalent de 64 (-). La durée du troisième cycle était neuf jours ce qui correspondait à un volume des pores de 34 (-) avec une eau non oxygénée. Un quatrième cycle a été ajouté à la fin de l'essai cinétique avec une eau oxygénée à 100% $\pm$ 5% d'oxygène dissous. Pour s'assurer que le phénomène est réversible.

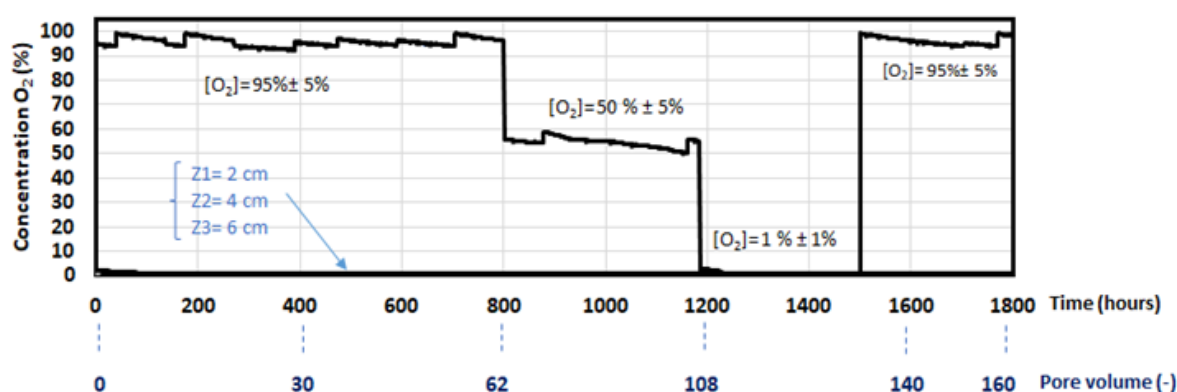


Figure 3.7 Évolution de la concentration d'oxygène mesurée durant les 4 cycles de l'essai cinétique L1 (résidus de Laronde) en conditions saturées à pH neutre avec précision du volume de pore équivalent.

Tableau 3.8 Qualité chimique de la solution d'entrée (eau distillée) utilisée dans les essais cinétiques en milieu saturé à pH neutre pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétique.

Eau distillée (en mg/l)			
Eléments	Valeurs	Eléments	Valeurs
pH	5,9	Na	0,021
E (mV)	328	Ni	<0,004
Sulfates	5	Pb	<0,02
Al	0,014	Sr	<0,001
As	<0,06	Si	<0,04
Ca	0,275	Zn	0,007
Cd	<0,003	Mo	<0,009
Co	<0,004	Mn	<0,002
Cr	<0,003	Mg	0,002
Cu	<0,003	K	<0,04
Fe	0,012	Al	0,014

Des essais cinétiques supplémentaires dans des conditions non saturées ont été effectués sur les résidus Laronde et Westwood dans des cellules cylindriques ouvertes en plexiglas (15,6 cm de hauteur, 10,4 cm de diamètre interne; Figure 3.8.b) nommées respectivement L3 et W3. La configuration des cellules était similaire à celles des conditions saturées (voir ci-dessus). L'épaisseur des résidus était de 5,2 cm dans les deux cellules L3 et W3 et le reste de la cellule (> 10 cm) a été laissé vide pour permettre l'ajout d'eau (Figure 3.8.b). Le sommet des cellules a été laissé ouvert pour simuler les conditions atmosphériques (évaporation et libre accès de l'oxygène). Tous les 7 jours environ, 1 L d'eau distillée correspondant à environ trois fois le volume des pores, a été ajouté au sommet des cellules. Des lixiviats ont été collectés à la sortie (en bas) des cellules dans des bouteilles en plastique (100 mL) et analysés selon la même procédure que pour les tests en conditions saturées.

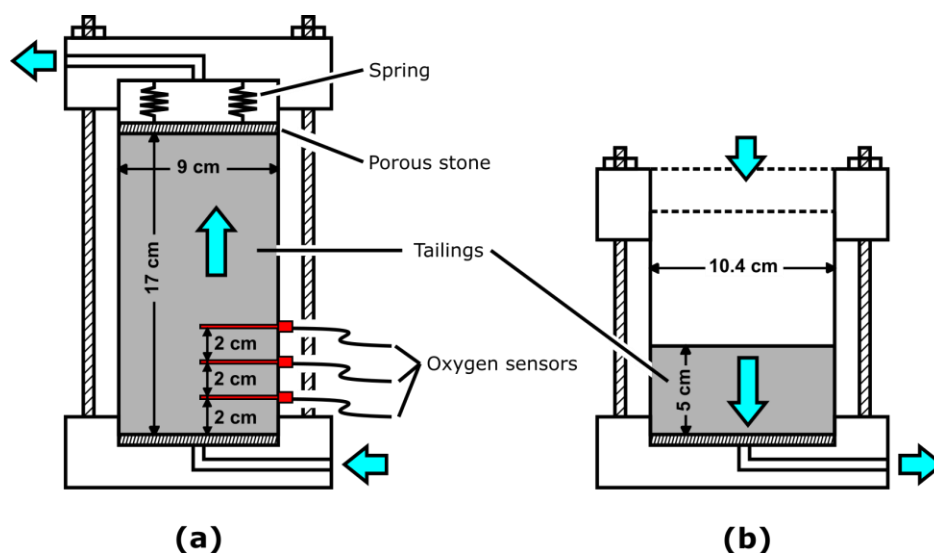


Figure 3.8 Configuration des essais cinétiques: a) conditions saturées, b) conditions non saturées. Les flèches bleues indiquent la direction du d'écoulement de l'eau.

3.3.2 Essais cinétiques en milieu saturé à pH acide

Des essais cinétiques ont été menés en milieu saturé à pH acide avec différentes concentrations de fer en solution (1500, 1000, 500 et 200 mg/L). Les solutions ont été préparées de la manière suivante; 22,3, 14,9, 7,4 et 3 g de sulfates de fer ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) respectivement ont été ajoutés à 3000 mL d'eau distillée. Le pH de la solution a été ajusté à $1,0 \pm 0,2$ en utilisant de l'acide sulfurique à 98%, et le potentiel redox de la solution a été ajusté à 900 mv avec 30% de H_2O_2 . L'ajout d'acide sulfurique et de peroxyde d'oxygène avait pour objectif de maintenir des conditions oxydantes et acides pour empêcher la précipitation du fer. Le programme Act2 (Geochemist's Workbench, 2023) a été utilisé pour calculer et tracer des diagrammes d'activité du fer (Figure 3.9), indiquant ainsi sur un plan POR/pH les domaines d'existence ou de prédominance des différentes formes du fer (solution d'entrée était une solution oxydante et acide où la quasi-totalité du fer était sous forme de ferre ferrique (Fe^{3+}) et la forme ionique du fer récupéré dans la solution de sortie est sous forme de fer ferreux (Fe^{2+})).

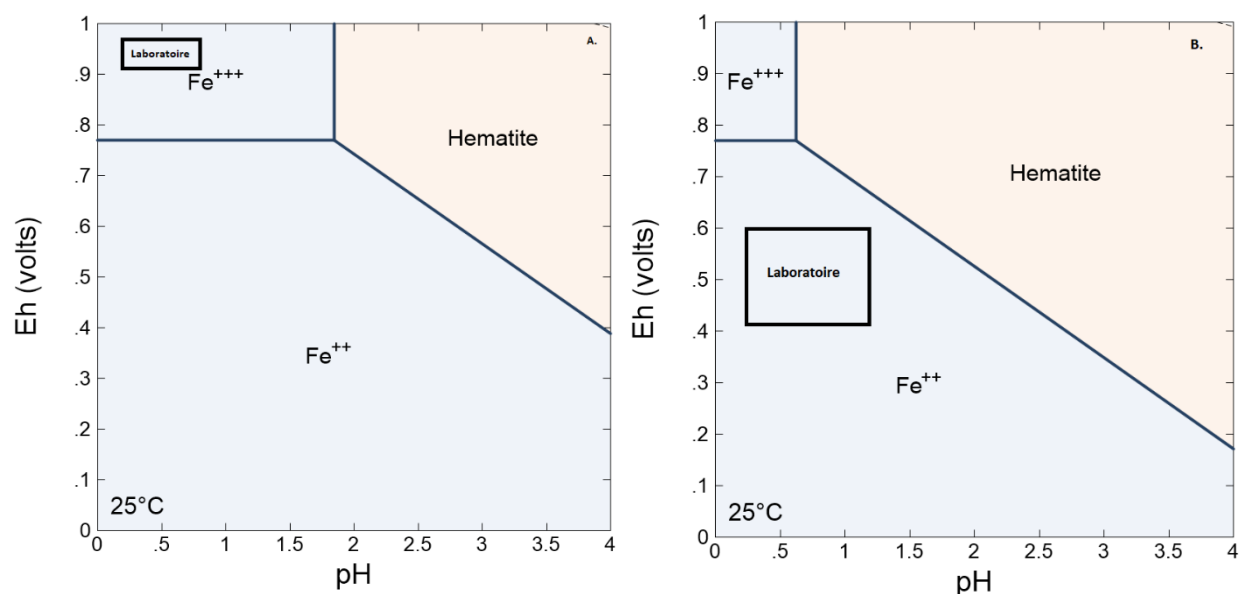


Figure 3.9 Diagrammes Eh-pH (A) de la solution du fer ferrique oxydée à l'entrée des essais cinétiques (Fe : 1500 mg/l) et (B) la solution du fer ferreux (Fe : 1906 mg/L) réduit dans le lixiviat à la sortie des essais cinétiques (diagrammes réalisés avec Geochemist Workbench, 2023). Les conditions mesurées au laboratoire sont indiquées par un rectangle noir.



Figure 3.10 Essais cinétiques en milieu saturé à pH acide pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétique à différentes concentration du fer ferrique avec instrumentation des cellules.

Les essais cinétiques ont été réalisés dans des cellules cylindriques en plexiglas d'une hauteur de 20 cm et d'un diamètre interne de 9,5 cm (Figure 3.10). Le couvercle et la base en acrylique avaient deux orifices permettant de contrôler l'écoulement d'eau dans les échantillons. Les colonnes ont été recouvertes de papier aluminium pour empêcher le développement et la croissance de bactéries photolithotrophes. Deux sondes (Pressens Dipping Probes) couplées à un enregistreur (OXY10) ont été installées à l'entrée et à la sortie de chaque cellule pour mesurer les concentrations en oxygène au cours du temps. L4 pour les résidus Laronde, W4 pour les résidus Westwood et S2 pour les résidus synthétiques. Le montage des colonnes (L4, W4 et S2) est similaire au montage des cellules (L1&L2, W1&W2 et S1) (voir Section 3.3.1). La qualité chimique des solutions d'entrée utilisées dans les essais cinétique en milieu acide est présentée dans le tableau (3.10) et les caractéristiques des essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et synthétique en milieu saturé à pH acide à différentes concentrations en fer sont présentées dans le tableau 3.9.

Tableau 3.9 Caractéristiques des essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et synthétique en milieu saturé à pH acide.

Tailings	Tests	(i)	Saturation	H (cm)	D (cm)	Masse (g)
Laronde	L4	2	Saturé	19,92	9	1284
Westwood	W4	2	Saturé	20	9,9	1288
Synthétique	S2	2	Saturé	17,8	9,6	1540

Tableau 3.10 Qualité chimique des solutions d'entrée (fer ferrique) utilisées dans les essais cinétiques en milieu saturé à pH acide.

Concentration des solutions d'entrées en (mg/L)				
Elements	1500mg/L	1000mg/L	500 mg/L	200mg/L
pH	1,1	1,1	1,1	1,1
E (mV)	905	907	900	889
Sulfates	17690	16950	16100	15200
Al	0,014	0,014	0,014	0,014
As	-	-	-	-
Ca	0,32	0,06	0,07	0,07
Cd	0,02	0,03	0,04	0,04
Co	0,13	0,18	0,24	0,30
Cr	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01
Cu	0,04	0,03	0,06	0,09
Fe	1500	1000	500	200
K	<0,04	<0,04	<0,04	<0,04
Mg	0,08	0,04	0,07	0,07
Mn	0,37	0,61	1,18	1,67
Mo	<0,009	<0,009	<0,009	<0,009
Na	0,46	0,12	0,18	0,20
Ni	0,12	0,16	0,24	0,34
Pb	0,08	0,10	0,12	0,12
Sr	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001
Si	<0,04	<0,04	<0,04	<0,04
Zn	0,05	0,04	0,05	0,06

Les lixiviats ont été filtrés sous vide à 0,47 μm (papier filtres qualitatifs Whatman disques à plat). Les échantillons ont ensuite été acidifiés en utilisant 2% v/v de concentré d'acide nitrique (HNO_3) (méthodes APHA 3010, 1995) avant d'être envoyés pour analyse chimique. Aucune précipitation surtout du fer à la sortie du système n'a été enregistrée durant toute la période du test. Les solutions ont été analysées selon les mêmes modalités et le même protocole que les essais cinétiques en milieu neutre pour les principaux éléments dissous (Mg, Mn, Ca, Cu, Fe et Zn). Les concentrations de sulfates ont été mesurées en utilisant une méthode colorimétrique avec du chlorure de baryum (BaCl_2), (BARIUM CHLORIDE METHOD.CODE3665-SC).

Le fer ferreux a été mesuré par spectrophotomètre à l'aide de l'orthophénanthroline ($C_{12}H_8N_2$, H_2O), (PHENANTHROLINE METHOD.CODE3668-SC).



Figure 3.11 Préparation des solutions à différentes concentration du fer pour tracer la courbe d'étalonnage.

3.4 Essais de codisposition

Dans cette partie de l'étude, des essais de codisposition ont été effectués dans des colonnes cylindriques en plexiglas d'une hauteur de 60 cm et d'un diamètre interne de 15 cm (Figure 3.14). Le couvercle et la base en acrylique avaient deux orifices permettant de contrôler l'écoulement d'eau dans les échantillons. Les concentrations en oxygène étaient mesurées en continu au moyen de sondes (Pressens Dipping Probes) couplées à un enregistreur (OXY10) selon le même protocole que les essais précédents. Deux sondes étaient installées dans la colonne du sable à 20 cm et 40 cm et deux sondes supplémentaires étaient installés à l'entrée et à la sortie de chaque colonne. La concentration d'oxygène dans l'eau d'entrée a été maintenue autour de $95\% \pm 5\%$

Les colonnes ont été construites selon le schéma de codisposition illustré dans la figure 3.14. Avant le montage des cellules et pour s'assurer que le sable utilisé dans l'inclusion est propre, 15 cycles de rinçages du sable ont été réalisés, jusqu'à ce que la conductivité électrique et le pH du lixiviat devienne constant ($pH=7$, Conductivité= $50\mu S$). Une analyse de la qualité chimique du lixiviat du dernier cycle est présentée dans le tableau 3.12.

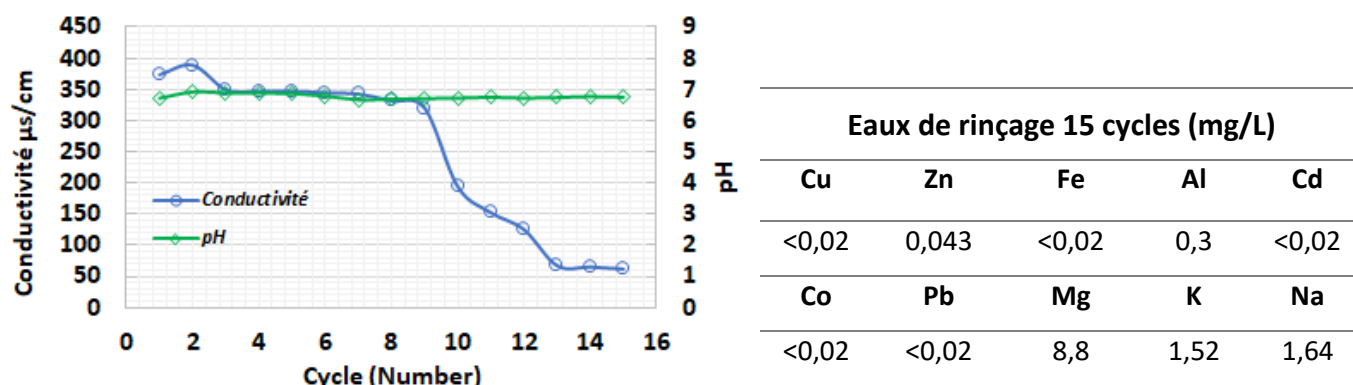


Figure 3.12 (a) Évolution de la conductivité électrique et du pH au cours du lavage du sable. (b) Qualité chimique du lixiviat du dernier cycle (lavage15).

Un tube en plastique de 5 cm de diamètre a été placé au centre de la colonne et a été progressivement rempli de sable, en même temps que les résidus étaient placés sur leur pourtour (Figure 3.13b). Les résidus ont été compactés directement dans les cellules en 4 couches d'environ 11 cm d'épaisseur au moyen d'un marteau compacteur (2,5 kg). Le même nombre de coups a été appliqué à chaque couche pour obtenir un indice des vides uniformes dans l'échantillon. La porosité a été estimée lors de la mise en place et confirmée au démontage (aucune variation significative entre le début et la fin des tests n'a été observée). Un géotextile (plus perméable que l'échantillon) et une fine plaque de plastique perforée ont été placés en haut et en bas de chaque cellule pour homogénéiser le débit d'eau. Les cellules ont été saturées en appliquant un faible débit ascendant d'eau désaérée. La hauteur des résidus était d'environ 45 cm.

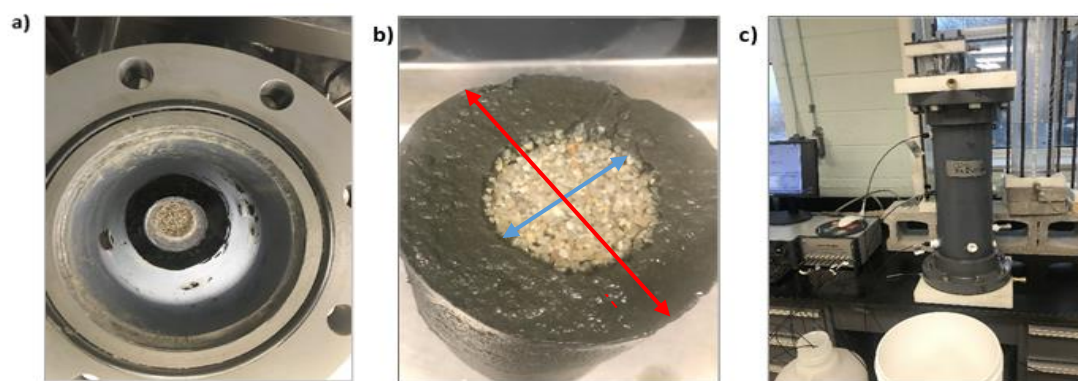


Figure 3.13 Montage progressive des colonnes des résidus Laronde et Westwood en milieu saturé à pH neutre avec l'utilisation du sable comme inclusion.

Plusieurs paramètres ont été testés : **(1)** le gradient hydraulique a été modifié pour évaluer son effet sur l'oxydation des résidus et la qualité de l'eau, (les valeurs choisies sont : 0,1-0,2-0,4 et 0,5). Pendant les 20 premiers jours de l'essai, qui correspondaient à 27 volumes de pores, la valeur du gradient hydraulique était d'environ 0,1. Le gradient hydraulique est ensuite porté à 0,2 de 21 à 28 jours ce qui correspond à 53 volumes poreux. Entre 29 et 43 jours le gradient hydraulique est de l'ordre de 0,4 puis passe à 0,5 de 43 à 47 jours ce qui correspond à 115 volumes poreux. **(2)** effet de la composition minéralogique. Deux résidus ont été utilisés lors des simulations : Laronde (18 % poids de pyrite ; 1,1% poids de calcite) Westwood (4,3% poids de pyrite ; 3,5% poids de calcite et 2,2% poids de dolomite). Le lixiviat a été prélevé en continu à la sortie des cellules, le pH, le POR, la conductivité électrique et les concentrations de sulfate ont été mesurés quotidiennement. Les échantillons envoyés pour les analyses élémentaires ICP ont été acidifiés en utilisant 2% v/v de concentré d'acide nitrique (HNO_3) (APHA Methods 3010, 1995). Les concentrations de sulfate ont été mesurées à l'aide d'une méthode colorimétrique avec du chlorure de baryum (BaCl_2) en utilisant le spectrophotomètre (LaMotte 2000).

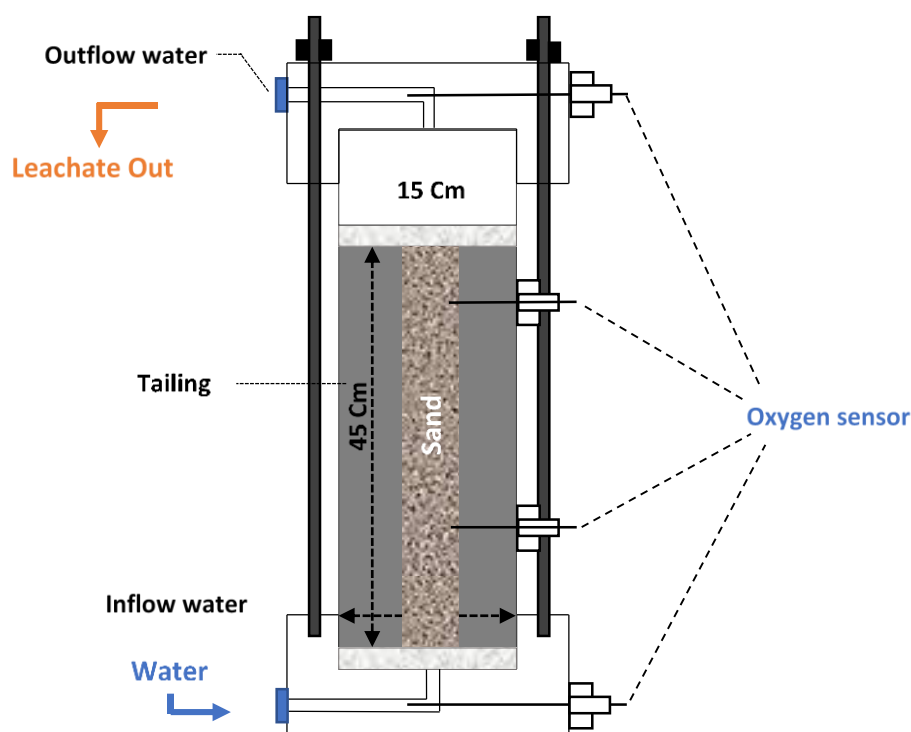


Figure 3.14 Essai cinétique en milieu saturé avec codiposition du sable en inclusion au centre de la colonne avec précision de la la position des sondes et le sens d'écoulement de l'eau.

3.5 Modélisation hydrogéochimique

La modélisation hydrogéochimique a été réalisée au moyen du code numérique Min3P (Mayer et al., 2002 ; voir description détaillée à la section 2.8.2). Le modèle est basé sur l'hypothèse que l'écoulement de l'eau en milieu saturé se fait selon la loi de Darcy modifiée par Richards (1931), présentée à la section 2.8.2. Le transport de l'oxygène est régi par les lois de Fick (section 2.7.1).

La première étape a consisté à calibrer les modèles numériques avec pour objectif de reproduire numériquement les résultats obtenus au laboratoire puis, les modèles ont été extrapolés pour des conditions plus représentatives d'une fosse remblayée. L'objectif final des simulations était d'évaluer quel pourrait être le comportement géochimique et hydrogéologique à long terme des résidus réactifs déposés dans une fosse avec ou sans codisposition.

3.5.1 Construction du modèle numérique

Les colonnes (avec une hauteur $Z=0,45$ m, une longueur $Y=0,15$ m et une largeur $X=0,15$ m) ont été simulées sous forme de parallélépipèdes et uniformément discrétisées avec des éléments d'une hauteur de 0,001 m. La taille totale du modèle correspond aux dimensions réelles des colonnes (voir figure 3.15). Le maillage utilise des éléments d'une hauteur 3 cm pour l'axe X, 3 cm pour l'axe Y et 5 cm pour l'axe Z pour les modèles de calibrage (essais en laboratoire). La température a été fixée à 22 °C. Le coefficient de diffusion de l'oxygène dans l'eau (D_{w0}) était de $2,38 \times 10^{-9}$ m²/s et celui dans l'air (D_{a0}) était de $2,07 \times 10^{-5}$ m²/s (Glinski et Stepniewski, 1985, tel qu'utilisé par Mayer et al (2002)). La dispersivité longitudinale pour chaque colonne correspondait à 1/10 de l'échelle du système (Gelhar et al., 1992) et était ici de 0,045 m.

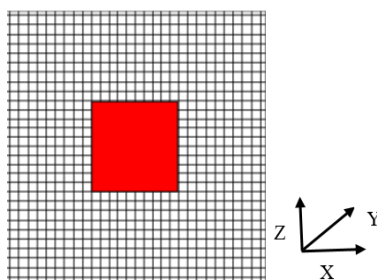


Figure 3.15 Domaine du modèle et conditions frontières utilisés pour les calibrations. La zone rouge au milieu représente l'inclusion de sable entourée de résidus miniers.

Les simulations ont été réalisées en deux étapes. Dans un premier temps, seul l'écoulement (sans réaction chimique) a été simulé, en appliquant des conditions aux limites représentatives des conditions de laboratoire pour garantir que le code Min3P reproduit correctement les conditions hydrogéologiques au sein du laboratoire. La conductivité hydraulique saturée a été mesurée au laboratoire et prédite avec l'équation de Kozeny-Carman Modifiée. Lors de la simulation des paramètres hydrogéologiques, les Ksat des résidus mesurés en laboratoire ont été utilisés sans modification. Le ksat utilisé du sable a été réduit de 0,5 fois ($K_{sat} \text{ laboratoire} = 2,5E^{-02} / K_{sat} \text{ simulation} = 1,4E^{-02}$) afin que les valeurs de débit simulées soient en bon accord avec les valeurs mesurées en laboratoire. Une fois le modèle hydrogéologique validé, les paramètres minéralogiques et géochimiques ont été ajoutés. La durée des simulations était très variable d'un modèle à l'autre et pouvait aller de quelques minutes à plusieurs jours pour les modèles les plus complexes. La durée des calculs était fonction du nombre d'éléments, du gradient hydraulique appliqué, de la composition minéralogique et chimique des résidus et de la présence ou non des matériaux inertes (co-disposition).

3.5.2 Propriétés simulées des matériaux

Les éléments introduits dans les simulations étaient ceux mesurés en laboratoire, avec l'ajout d'autres éléments nécessaires aux réactions (par exemple CO_3^{2-} produit par la dissolution des carbonates, Cl^- qui permettait d'équilibrer les charges ioniques). Au total, 18 éléments sont inclus dans les simulations: $O_2(aq)$, Fe^{+2} , SO_4^{-2} , H_4SiO_4 , K^{+1} , Al^{+3} , Fe^{+3} , CO_3^{-2} , HS^{-1} , Na^{+1} , Mg^{+2} , Cl^{-1} , H^{+1} , Ca^{+2} , Cu^{+2} , Mn^{+2} , Mn^{+3} . Deux couples redox Fe^{2+} / Fe^{3+} et SO_4^{2-} / HS^- ont également été simulés.

Les espèces secondaires ont été déterminées au moyen du code d'équilibre thermodynamique VMinteq et 148 espèces au total ont été identifiées, sur la base de ces résultats et de calculs préliminaires, Min3P rejette les espèces présentes en trop faibles quantités, et les espèces finalement retenues étaient donc au nombre de 14.

```

54 'secondary aqueous species'
55 14 ;number of secondary aqueous species
56 'reso4aq'
57 'hso4-'
58 'h2so4(aq)'
59 'oh-'
60 'aloh+2'
61 'feoh+'
62 'also4+'
63 'caso4aq'
64 'caco3aq'
65 'hco3-'
66 'fe2(oh)2+4'
67 'h3sio4-'
68 'cuoh+'
69 'cuso4aq'

```

Figure 3.16 La liste des espèces secondaires prise en considération par le code Min3P.

Pour les résidus Laronde, 4 minéraux ont été simulés à savoir la pyrite, le quartz, la calcite et la muscovite. Pour les résidus Westwood, 5 minéraux ont été pris en considération à savoir la pyrite, le quartz, la calcite, la muscovite et la dolomite. Le rutile, le corundum et la paragonite, également détectés au DRX dans les résidus Laronde, mais n'ont pas été pris en compte dans les simulations d'une part parce que les fractions étaient faibles (Rutile : 1.7%) et d'autre part parce que ces minéraux étaient absents la base de données de Min3P. Les minéraux non simulés ont été remplacés par du quartz afin de maintenir la porosité du milieu égale à celle mesurée dans les cellules. Les fractions solides des différents minéraux ont été calculées à partir des teneurs massiques mesurées par diffraction des rayons X, de leur densité dans la base de données de MIN3P et de la porosité du milieu. Les résultats des calculs sont présentés dans le tableau 3.11. Dans les apports minéraux, deux types de mise à jour ont été utilisés « constant » pour le quartz, la calcite et la muscovite ou « deux tiers » pour la pyrite et la chalcopryrite. Un type de mise à jour "constant" signifie que la réactivité minérale reste constante au cours d'une simulation. Cette spécification est la plus couramment utilisée (Mayer, 2002). La spécification de type de mise à jour «deux tiers» implique qu'une relation de puissance deux tiers de la forme est utilisée pour mettre à jour la réactivité minérale (Mayer, 2002).

Tableau 3.11 Densités minérales et fractions volumiques des résidus miniers utilisés dans la simulation. Les fractions de volume minéral utilisées dans le modèle sont également présentées.

Minérale	Formule	Fraction massique XRD (%)	Densité (g/cm3)	Fv model (cm3/cm3)
Laronde				
Quartz	SiO ₂	59,66	2,65	0,4902
Calcite	CaCO ₃	1,10	2,71	0,0001
Pyrite	FeS ₂	18,01	5,02	0,0594
Chlorite	(Fe,Mg,Al) ₆ (Si,Al) ₄ O ₁₀ (OH) ₈	3,60	3,00	0,0000
Muscovite	KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀) (OH,F) ₂	3,46	2,82	0,0203
Orthoclase	KAlSi ₃ O ₈	10,62	2,56	0,0000
Paragonite	NaAl ₂ [(OH) ₂ AlSi ₃ O ₁₀]	0,000	2,78	0,0000
Albite	NaAlSi ₃ O ₈	4,64	2,60	0,0000
Total		100,0	24,14	0,57
Westwood				
Quartz	SiO ₂	44,9	2,65	0,4887
Pyrite	FeS ₂	4,3	5,02	0,0137
Chlorite	(Fe,Mg,Al) ₆ (Si,Al) ₄ O ₁₀ (OH) ₈	13,5	3,00	0,0000
Muscovite	KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀) (OH,F) ₂	1,2	2,82	0,0068
Albite	NaAlSi ₃ O ₈	16,0	2,60	0,0000
Chalcopyrite	CuFeS ₂	1,9	4,10	0,0074
Corundum	Al ₂ O ₃	10,5	4,02	0,0000
Rutile	TiO ₂	1,7	4,23	0,0000
Calcite	CaCO ₃	3,5	2,71	0,0209
Dolomite	CaMg(CO ₃) ₂	2,2	2,85	0,0125
Total		99,8	34,00	0,55
<i>Paramètres physiques utilisés dans la simulation des échantillons étudiés</i>				
		Laronde	Westwood	Sand
Ø ^a Porosité		0,43	0,45	0,32
Conductivité hydraulique saturée (m/s)		2,0 x10 ⁻⁰⁶	4,0x10 ⁻⁰⁶	1,4 x10 ⁰²

Tableau 3.12 Taux de réaction des minéraux et coefficients de réaction utilisés dans les simulations pour les résidus Laronde, Westwood et le Synthétique.

Minérale	Expression du taux (100% O2)	K_k^{eff} Laronde	K_k^{eff} Westwood	Type
Pyrite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{Fe^{2+}\}\{SO_4^{2-}\}^{5.6}\{H^+\}^2\{H_2O\}^{-1}\{O_2(aq)\}^{-3.5}}{k_{i,eq,25}} \right\}$	4×10^{-7}	4×10^{-7}	Two thirds
Quartz	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{H_2O\}^{-2}\{H_4SiO_4\}}{k_{i,eq,25}} \right\}$	10^{-08}	10^{-08}	Constant
Calcite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{Ca^{2+}\}^2\{CO_3^{2-}\}^{0.8}}{k_{i,eq,25}} \right\}$	10^{-10}	1×10^{-4}	Constant
Muscovite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{K^+\}\{Al^{3+}\}^3\{H_4SiO_4\}^3\{H^+\}^{-10}}{k_{i,eq,25}} \right\}$	10^{-10}	10^{-10}	Constant
Dolomite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{Ca^{2+}\}\{Mg^{2+}\}^2\{CO_3^{2-}\}^2}{k_{i,eq,25}} \right\}$	-	1×10^{-4}	Constant
Chalcopyrite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{h^+\}^{-2}\{Cu^{2+}\}\{Fe^{2+}\}\{hs^-\}^2}{k_{i,eq,25}} \right\}$	-	8×10^{-7}	Two thirds

3.5.3 Conditions frontières

Les conditions frontières dans les modèles Min3P étaient de deux types : les conditions frontières hydrogéologiques et les conditions frontières géochimiques. Les côtés des colonnes étaient considérés imperméables (comme dans les essais au laboratoire). Une recharge constante était appliquée à la base des colonnes (gradient hydraulique $i = 0.1 / 0,495 \text{ m}$). La pression d'eau simulée au sommet de chaque colonne était fixée à 0m, afin d'imposer un écoulement vertical ascendant. Le système était considéré saturé en eau durant toute la durée des simulations. La condition frontière supérieure géochimique était de type Dirichlet. La condition limite inférieure à la base des colonnes permettait de simuler l'entrée d'eau distillée dont les concentrations ont été mesurées (Tableau 3.8) et légèrement adaptées pour assurer son électroneutralité. Le bilan ionique est de +0,75% (estimé par le code Min3P).

Tableau 3.13 Composition chimique des surnageants (cas initial) et de l'eau (E.D.M) utilisées dans les modélisations avec MIN3P.

Eléments	Eau ajoutée (mg/L)	Eau interstitielle initiale Laronde (mg/L)	Eau interstitielle initiale Westwood (mg/L)
pH	5,9	7,1	7,91
O₂	8,6	0,07	0,6
Mn²⁺	<0,002	7,01	0,05
Zn²⁺	0,007	2,02	0,03
SO₄²⁻	5	785	901
Al³⁺	0,014	0,076	0,5
Cl⁻	3,5	36	35
CO₃²⁻	1,4	0,01	0,04
H₄SiO₄	<0,001	1,6	1,5
HS⁻	<0,001	1e ⁻¹⁰	1e ⁻¹⁰
Ca²⁺	0,275	645	42,80
Mg²⁺	<0,002	27,8	2,99
K⁺	<0,04	22,8	21
Na⁺	0,021	83,5	73
Fe³⁺	<0,001	1e ⁻¹⁰	1e ⁻¹⁰
Fe²⁺	0,012	1,47	0,05

3.5.4 Calibration du système

La validation d'un modèle numérique consiste à vérifier que le code résout correctement les équations utilisées dans l'étude (par exemple, les équations d'écoulement et de transport) et qu'il est bien documenté (Chapuis et al., 2001; Pabst, 2008). Le logiciel MIN3P ayant déjà été utilisé dans le cadre de nombreux projets antérieurs, il n'a pas fait l'objet d'une validation supplémentaire dans ce présent travail (Gosselin, 2007), (Pabst, 2008), (Ouangrawa, 2009), (Demers et al., 2013), (Javadi et al., 2019), (Raymond et al., 2020).

Par la suite la calibration des simulations avec Min3P a été réalisée sur les résultats des essais cinétiques au laboratoire. Elle consiste à comparer les résultats des simulations avec ceux obtenus dans les essais cinétiques de laboratoire et voir si les résultats sont similaires.

Dans un premier temps, nous avons simulé les conditions d'écoulement uniquement, en appliquant des conditions aux limites représentatives des conditions de laboratoire sans tenir compte du transport réactif. La phase de calibration a permis de constater que notamment en ce qui a trait aux propriétés hydrogéologiques des matériaux, le modèle numérique était en mesure de reproduire relativement bien les observations et les mesures de laboratoire. Les tendances générales sont bien

respectées et les vitesses d'écoulement sont assez bien reproduites par les simulations. Par la suite, nous avons utilisé les mêmes paramètres auxquels les données géochimiques ont été ajoutées.

La calibration des paramètres géochimiques a été effectuée de manière itérative (plusieurs simulations ont été nécessaires pour obtenir les paramètres ajustés). Lors de la calibration géochimique des différentes concentrations d'oxygène à différentes profondeurs de la colonne, nous avons agi sur deux paramètres. « Effectif rate constant » et « Dispersivité ». Les teneurs minéralogiques ne sont pas modifiées, mais le paramètre «Effectif rate constant» a été changé plusieurs fois, notamment pour la pyrite car lorsqu'on utilise des valeurs élevées, il y a une surestimation de la réactivité de la pyrite et une consommation rapide d'oxygène, ce qui ne correspond pas à les valeurs mesurées en laboratoire. La valeur choisie de «Effectif rate constant» de la pyrite lors des simulations était de $4 \times 10^{-07} \text{ mol/m}^3\text{s}$.

Une fois les calibrations terminées, le modèle numérique a été utilisé pour extrapoler les résultats à plus grande échelle et plusieurs scénarios ont été simulés et testés à savoir l'effet de la largeur de l'inclusion (10m, 20m and 30m), l'effet de la composition minéralogique (Westwood & Laronde) et l'effet du gradient hydraulique ($i=1/i=0.1/i=0.01$).

CHAPITRE 4 OXYDATION DIRECTE

L'objectif principal de ce chapitre était d'évaluer expérimentalement l'effet de l'oxygène dissous sur l'oxydation de différents résidus saturés. Les propriétés hydrogéotechniques et minéralogiques de ces résidus ont été présentées en détails au chapitre 3.

Les résultats des essais cinétiques en cellule effectués au laboratoire sont présentés dans ce qui suit, et en particulier le comportement géochimique des résidus en conditions saturées et non saturées, et l'effet de la concentration en oxygène dissous sur l'oxydation directe en milieu saturé. Les résultats ont également été appliqués au cas du remblayage d'une fosse et des recommandations pratiques sont proposées afin de limiter le taux de génération de DMA de résidus réactifs ennoyés dans une fosse en milieu saturé à pH neutre et à différentes concentrations d'oxygène dissous.

Les différentes études menées sur l'effet de l'oxygène dissous sur l'oxydation des sulfures métalliques et l'étude du mécanisme d'oxydation par l'oxygène se sont concentrés sur des sulfures purs (ex. pyrite, pyrrhotite, chalcopyrite) (McKibben et al., 1986; Nordstrom et al., 1987, Belzile et al., 2004, Heyun Suna et al., 2015). Contrairement à cette présente étude où nous avons étudié l'effet de l'oxygène dissous sur l'oxydation d'un résidu qui contient plusieurs phases minéralogiques pour être plus représentatif et plus proche de la réalité.

4.1 Comparaison du comportement géochimique des résidus réactifs en conditions saturées et non saturées

Les essais cinétiques réalisés en conditions non saturées ont confirmé que les résidus Laronde et Westwood étaient générateur de DMA. Les résultats de l'évolution du pH, de la conductivité électrique, des concentrations de sulfates et des métaux pour les résidus Laronde et Westwood, en conditions saturées et non saturées lors des essais cinétiques sont présentés dans les (Figures 4.1 et 4.2).

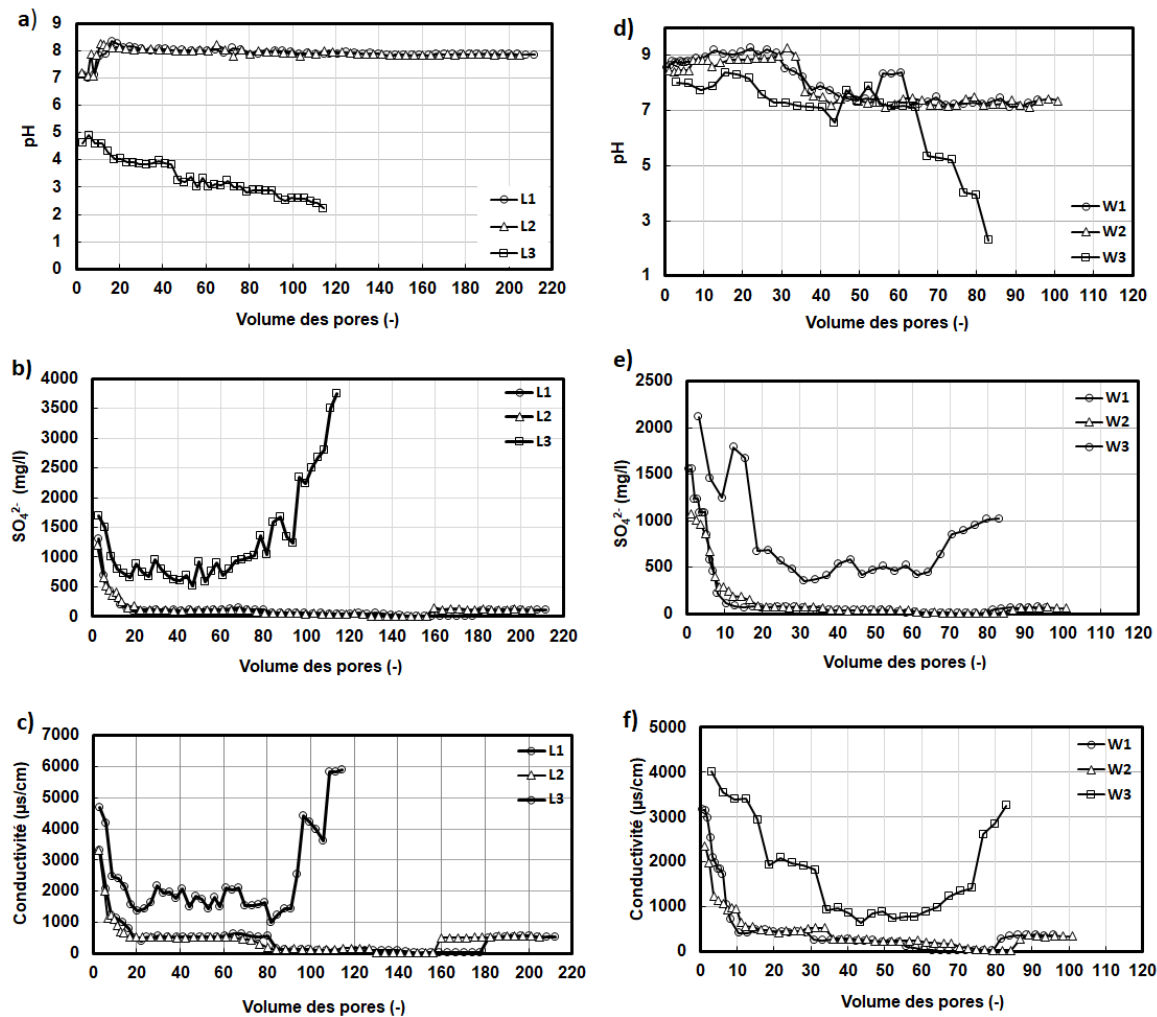


Figure 4.1 Évolution du pH, de la conductivité électrique et des concentrations de sulfates pour les résidus Laronde et Westwood, en conditions saturées et non saturées lors des essais cinétiques. Les résultats sont présentés en termes de volumes de pores pour faciliter la comparaison des résultats.

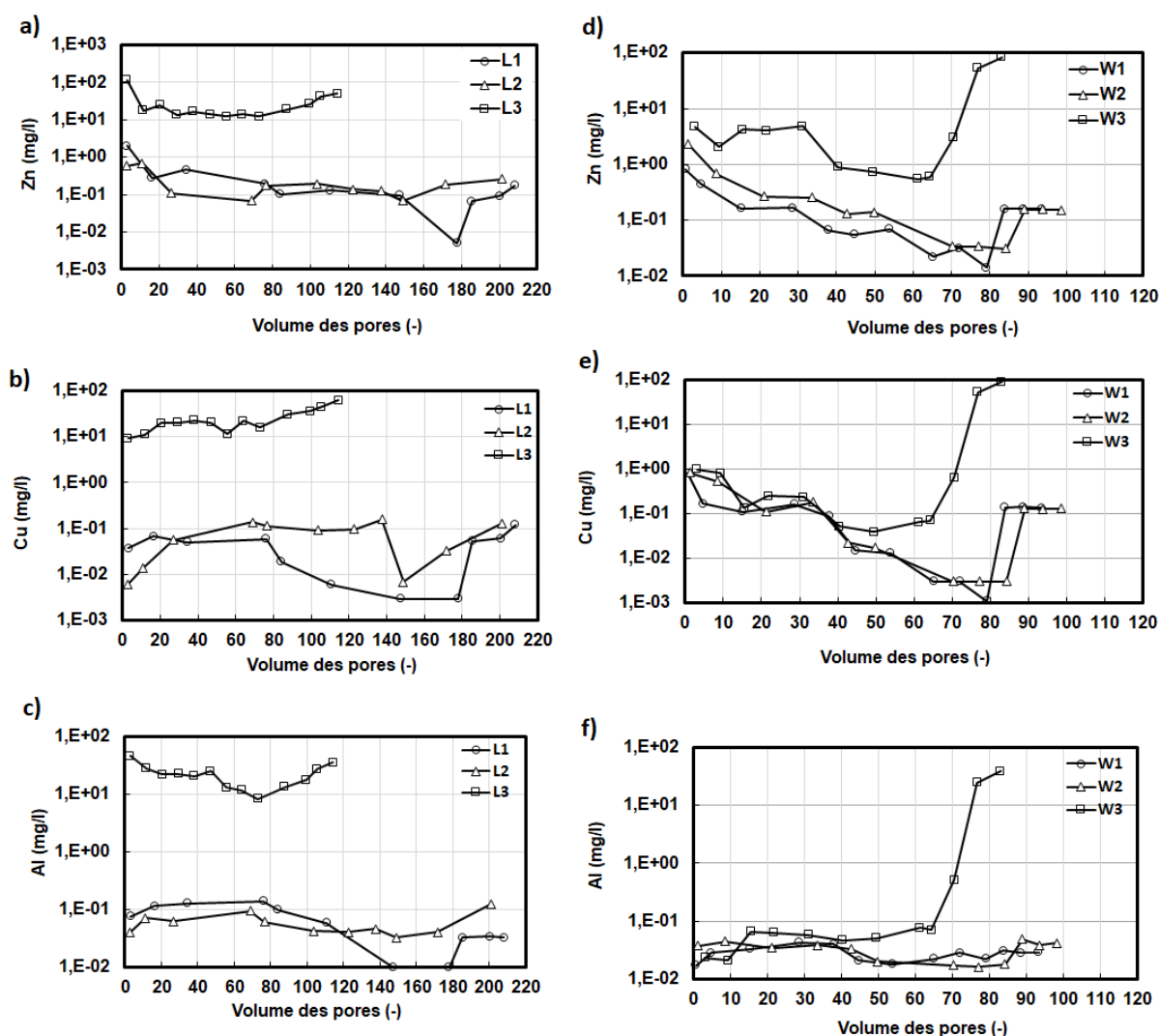


Figure 4.2 Évolution des concentrations de Zn, Cu et Al pour les résidus Laronde et Westwood en conditions saturées et non saturées lors des essais cinétiques.

Le pH initial dans les résidus de Laronde était autour de 5 et a diminué continuellement et progressivement pendant l'essai jusqu'à des valeurs de pH = 2 après 38 cycles de mouillage (160 volumes de pores ou 338 jours) (Figure 4.1 a). La concentration de sulfates a augmenté d'environ 600 mg/L à plus de 3000 mg/L à la fin du test (Figure 4.1 b). Les concentrations en cuivre, nickel et fer ont également augmenté et étaient généralement dix fois plus élevées à la fin de l'essai qu'au début (Figure 4.2). Par exemple, les concentrations de cuivre ont augmenté de 10 mg/L initialement à environ 100 mg/L (Figure 4.2 b). Les concentrations d'aluminium sont restées constantes autour de 20 mg/L pendant la durée de l'essai (Figure 4.2 c).

Le comportement des résidus de Westwood a été marqué par un effet tampon relativement important qui pourrait s'expliquer par la présence de carbonates et une teneur en sulfures plus faibles que les résidus Laronde. Le pH est resté autour de 7 pendant les 20 premiers cycles de mouillage (60 volumes de pores ; Figure 4.1 d) et les concentrations de sulfates (Figure 4.1 e) et de métaux (Figure 4.2) sont restées relativement faibles. Ainsi, les concentrations de sulfate étaient d'environ 500 mg/L et la concentration de cuivre d'environ 0,1 mg/L pour les 20 premiers cycles de mouillage et de séchage (70 volumes de pores). Après 20 cycles, le pH a commencé à chuter rapidement (en moins de 5 cycles) à des valeurs autour de pH = 2 (Figure 4.1 d). Les concentrations de sulfates ont également rapidement augmenté à environ 1000 mg/L (Figure 4.1 e), tandis que les concentrations de zinc, de cuivre, de fer et d'aluminium ont toutes augmenté d'un facteur de 100 à 1000 (Figures 4.2 d, e, f).

Comme attendu, le comportement géochimique des résidus Laronde dans des conditions saturées était significativement différent par rapport à son comportement géochimique dans des conditions non saturées. Le maintien d'un degré de saturation élevé a permis de réduire significativement le flux d'oxygène (section 2.5.1). La qualité de l'eau dans les cellules L1 et L2 est restée relativement constante pendant l'essai (Figures 4.1 et 4.2), avec quelques variations en fonction de la concentration d'oxygène dans l'eau d'entrée (voir la section suivante). Ainsi, le pH est demeuré relativement constant et autour de 8 pendant l'essai (Figure 4.1 a), c'est-à-dire plus élevé que dans l'eau d'entrée (pH = 6 ; Section 3.3, Tableau 3.8). Les concentrations de sulfate étaient d'environ 100 mg/L (Figure 4.1 b) contre 7 mg/L dans l'eau d'entrée, ce qui indiquait une certaine oxydation des sulfures. Les concentrations de métaux (par exemple : Zn, Cu, Al) sont inférieures 1 mg/L (Figures 4.2 a, b, c). Les concentrations de fer dans les essais en conditions saturées sont restées faibles, ne dépassant pas 2 mg/L. Ces faibles concentrations en fer s'expliquent par le pH relativement élevé et la précipitation probable du fer sous forme d'oxyhydroxydes (Blowes et al., 2014; Lindsay et al., 2015).

Le comportement des résidus Westwood était similaire au comportement des résidus Laronde. Le pH dans les cellules W1 et W2 est également resté relativement constant pendant les essais, d'abord autour de pH = 9 de 0 à 25 volumes des pores, puis autour de pH = 7 pour le reste du test (Figure 4.1 d). Les concentrations de sulfate ont rapidement diminué après le début des essais et sont ensuite restées inférieures à 100 mg/L (Figure 4.1 e). Le pH des résidus de Westwood est autour

de 8, et les concentrations de fer sont donc restées faibles, sans différence entre les conditions saturées et non saturées.

L'ensemble des résultats des essais cinétiques en milieu non saturés ont montré que les résidus Laronde et Westwood étaient générateurs de DMA. En effet la réactivité des résidus et le potentiel d'acidification des résidus Laronde et Westwood ont été confirmés par des essais non saturés, où le lixiviat a été caractérisé par un pH bas et des concentrations élevées de sulfate et de métaux. Par contre leur maintien sous l'eau (tests cinétiques en milieu saturé) permet de diminuer significativement leur réactivité et la génération d'acide et de sulfates. Dans les essais en milieu saturé, la qualité de l'eau a été significativement améliorée.

La qualité de l'eau interstitielle a rapidement changé au début des essais, tant pour les résidus Laronde que Westwood, et autant pour les conditions saturées que non saturées. Les concentrations de sulfates et de métaux ont généralement diminué, parfois de plus d'un ordre de grandeur. Par exemple, les concentrations de sulfates dans les résidus Laronde sont passées de 1200 mg/L dans l'eau interstitielle initiale à moins de 100 mg/L après environ 15 fois le volume de pores (Figure 4.1 b). Ces changements rapides sont typiques des essais cinétiques (Chopard., 2017 ; Elghali et al., 2019a) et indiquent que, malgré toutes les précautions d'usage (échantillonnage au concentrateur, maintien des résidus sous l'eau en permanence dans des contenants hermétiquement fermés), l'oxydation a probablement commencé avant le début des essais. Cependant, l'eau interstitielle initiale était généralement lessivée relativement rapidement (< 10 volumes de pores ou 6 L) et la qualité du lixiviat pouvait ensuite être jugée plus représentative des réactions se produisant dans les cellules durant les essais. Par la suite, les premiers résultats (< 10 volumes de pores ou 6 L) seront donc négligés dans l'interprétation.

Les essais cinétiques en conditions saturées avec les résidus Laronde et Westwood ont été réalisés en duplicatas (Figures 4.1 et 4.2 ; voir aussi section 3.3). Les résultats pour les deux cellules étaient généralement très proches et la différence observée ne dépassait pas la précision typique des mesures. La seule exception concernait les concentrations de cuivre pour les résidus Laronde où la différence dépassait parfois un ordre de grandeur (par exemple dans le premier lixiviat de L1 la teneur de Cu = 0.037 mg/L contre une teneur de Cu = 0.006 mg/L pour la cellule L2). Cependant, ces concentrations étaient très faibles et proches de la limite de détection. Pour cette raison, seuls les résultats des cellules **L1**, **W1** et **S1** seront présentés dans ce qui suit.

4.2 Effet de la concentration d'oxygène dissous sur le comportement géochimique des résidus réactifs

La concentration en oxygène de l'eau d'entrée a été modifiée lors des essais en conditions saturées : initialement de $95\% \pm 5\%$ (8,3 mg/L), elle a été réduite à $50\% \pm 5\%$ puis à 0% avant finalement d'être augmentée à nouveau jusqu'à $95\% \pm 5\%$. Le maintien de la concentration en oxygène a nécessité des ajustements réguliers (section 3.3.1) ce qui explique les faibles variations observées (Figure 4.3). Cependant, les concentrations d'oxygène sont toujours restées proches ($\pm 5\%$) de la concentration cible.

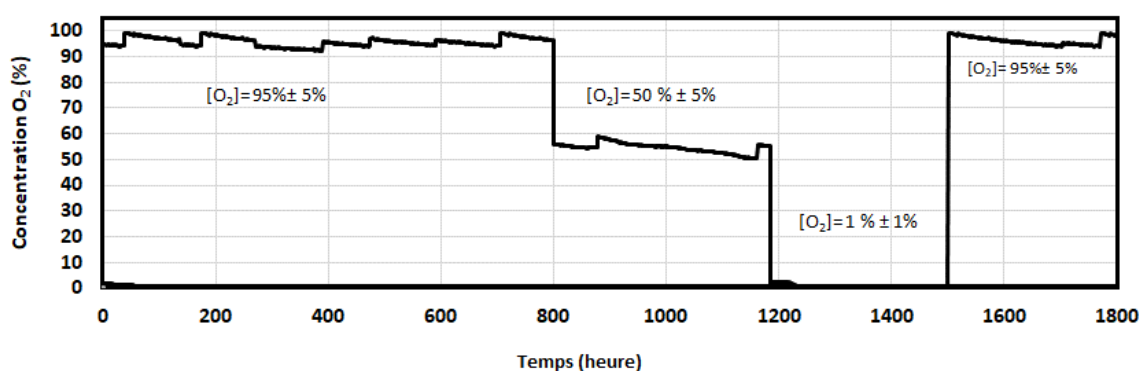


Figure 4.3 Évolution de la concentration en oxygène dissous dans l'eau d'entrée pour l'essai cinétique L1 (résidu Laronde) en conditions saturées. Les résultats des autres tests dans des conditions saturées ont montré des tendances similaires.

L'oxygène a été rapidement consommé dans les résidus et les concentrations d'oxygène mesurées dans toutes les cellules à une élévation de 2 cm, 4 cm et 6 cm (au-dessus de la base de l'échantillon) étaient constantes et égales à 0% durant toute la durée des essais (voir par exemple les résultats pour la cellule Laronde L1 à la Figure 4.3). En d'autres termes, l'oxygène dissous présent dans l'eau d'entrée a été entièrement consommé dans les 2 premiers cm des échantillons, indépendamment des résidus testés. Ces observations ont confirmé que les matériaux avaient une réactivité relativement élevée même si la teneur en sulfure variait significativement entre les échantillons.

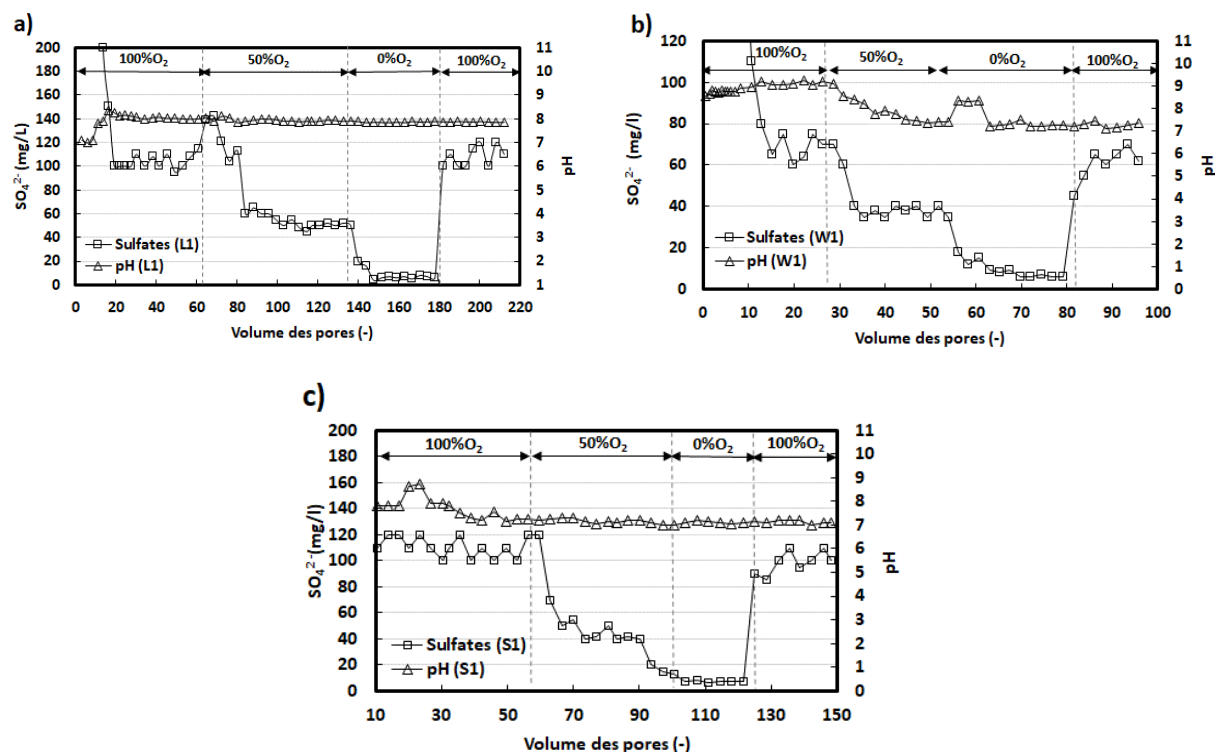


Figure 4.4 Évolution des concentrations de sulfates et du pH en fonction du temps et de la concentration en oxygène dissous dans a) les résidus Laronde b) les résidus Westwood c) les résidus synthétiques. Les résultats sont présentés à partir du volume de pore 10 pour se concentrer sur les résultats représentatifs des réactions se produisant dans les cellules, et non affectés par la qualité initiale de l'eau interstitielle (voir texte pour détails).

Les concentrations de sulfates mesurées dans les lixiviats étaient fortement corrélées à la concentration en oxygène dissous de l'eau d'entrée. Par exemple, pour les résidus de Laronde (L1 ; 18,2% de sulfures), la concentration en sulfate était d'environ 120 mg/L pour une concentration en oxygène de 95%, d'environ 50 mg/L pour une concentration en oxygène de 50% et d'environ 5 mg/L (correspondait à la concentration en sulfate dans l'eau d'entrée) pour une concentration en oxygène inférieure à 1% (Figure 4.4 a). Un comportement similaire a été observé pour les résidus Westwood et synthétiques (Figures 4.4 b, c). Par exemple, pour les résidus de Westwood (W1 ; 5,0% en sulfures), les concentrations en sulfates étaient relativement constante autour de 70 mg/L pour une concentration en oxygène de 95%, elles étaient autour de 35 mg/L pour une concentration en oxygène de 50%, et, autour de 6 mg/L pour une concentration en oxygène inférieure à 1%

(Figure 4.4 b). Les concentrations de sulfate mesurées pour les résidus synthétiques (S1 ; 71,7% en sulfures) étaient similaires à celles mesurées pour les résidus Laronde (Figure 4.4 c). La concentration en sulfates dans le lixiviat était donc fonction de la concentration en oxygène, mais pas directement de la teneur en sulfure. La composition minéralogique semblait avoir un effet sur la production de sulfate, mais n'était pas linéairement corrélée à la concentration de sulfate dans le lixiviat. Par exemple, les concentrations de sulfate pour 100% d'oxygène pour L1 et S1 étaient toutes deux d'environ 120 mg/L, tandis que leur teneur en pyrite était de 18,2% et de 77,1%, respectivement.

4.3 Résultats expérimentaux versus calcul stœchiométrique : prédiction vs mesure

La masse cumulée de sulfates mesurée dans le lixiviat a été tracée en fonction de la masse cumulée d'oxygène dissous injecté pour les trois résidus testés $\text{SO}_4^{2-} = f n(\text{O}_2)$. Les concentrations ponctuelles des sulfates et d'oxygène ont été corrigées en les multipliant par le volume récupéré de chaque jour. Par conséquent, les quantités d'oxygène injectées et les quantités des sulfates libérées ont été obtenues (Figure 4.5). Les premiers lixiviats ont été affectés par la pré-oxydation lors de l'échantillonnage et de la préparation des tests cinétiques (voir les résultats ci-dessus) et n'ont pas été pris en compte ici.

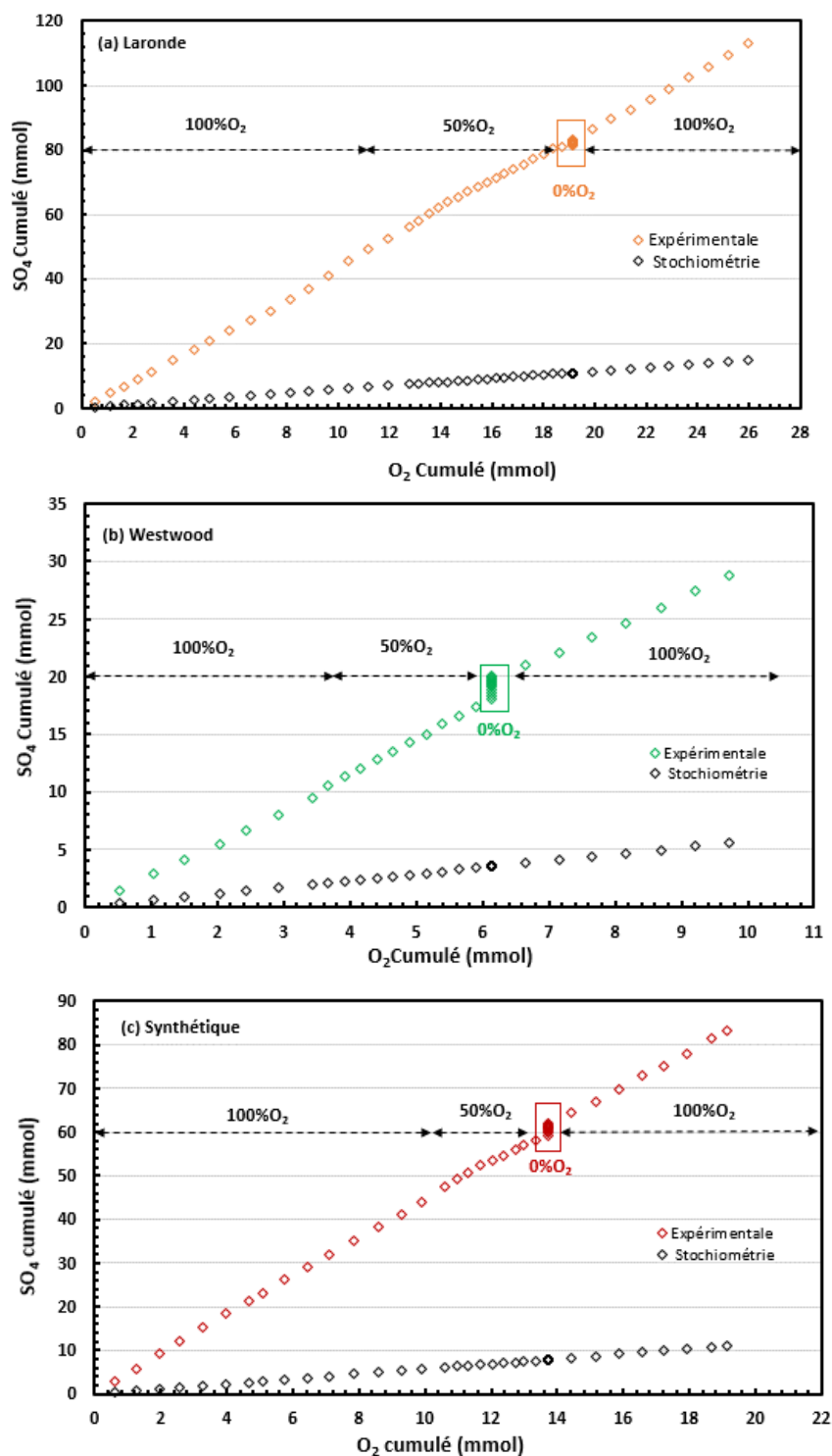


Figure 4.5 Évolution de la masse cumulée de sulfates mesurée dans le lixiviat en fonction de la masse cumulée d'oxygène dissous injecté pour les résidus a) Laronde b) Westwood et c) synthétiques.

Dans les essais de laboratoire, les sulfates libérés pour les trois résidus étaient largement supérieurs à la stœchiométrie de la réaction d'oxydation directe de la pyrite (équation 2.1). Par exemple, pour les résidus de Laronde dans la cellule L1, l'oxygène dissous total injecté lors de l'essai était de 29,2 mmol. Selon l'équation d'oxydation directe (1), le rapport du SO_4 généré sur l' O_2 consommé devrait être de 4/7 soit 0,57, alors qu'il est de 4,17 pour les résidus de Laronde (7,3 fois plus), 2,8 pour le résidu Westwood (4,9 fois plus) et 3,6 pour les résidus synthétiques (6,3 fois plus).

La différence entre les sulfates produits et les calculs stœchiométriques dépendaient de la minéralogie (teneur en pyrite) et de la quantité d'oxygène injecté dans le système. Plus la concentration en oxygène dissous dans l'eau entrante est élevée, plus le taux d'oxydation est élevé et les résidus peuvent être ordonnés, en terme de réactivité de la plus élevée à la plus faible, comme : Synthétique > Laronde > Westwood.

La quantité de sulfates en excès pourrait être causée par divers phénomènes possibles autres que l'oxydation directe. Le contrôle de la réactivité des résidus miniers nécessite l'utilisation d'une approche à l'échelle micro et macro (Carlito Baltzar et al., 2017). En effet, les phénomènes macroscopiques sont dépendants d'interactions aux échelles moléculaire et atomique (microenvironnement). En particulier, les propriétés à micro-échelle à l'interface particule-eau et les phénomènes qui leur sont associés (Sorrenti., 2007). Cinq raisons potentielles ont été considérées et analysées sur la base des résultats expérimentaux : **(1)** oxydation indirecte des sulfures par Fe^{3+} ; **(2)** contributions microbiennes à la libération de sulfate; **(3)** réactions galvaniques entre sulfures ; **(4)** dissolution non oxydante des sulfures ; et **(5)** des microbulles d'air fournissant plus d' O_2 dissous.

L'oxydation indirecte de la pyrite par Fe^{3+} (éq. 7) se produit généralement à $\text{pH} < 3,5$, mais la réaction a aussi été observée lorsque le pH était proche de la neutralité (Nicholson et Gilham., 1988 ; Brown et Jurinak., 1989 ; Evangelou et Zhang., 1995 ; Moses et al., 1991 ; Caldeira et al., 2003). L'oxydation indirecte pourrait donc générer davantage de sulfates que par la seule oxydation directe des sulfures. Cependant, l'oxydation indirecte nécessite des ions Fe^{3+} qui sont eux même produits par l'oxydation des ions Fe^{2+} selon une stœchiométrie similaire à celle de l'oxydation indirecte. En d'autres termes, une fois les ions Fe^{3+} potentiellement présents initialement dans le milieu lessivés ou consommés (i.e., après 20 volumes des pores au maximum), l'oxydation indirecte ne peut expliquer la différence entre oxygène et sulfates.

Les processus microbiologiques influencent significativement le cycle du Fe et du S dans les résidus miniers et pourraient également avoir joué un rôle dans l'excès de SO_4 observé. En effet, il est connu que de nombreuses bactéries participent à la géochimie des sulfures, comme par exemple en catalysant l'oxydation de Fe^{2+} en Fe^{3+} dans le milieu par mécanisme indirect (Rohwerder et al., 2003 ; Lindsay et al., 2015), ou par mécanisme d'oxydation directe (Mahmoud et al., 2017). La production de substances polymériques extracellulaires (EPS : « extracellular polymeric substances ») joue un rôle déterminant pour la cinétique de biooxydation des sulfures (Sand et Gehrke, 2006 ; Silver., 2020) : ces substances permettent aux cellules de se fixer à la surface du minerai et concentrent les ions Fe^{3+} près de la surface, pour faciliter l'oxydation de la pyrite (Schippers et Sand, 1999; Rohwerder et al., 2007; Borilova et al., 2018; Silver., 2020). Cependant, le rôle des bactéries est uniquement de catalyser les réactions d'oxydation, et celles-ci ne devrait pas avoir un rôle significatif sur la stœchiométrie des réactions et c'est peu probable qu'elles soient responsables d'une partie de l'excès de SO_4 généré.

Les réactions galvaniques peuvent entraîner (et accélérer) l'oxydation d'un sulfure par un autre sans nécessiter ni oxygène ni Fe^{3+} (Kwong 1993, Evangelou 1995, Perkins et al., 1995, Chopard et al., 2017). La présence de plusieurs sulfures dans les deux résidus étudiés (Westwood et Laronde) rend théoriquement possibles la participation de réactions galvaniques à la génération de DMA. Une façon d'évaluer la contribution des réactions galvaniques est de supposer que le sulfate produit à 0 % d' O_2 dissous peut être attribué aux phénomènes galvaniques. Étant donné que le sulfate généré à 0 % d' O_2 dissous était presque négligeable, on peut émettre l'hypothèse que les réactions galvaniques jouent un rôle insignifiant dans l'excès de SO_4 généré à partir de ces expériences. L'excès de sulfates est aussi observé pour les résidus synthétiques où on est à peu près certain qu'il n'y a pas de réactions galvaniques.

En plus de ces phénomènes, on peut également considérer la solubilité de certains sulfures, notamment la sphalérite et la pyrrhotite, qui peuvent générer des sulfures dissous (Belzile et al., 2004 ; Blowes et al., 2014). Cependant, l'odeur caractéristique du sulfure dissous n'a pas été notée lors des tests. Cela signifie que soit ce phénomène ne s'est pas produit de manière significative dans les expériences, soit le sulfure dissous a été complètement oxydé (par des microorganismes sulfoxydantes) avant la sortie du lixiviat. Il est donc impossible de conclure quant à la contribution de ce phénomène à l'excès de SO_4 généré.

Il est possible que des microbulles d'air ont été introduites avec l'eau de lixiviation. L'oxygène contenu dans ces microbulles pourrait se dissoudre dans l'eau interstitielle concomitamment à la consommation d'oxygène, contribuant à l'oxydation supplémentaire des sulfures et à l'excès apparent de SO_4 . Cependant, il est impossible de quantifier la contribution de cette hypothèse car les microbulles n'ont pas été quantifiées.

Par conséquent, nous pouvons conclure que si la contribution des interactions galvaniques, l'oxydation indirecte par Fe^{3+} et l'oxydation des sulfures par voie microbienne à l'excès de SO_4 généré semble marginale, la dissolution non oxydative des sulfures et les microbulles d'air dans les lixiviats pourraient toutes contribuer à l'excès SO_4 généré par rapport à la consommation d' O_2 dissous. Cela démontre que l'estimation de l'oxydation des sulfures basée uniquement sur la consommation d' O_2 peut conduire à une sous-estimation significative dans des contextes similaires.

4.4 Caractérisation des résidus après démontage des colonnes

Des précipités jaunes orangés sous forme de taches isolées ont été observés au fond des cellules L1, L2, W1 et W2 lors du démontage. Le pH de la pâte après démantèlement était d'environ 7,3 pour les résidus Laronde et de 8,3 pour les résidus Westwood, ce qui correspondait au pH du lixiviat mesuré à la fin des essais (Figure 4.4). Aucune différence de pH n'a été observée entre le bas et le haut des échantillons. Les indices de vides et les distributions granulométriques ont également été mesurés au démontage et n'ont pas varié entre le début et la fin des essais.



Figure 4.6 Fond de la cellule de l'essai cinétique L1 du résidu Laronde en milieu saturé. A droite la tranche du fond de la cellule après séchage à l'air libre. A gauche les précipités jaunes orangés au fond de la cellule L1 à l'état humide.

Les analyses minéralogiques par MEB réalisées sur les résidus Laronde après démantèlement sont présentées dans la (figure 4.7). L'identification des phases nécessite une analyse par DRX qui n'a pas été réalisée pour les échantillons post démantèlement. Les spectres EDS fournissent seulement les données chimiques et la composition correspond à un volume d'interaction qui peut être constitué d'un mélange de plusieurs phases surtout lors de l'analyse de matériaux fins.

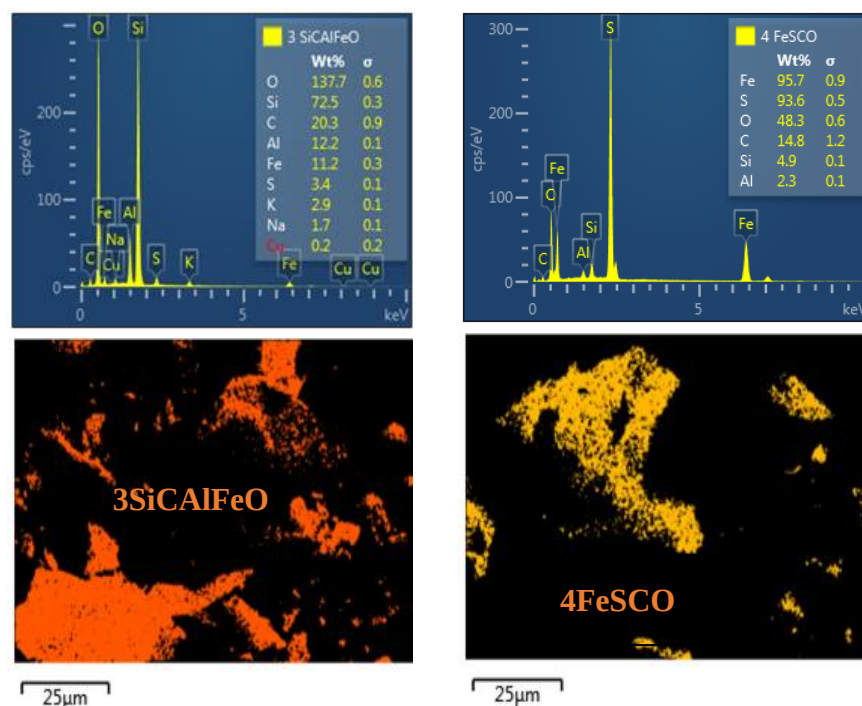


Figure 4.7 L'analyse au microscope électronique à balayage (MEB) de la tranche du fond de la cellule de l'essai cinétique L1 du résidu Laronde en milieu saturé.

Lors du démantèlement des cellules, les spécimens ont été divisés en trois sections de 5 cm d'épaisseur : $z = 0-5$ cm (bas de la cellule), $z = 5-10$ cm (milieu de la cellule) et $z = 10-15$ cm (haut de la cellule). Les teneurs en soufre et en carbone ont été mesurées par analyse à la fournaise LECO pour chaque section et comparées aux mesures initiales (Tableau 4.1).

Tableau 4.1 Teneurs en carbone et soufre en haut, au milieu et en bas des cellules, avant et après les essais cinétiques pour les résidus Laronde et Westwood en conditions saturées.

		Avant les tests cinétiques		Après les tests cinétiques	
		%C	%S	%C	%S
L1	Haut			< 0,01	15,0
	Milieu	0,06 ($\pm 0,01$)	15,5 ($\pm 0,4$)	< 0,01	13,6
	Bas			< 0,01	13,5
L2	Haut			< 0,01	15,0
	Milieu	0,06 ($\pm 0,01$)	15,5 ($\pm 0,4$)	< 0,01	14,0
	Bas			< 0,01	13,3
W1	Haut			0,42	3,52
	Milieu	0,41 ($\pm 0,01$)	3,8 ($\pm 0,1$)	0,41	3,50
	Bas			0,41	3,52
W2	Haut			0,41	3,67
	Milieu	0,41 ($\pm 0,01$)	3,8 ($\pm 0,1$)	0,42	3,54
	Bas			0,41	3,50

Les teneurs en soufre et en carbone ont légèrement diminué dans le bas des colonnes ($z = 0-5$ cm) lors des essais cinétiques. Par exemple, pour les résidus Laronde, la teneur en soufre dans le bas de la cellule L2 était de 13,3% à la fin de l'essai, contre 15,5% au début de l'essai. Pour les résidus Westwood, la teneur en soufre dans le bas de la cellule W2 était de l'ordre de 3,5% à la fin de l'essai contre 3,8% au début du test.

La concentration en soufre dans le haut de la cellule était généralement plus proche (mais systématiquement inférieure) des valeurs initiales. Par exemple, pour la cellule L1 la teneur du soufre avant le test cinétique était de l'ordre de 15,5%, après le démontage de la cellule la teneur du soufre analysée en haut de la cellule était de l'ordre de 15%. Des résultats similaires ont été observés pour les résidus Westwood dans la cellule W2. Par exemple la teneur du soufre avant le test cinétique était de l'ordre de 3,8% ($\pm 0,1$), après le démontage les valeurs du soufre étaient de l'ordre 3,67%, 3,54%, et 3,50% respectivement en haut, au milieu et en bas de la cellule. Par contre, les teneurs en soufre ne montraient pas de tendance particulière avec la hauteur dans la cellule W1.

En effet, la concentration d'oxygène mesurée était de 0 % à 2 cm au-dessus du fond de la cellule (Figure 4.4). Ceci démontre que la totalité de l'oxygène injecté dans la cellule a été consommé

dans cette tranche $z = 0-5$ cm (bas de la cellule) ce qui a provoqué l'oxydation de la pyrite et par conséquent la diminution de la teneur du soufre. Dans les deux autres tranches $z = 5-10$ cm (milieu de la cellule) et $z = 10-15$ cm (haut de la cellule), il ne devrait donc théoriquement pas y avoir d'oxydation significative dans la partie médiane et le haut de l'échantillon suite à l'épuisement d'oxygène dissous (Tableau 4.1).

Les teneurs en carbone ont diminué dans les cellules L1 et L2. Par exemple pour la cellule L1 le pourcentage du carbone avant le test cinétique était de l'ordre de 0,06%. Après le démontage de la cellule la teneur du carbone analysée en haut, au milieu et en bas de la cellule était de l'ordre de $< 0,01\%$. On note un épuisement du carbone dans les deux cellules L1 et L2. En effet, la caractérisation DRX n'a pas permis de détecter les carbonates (possiblement inférieur à la limite de détection), dans ces deux échantillons mais le MEB-Zeiss a détecté des carbonates sous forme de calcite (0,3%).

Pour les tests W1 et W2, la teneur du carbone est beaucoup plus importante et ceci peut être expliqué par la présence des carbonates qui sont confirmés par l'analyse DRX et MEB (Tableau 3.4 ; Section 3.2.3). Après le démontage, la teneur du carbone analysée en haut, au milieu et en bas des deux cellules était de l'ordre de 0,41, identique aux mesures initiales dans les cellules W1 et W2 (Tableau 4.1). Cela peut s'expliquer d'une part par la précision de la méthode d'analyse (série CS744 de LECO), c'est-à-dire que les différences observées ici se situent dans la plage d'incertitude habituelle. Et d'autre part par le degré de libération de la calcite (figure 4.8). Le degré d'accèsibilité de la calcite pour l'échantillon Westwood est limité. En effet, le pourcentage des particules de la calcite verrouillées est de 36,2%.

4.5 Distribution granulométrique et degré d'accessibilité de la pyrite

Diverses fractions granulométriques des résidus Laronde et Westwood ont été analysées pour leur teneur en S et C. La teneur de la pyrite a été estimée dans chaque tranche granulométrique en se basant sur (l'équation 4.1), développé par (Toussaint, 2016). Ce calcul basé sur cette équation a été appliqué aux résultats des études antérieures menées par Monzon (1998), Martin (2005), Gosselin (2007), Ouangrawa (2007), Pabst (2011) et Toussaint, (2016).

Le calcul de la teneur en pyrite a été réalisé en considérant que les grains de pyrite avaient une densité $D_r = 5$ et tous les autres grains une densité $D_r = 2,7$ (la plupart des grains de sol naturel).

La teneur en pyrite équivalente estimée C_p pouvait ainsi être calculée comme suite (Divet et Davy, 1996 ; Toussaint, 2016):

$$C_p = \frac{(D_r - 2.7)}{(5 - 2.7)} \quad (4.1)$$

Pour évaluer l'évolution des propriétés géochimiques, notamment minéralogiques dans un résidu, suite à l'oxydation de la pyrite. L'estimation de la teneur en pyrite C_p et la densité relative des grains D_r pouvaient être considérés comme de bons indicateurs. Ces résultats ont été comparés aux teneurs en pyrite estimée à partir de leur densité spécifique déterminée au moyen de pycnomètres à eau (section 3.2.1). Les teneurs en pyrite évaluées à l'aide de la teneur en S ou de la densité spécifique ont suivi les mêmes tendances pour les différentes fractions (Tableau 4.2). Les teneurs estimées en pyrite à partir de la densité relative des grains étaient systématiquement supérieures à celles des mesures DRX (Tableau 3.4).

Tableau 4.2 Teneurs en soufre et en carbone (%S et %C respectivement), densité spécifique (G_s) et teneur en pyrite (C_p) pour les différentes fractions granulométriques des résidus Laronde et Westwood. $C_{p,1}$: La teneur en pyrite estimée à partir de la teneur en soufre $C_{p,2}$: La teneur en pyrite estimée à partir de la densité spécifique de chaque fraction à l'aide de l'équation 8.

	Fractions granulométriques	Fraction massique	Carbone	Soufre	$C_{p,1}$	D_r	$C_{p,2}$
Laronde	$\leq 630 \mu\text{m}$	1%	0,6%	2,74%	5,1%	2,76	2,6%
	$\leq 315 \mu\text{m}$	3%	0,01%	7,75%	15%	2,92	9,6%
	$\leq 160 \mu\text{m}$	12%	0,01%	14,4%	27%	2,96	11%
	$\leq 80 \mu\text{m}$	84%	0,01%	18,8%	35%	3,32	27%
	Total⁽¹⁾	100%	0,02%	17,8%	33%	3,26	24%
Westwood	$\leq 630 \mu\text{m}$	0,5%	0,6%	2,0%	3,7%	2,72	0,87%
	$\leq 315 \mu\text{m}$	0,5%	0,4%	2,0%	3,7%	2,75	2,2%
	$\leq 160 \mu\text{m}$	9%	0,4%	2,9%	5,4%	2,79	3,9%
	$\leq 80 \mu\text{m}$	90%	0,5%	4,4%	8,2%	2,88	7,8%
	Total⁽¹⁾	100%	0,5%	4,2%	8,0%	2,87	7,4%

⁽¹⁾ Moyenne pondérée calculée à partir des fractions massiques

Pour les résidus Laronde, la teneur de la pyrite estimée dans les tranches fines $\leq 80 \mu\text{m}$ qui représente 84% de la fraction massique est de l'ordre de 27%. Cette teneur de la pyrite diminue progressivement pour atteindre des valeurs de l'ordre de 11%, 9,6% et 2,6% respectivement pour les tranches granulométriques $\leq 160 \mu\text{m}$, $\leq 315 \mu\text{m}$ et $\leq 630 \mu\text{m}$. Dans les résidus de Laronde, les sulfures étaient principalement concentrés dans les particules fines ($\leq 80 \mu\text{m}$) tandis que les carbonates semblaient être concentrés dans les particules plus grossières ($\leq 630 \mu\text{m}$). Dans les résidus de Westwood, les sulfures étaient également plus concentrés dans les fractions plus fines, la teneur de la pyrite estimée dans les tranches fines $\leq 80 \mu\text{m}$ qui représente 90% de la fraction massique est de l'ordre de 7,8%. Cette teneur de la pyrite diminue progressivement pour atteindre des valeurs de l'ordre de 3,9%, 2,2% et 0,87% respectivement pour les tranches granulométriques $\leq 160 \mu\text{m}$, $\leq 315 \mu\text{m}$ et $\leq 630 \mu\text{m}$; mais les carbonates étaient relativement bien répartis dans l'échantillon avec une valeur moyenne reconstituée de 0,5%. La teneur la plus élevée du carbone est de l'ordre de 0,6%, elle est enregistrée dans la tranche grossière $\leq 630 \mu\text{m}$ qui représente 0,5% de la fraction massique totale. Cette teneur diminue progressivement pour atteindre des valeurs de l'ordre de 0,4%, 0,4% et 0,5% respectivement pour les tranches granulométriques $\leq 630 \mu\text{m}$, $\leq 315 \mu\text{m}$ et $\leq 160 \mu\text{m}$. Ces résultats ont montré que la pyrite est concentrée dans les fractions fines pour les deux résidus.

La taille des particules de pyrite joue aussi un rôle important dans le comportement géochimique des résidus et le degré de libération ou autrement le degré d'exposition de pyrite peut fortement affecter le potentiel de génération de DMA des résidus (Mafra et al., 2020). L'analyse automatisée quantitative des résidus Laronde, Westwood via le microscope électronique à balayage MEB-Zeiss (section 3.2.3) a permis de quantifier le degré d'exposition des phases minérales, qui est défini comme la proportion du minéral disponible aux réactions.

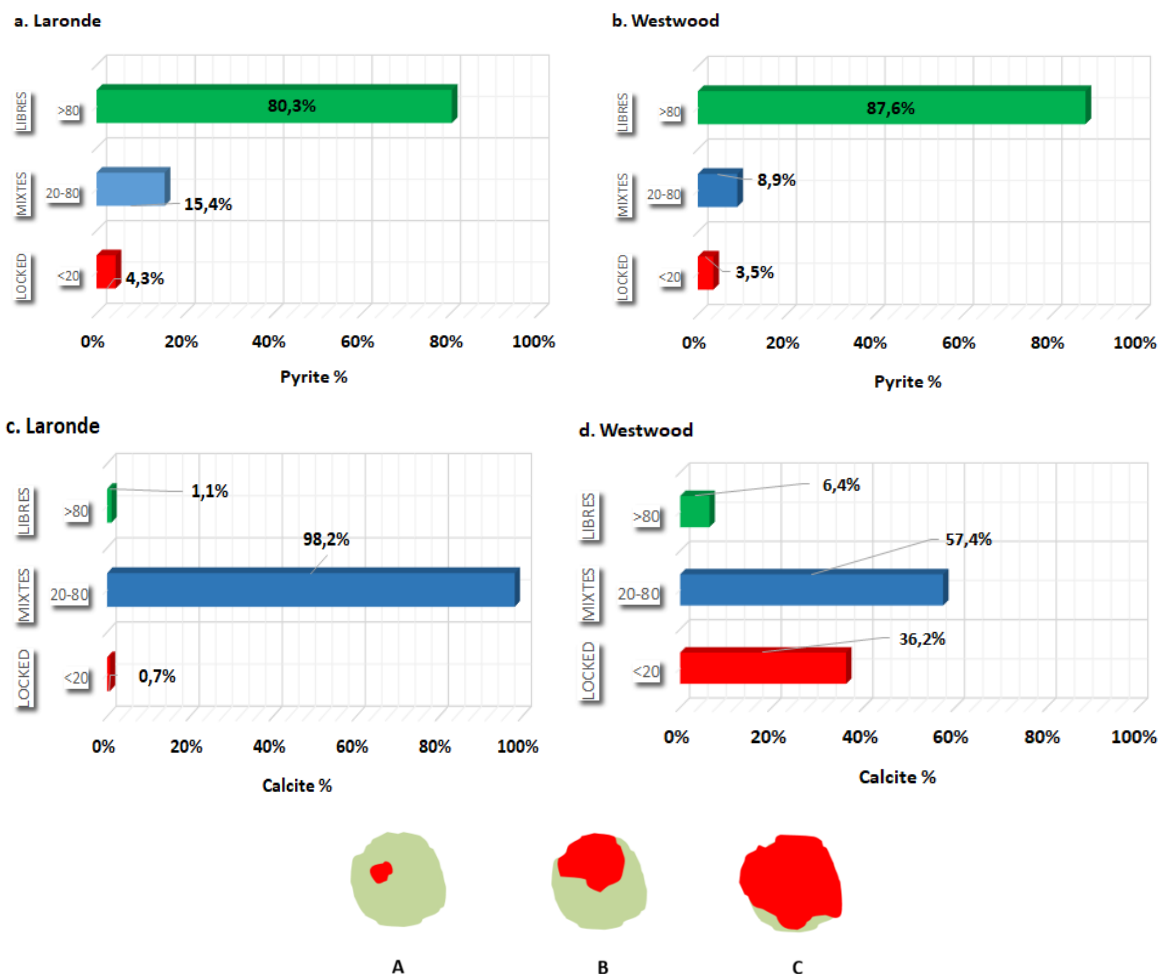


Figure 4.8 Particule de la pyrite illustrant les trois classes utilisées pour décrire la libération d'un minéral d'intérêt (rouge : pyrite) de la gangue associée (vert) : A = verrouillé (<20 % de surface de la particule), B = mixtes (20 – 80 surface % de la particule), C = libéré (>80 % de surface de la particule) (Pilly, 2015).

Pour le résidu Laronde le pourcentage des particules libéré de la pyrite (>80% de surface de la particule) est de 80,3%, pour la classe des particules mixtes (20-80% surface de la particule) il est de l'ordre de 15,4% et 4,3% pour la classe des particules verrouillées. La même tendance a été enregistrée pour le résidu Westwood. Le pourcentage des particules libéré de la pyrite (>80% de surface de la particule) est de 87,6%, pour la classe des particules mixtes (20-80% surface de la particule) il est de l'ordre de 8,9% et 3,5% pour la classe des particules verrouillées.

En parallèle, le degré d'exposition de la calcite a été quantifié pour les deux résidus (figure 4.8). Pour le résidu Laronde le pourcentage des particules libéré de la calcite (>80% de surface de la

particule) ne dépasse pas 1,1%, pour la classe des particules mixtes (20-80% surface de la particule) il est de l'ordre de 98,2% et 0,7% pour la classe des particules verrouillées (<20% de surface de la particule). La même tendance a été enregistrée pour le résidu Westwood. Le pourcentage des particules libéré de la calcite est beaucoup plus important, il est de l'ordre de 6,4%, pour la classe des particules mixtes, il est de l'ordre de 57,4% et 36,2% pour la classe des particules verrouillées.

Le degré d'accessibilité de notre minéral cible qui est la pyrite est important tant pour les résidus (Laronde : 80,3 %) que (Westwood : 87,6 %) (Figure 4.8). Cette accessibilité s'explique par le broyage avancé en amont lors du traitement du minerai pour la récupération des métaux précieux. Plus une fraction granulométrique est fine, plus sa réactivité est importante. Par ailleurs, la réactivité des rejets miniers est aussi liée à la réactivité des minéraux qui le constituent, pas seulement de la surface spécifique (Elghali, 2018). En effet dans le contexte des rejets miniers, les sulfures et les carbonates sont les principales phases minérales qui contrôlent la réactivité des rejets (Bouzahzah et al., 2015a).

Par ailleurs, plusieurs études ont montré que la composition minéralogique, la granulométrie et le degré d'exposition des sulfures régissent le comportement géochimique des résidus en termes de génération de DMA. Dans cette étude, la pyrite est le sulfure le plus abondant dans les deux échantillons analysés (Laronde et Westwood) est aussi le plus accécible.

4.6 Implications pratiques pour le contrôle de la génération de DMA dans les fosses remblayées

Les essais cinétiques en milieu non saturés ont montré que les résidus Laronde et Westwood étaient générateurs de DMA soit immédiatement soit après un certain délai le temps que les carbonates soient libérés, dissous et épuisés. En effet la réactivité des résidus et le potentiel d'acidification des résidus Laronde et Westwood ont été confirmés par des essais non saturés, où le lixiviat a été caractérisé par un pH bas et des concentrations élevées en sulfates et métaux. Par contre leur maintien avec un degré de saturation élevé (tests cinétiques en milieu saturé) permet de diminuer significativement leur réactivité et la génération d'acide et de sulfates, comme déjà montré dans la (section 4.3.2). Dans les essais en milieu saturé, la qualité de l'eau a été significativement améliorée, par exemple, les quantités de sulfates rejetées étaient très limitées par rapport aux conditions non saturées pour les trois résidus. Le pH est resté généralement constant et proche de la neutralité lors

des tests pour les trois matériaux. Le pH est demeuré autour de 8 pour les résidus de Laronde (Figure 4.4 a) et de 8,5 pour les résidus de Westwood (Figure 4.4 b). Ces résultats tendent à confirmer que le maintien des résidus à un degré de saturation élevé peut contribuer à contrôler la génération de DMA (MEND, 2001b ; Awoh, 2012 ; Ethier, 2018 ; Demers, 2008).

Au cours des dernières années, plusieurs exemples de projets de déposition des rejets miniers dans les fosses ont montré un intérêt certain pour la méthode (Kumar et al., 2010; MEND, 2015). Notamment, Le remblayage des fosses à ciel ouvert pourrait constituer une alternative intéressante pour les exploitations minières. Mais le remblayage des rejets minier doit être conçu et réaliser dans des conditions bien particulières afin de limiter la génération du DMA. Notamment un meilleur contrôle des échanges avec l'atmosphère et le milieu environnant s'impose.

Pour les échanges avec l'atmosphère, il existe plusieurs types de recouvrements (voir section 2.4.1), qui peuvent être adaptés aux conditions du site, notamment en ce qui a trait au climat, à la topographie, aux matériaux disponibles, et aux propriétés des rejets réactifs.

Cependant dans la présente étude, il a été démontré que l'oxygène dissous est très rapidement consommé (en moins de 2 cm pour un gradient hydraulique de 2 durant les tests cinétiques en milieu saturé) malgré l'enneigement des rejets et le maintien d'un degré de saturation élevé. Donc l'oxygène dissous dans l'eau souterraine pourrait ainsi constituer une source d'oxygène significative (risque potentiel de génération DMA), surtout si les flux hydrogéologiques sont importants.

En effet, l'extrapolation de ces données expérimentales à plus grande échelle en appliquant des gradients hydrauliques réels de fosses ($i=0,001$ à $i=1$), montre que les concentrations de métaux relâchés en milieu non saturé sont bien supérieures aux résidus qui seront déposés dans des fosses en milieu saturé. Plus le débit hydrogéologique qui traverse la fosse est important, plus la quantité de cuivre et de zinc rejetée est importante (Figure 4.9 a.b).

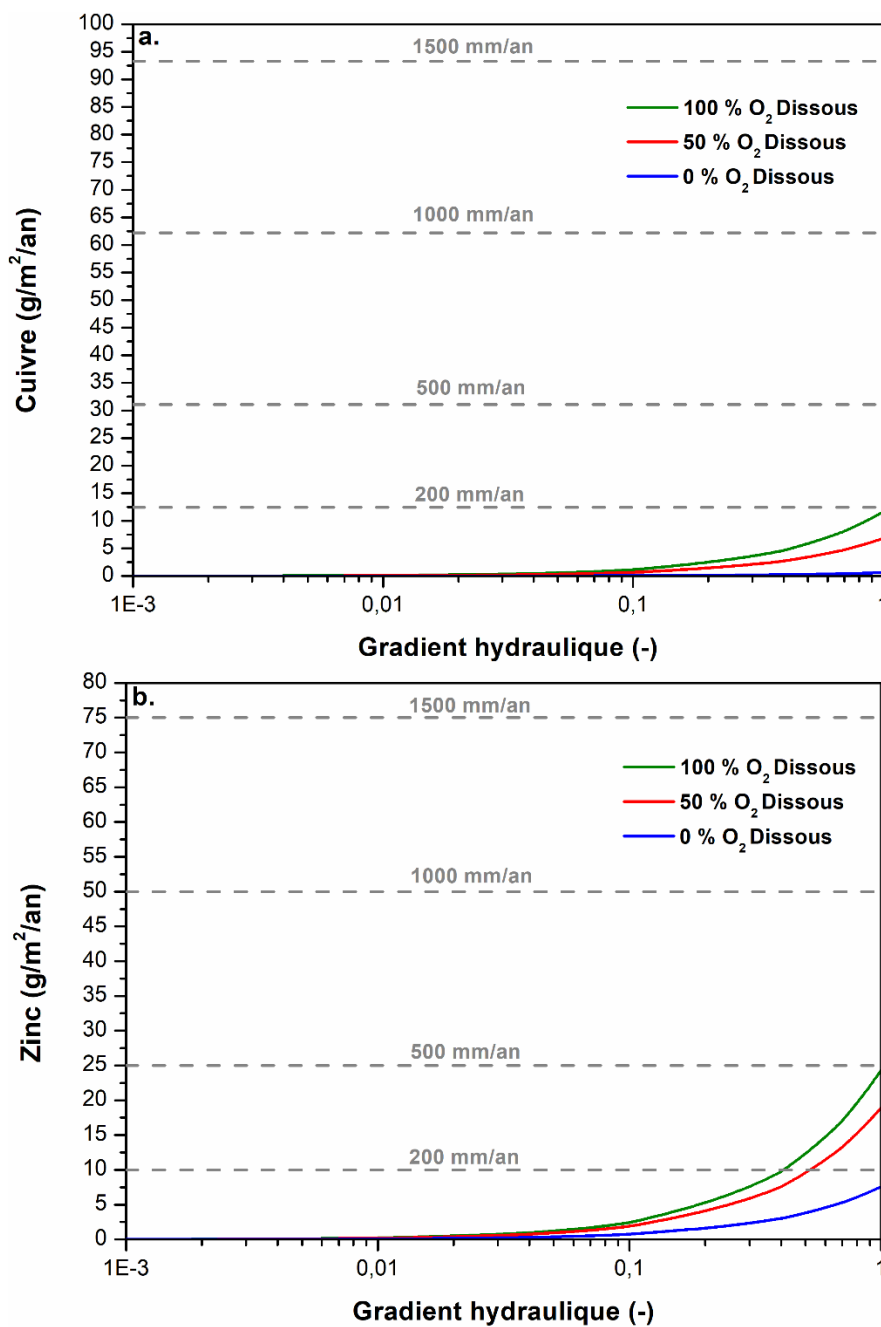


Figure 4.9 Extrapolation à plus grande échelle et comparaison de la quantité de métal libérée par g/m²/an lorsque les résidus sont remblayés dans une fosse à ciel ouvert ou déposés dans des parcs à résidus pour a) la concentration en cuivre b) la concentration en zinc.

Par exemple, dans une fosse avec un gradient hydraulique de 1, la quantité de zinc rejetée sera de 24,36 g/m²/an lorsque la concentration d'oxygène dissous dans la nappe phréatique est de 100%, 18,93 g/m²/an pour une concentration en oxygène dissous de 50% et seulement 7,57g/m²/an pour une concentration en oxygène dissous de 0% ($\pm$ 5%). Pour un gradient hydraulique de 0,001, la quantité de zinc relâchée est beaucoup plus faible, elle sera de 0,024g/m²/an lorsque la concentration en oxygène dissous est de 100%. 0,019 g/m²/an pour une concentration en oxygène dissous de 50 % et seulement 0,008 g/m²/an pour une concentration en oxygène dissous de 0 % ($\pm$ 5 %).

Lorsque les mêmes résidus seront déposés dans des parcs à résidus dans des conditions non saturées ; la quantité de zinc libérée sera plus importante et variera en fonction du volume de la pluie précipitée et infiltrée. Par exemple, pour un volume de 200 mm/an la quantité de zinc rejetée sera de 10 g/m²/an. Puis elle augmente progressivement jusqu'à 25 g/m²/an, 50 g/m²/an et 75 g/m²/an pour des volumes de précipitations respectivement de 500 mm/an, 1000 mm/an et 1500 mm/an.

Le remblayage des résidus en fosse (sous le niveau de l'eau) semble donc une approche efficace pour prévenir l'oxydation et la génération de DMA. Par exemple dans la mine d'Owl Creek, aucun assainissement ou traitement de l'eau n'a été nécessaire au cours des 21 années écoulées depuis l'achèvement du remblayage de ces rejets miniers dans la fosse (MEND; 2005).

Environ 7,4 Mt de minerai et de stériles ont été remblayées, les minéraux sulfurés dominants étaient la pyrite (FeS₂), marcassite (FeS₂), pyrrhotite (Fe₇S₈), arsénopyrite (FeAsS) et chalcoppyrite (CuFeS₂). La région reçoit en moyenne 830 mm de précipitations par an, dont 300 mm de neige. Les températures maximales et minimales moyennes sont 24°C en juillet et -23°C en janvier. Le niveau d'eau dans la fosse d'Owl Creek a été maintenu par pompage périodique dans la rivière Porcupine. L'objectif était de maintenir le niveau du lac de la fosse entre 277 et 280 mètres au-dessus du niveau de la mer. Les effluents miniers étaient dirigés vers un bassin de stockage des eaux minières avant d'être relâché dans la rivière Porcupine. Aucun traitement de l'eau n'a été requis. L'effluent contenait de faibles niveaux de la plupart des paramètres y compris les solides en suspension, As, Pb, Zn et Cd, avec des niveaux modérés de Cu et Ni comme on le voit dans Tableau 4.3.

Tableau 4.3 Qualité chimique des effluents de la mine Owl Creek, Ontario depuis l'année 2000 jusqu'à l'année 2010. Limites réglementaires des effluents des mines d'environnement Canada.

	Années									*Limite réglementaire
	2000	2002	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	
As	0,83	0,250	0,020	0,03	0,02	0,03	0,04	0,03	0,02	0,5
Cu	1,2	1,8	0,02	0,02	0,01	0,01	0,02	0,04	0,005	0,3
Ni	0,7	0,9	0,08	0,05	0,03	0,02	0,03	0,03	0,01	0,5
Zn	0,08	0,025	0,004	0,008	0,012	0,004	0,004	0,016	0,003	0,5
Cd	0,002	0,002	0,002	0,0008	0,001	0,0005	0,0005	0,001	0,001	-
pH	8,1	8,3	7,8	8	8	8,6	8,1	7,7	8,2	6,0-9,5

*Règlement sur les effluents des mines de métaux (REMM) d'Environnement Canada, en mg/L.

CHAPITRE 5 OXYDATION INDIRECTE

L'objectif principal de ce chapitre était d'évaluer expérimentalement l'effet du fer ferrique en solution sur l'oxydation indirecte de différents résidus en milieu saturé et acide au moyen d'essais cinétiques au laboratoire (Chapitre 3.3.2). Une solution acide avec différentes concentrations de fer ferrique (Fe^{3+}) a été introduite dans les cellules afin de provoquer l'oxydation indirecte des résidus. On présente ici les principaux résultats des essais réalisés et une extrapolation de ces résultats à plus grande échelle afin d'évaluer l'ampleur et l'influence des eaux acides contaminées par différentes concentrations du fer ferrique sur la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans une fosse. Une évaluation de l'activité des bactéries ferrooxydantes acidophiles, sulfooxydantes neutrophiles et sulfooxydantes acidophiles a également été réalisée avant et après les essais cinétiques afin d'évaluer leur rôle dans la génération de DMA.

Les résidus testés au laboratoire sont les mêmes que ceux utilisés dans le chapitre précédent (c.à.d. résidus Laronde, résidus Westwood et résidus synthétiques). Les propriétés hydrogéotechniques et minéralogiques de ces résidus ont été présentées en détails au chapitre 3 (section 3.1).

5.1 Comportement géochimique des résidus en présence du fer ferrique en milieu acide

L'oxydation des sulfures a été ici suivie en mesurant l'évolution des concentrations de fer (essentiellement sous forme de fer ferreux, Fe^{2+}) dans le lixiviat et en soustrayant le fer introduit dans la solution d'entrée (sous forme de fer ferrique, Fe^{3+}). La différence du fer obtenu (ΔFe) correspondait ainsi à la quantité de fer produite par l'oxydation des sulfures. La différence des sulfates (ΔSO_4^{2-}) correspondait, quant à elle, à la quantité des sulfates produite. Dans des conditions acides, le principal oxydant de la pyrite est le fer ferrique (Nordstrom et al., 2000). Pour des valeurs de pH inférieures à 3,5, le fer ferrique reste en solution et devient un agent oxydant qui peut oxyder la pyrite selon la réaction 5.3; il s'agit de l'oxydation indirecte (Jambor et al., 1994; Nordstrom et al., 2000; Nordstrom et Campbell, 2014). Dans la présente étude, l'oxygène dissous dans l'eau a servi à oxyder les sulfures et non le Fe^{2+} en Fe^{3+} , car tout le fer injecté dans le système a été oxydé préalablement avec du peroxyde d'oxygène (H_2O_2 à 30%) qui a été ajouté quotidiennement à la solution d'entrée et par conséquent son potentiel redox était de 900 mV (Figure 5.2 b).

Le programme Act2 (Geochemist's Workbench, 2023) a été utilisé pour calculer et tracer des diagrammes d'activité du fer (Figure 5.1), indiquant sur un plan Eh/pH les domaines d'existence ou de prédominance des différentes formes du fer.

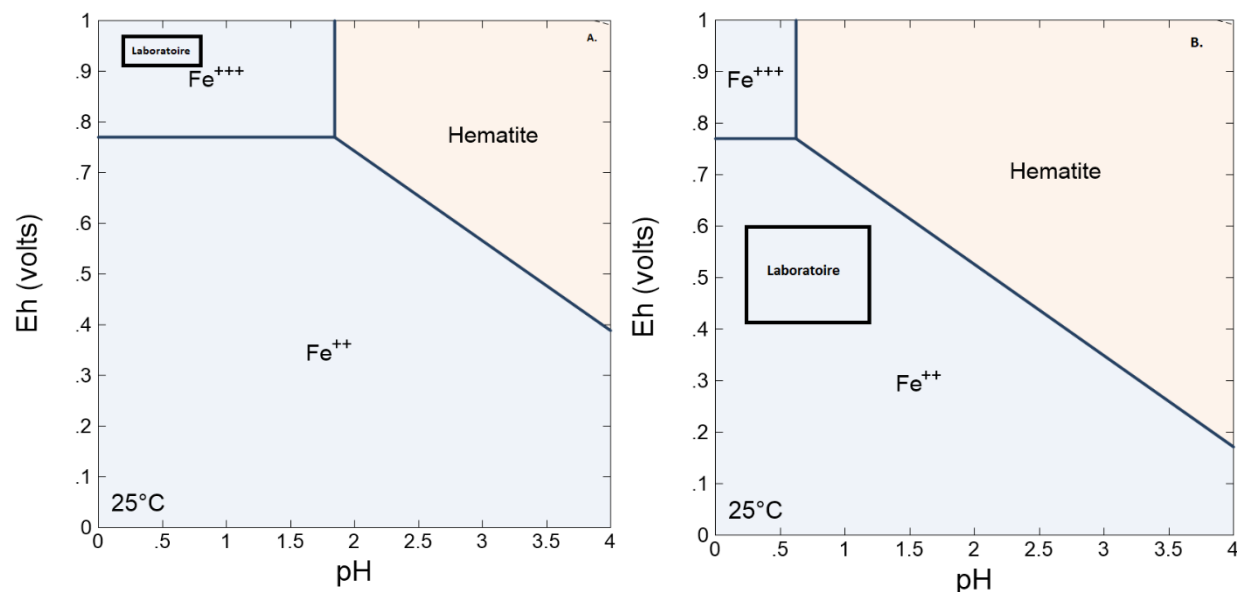


Figure 5.1 Diagrammes Eh-pH (A) de la solution du fer ferrique oxydée à l'entrée des essais cinétiques (Fe : 1500 mg/l) et (B) la solution du fer ferreux (Fe : 1906 mg/L) réduit dans le lixiviat à la sortie des essais cinétiques (diagrammes réalisés avec Geochemist's Workbench, 2023). Les conditions mesurées au laboratoire sont indiquées par un rectangle noir.

5.1.1 pH et potentiel d'oxydo-réduction (POR)

L'oxydation des sulfures a été ici suivie en mesurant l'évolution des paramètres électrochimiques, notamment, le pH à l'entrée et à la sortie des essais cinétiques, le POR et les principaux résultats sont présentés dans la figure 5.2.

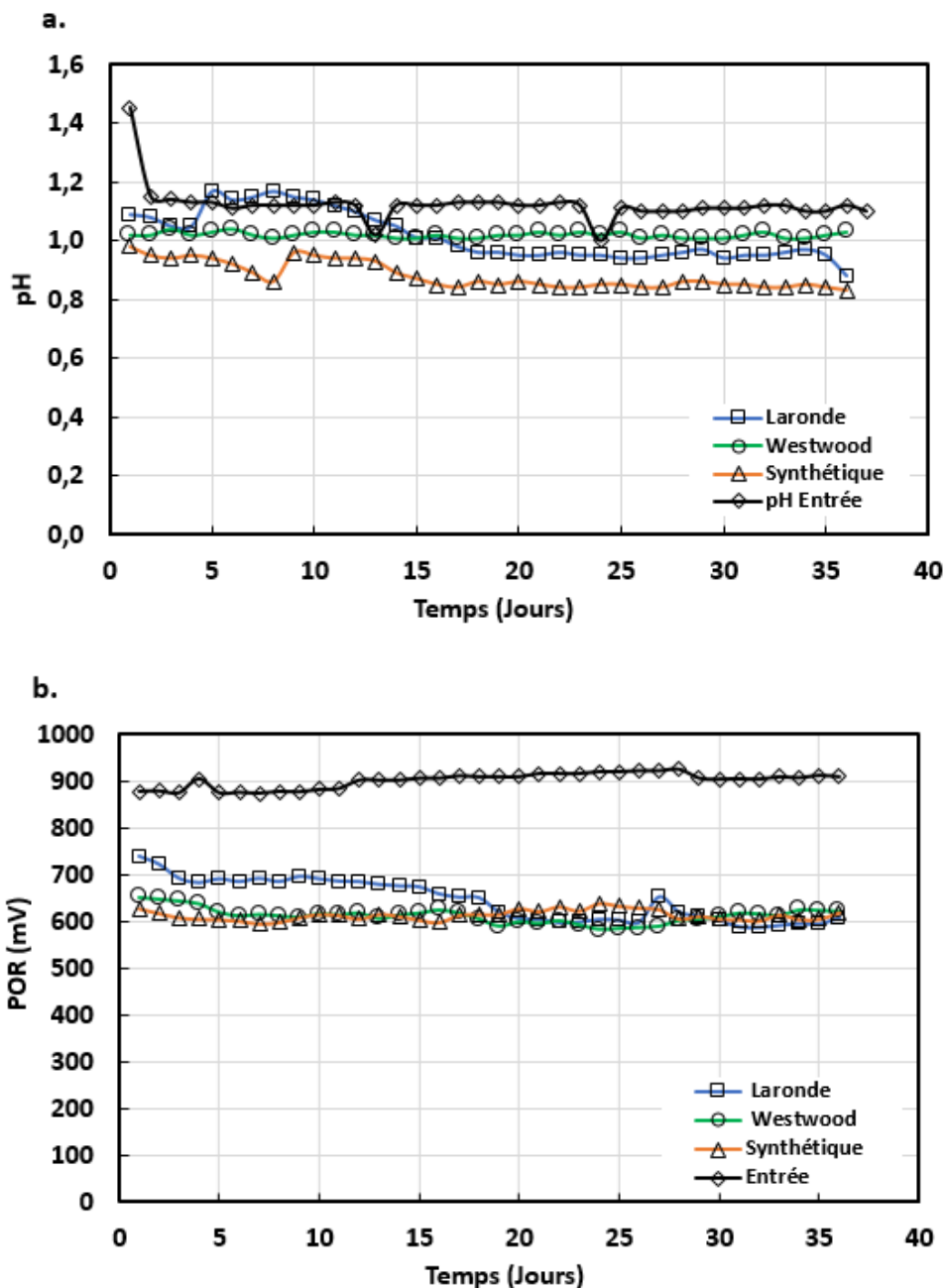


Figure 5.2 Évolution (a) du pH et (b) du potentiel d'oxydoréduction (POR) en fonction du temps à l'entrée et à la sortie des essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétiques.

La valeur de pH à l'entrée des trois cellules a été maintenue égale à $\text{pH}=1$ durant tout l'essai pour éviter la précipitation du fer (section 3.3.2). Les valeurs de pH à la sortie des trois cellules étaient très proches du pH d'entrée. Le pH dans les résidus Laronde est resté proche de la valeur de $1,0 \pm 0,2$ durant tout l'essai, montrant cependant une légère tendance à la baisse (Figure 5.2 a). Le pH des résidus Westwood est resté quasiment constant autour de 1,0, montrant très peu de fluctuations

(Figure 5.2 a). Enfin, le pH des résidus synthétiques était sensiblement plus faible avec une valeur minimale de 0,84, une valeur maximale de 0,95, et une légère tendance à la baisse. Les variations de pH sont donc restées faibles au cours des essais, malgré l'oxydation attendue des minéraux sulfureux. Celle-ci pourrait expliquer les légères baisses de pH (surtout pour les résidus Laronde et Synthétiques) mais restait insuffisante pour modifier significativement les concentrations déjà élevées de protons en solution.

Le (POR) à l'entrée des trois cellules était fortement oxydant (Figure 5.2 b), avec des valeurs de (POR) enregistrées à l'entrée de 916 mV, pour s'assurer que tout le fer injecté soit sous la forme oxydé. Pour la cellule Laronde, le POR à la sortie de la cellule oscillait entre 601 et 738 mV avec une valeur moyenne de 636 mV. Le POR des cellules Westwood et Synthétique a suivi une évolution similaire à celui de la cellule Laronde (Figure 5.2 b), à savoir une valeur minimale de 581 mV, une valeur maximale de 658 mV et une valeur moyenne de 611 mV pour la cellule Westwood. Une valeur minimale de 598 mV, une valeur maximale de 638 mV et une valeur moyenne de 632 mV ont été mesurées pour la cellule des résidus synthétiques. La diminution du POR indiquait l'oxydation des sulfures dans les résidus durant l'essai Figures 5.2a, b).

5.1.2 Concentrations d'oxygène dissous

La concentration en oxygène de l'eau d'entrée oscillait entre 40 et 60%. Les ajouts quotidiens d'eau fraîche (section 3.3.1) expliquent les faibles variations observées. L'évolution des concentrations en oxygène dissous dans l'eau d'entrée, dans les résidus (2 cm au-dessus de la base des cellules) et à la sortie des essais cinétiques sont présentées dans la figure 5.3.

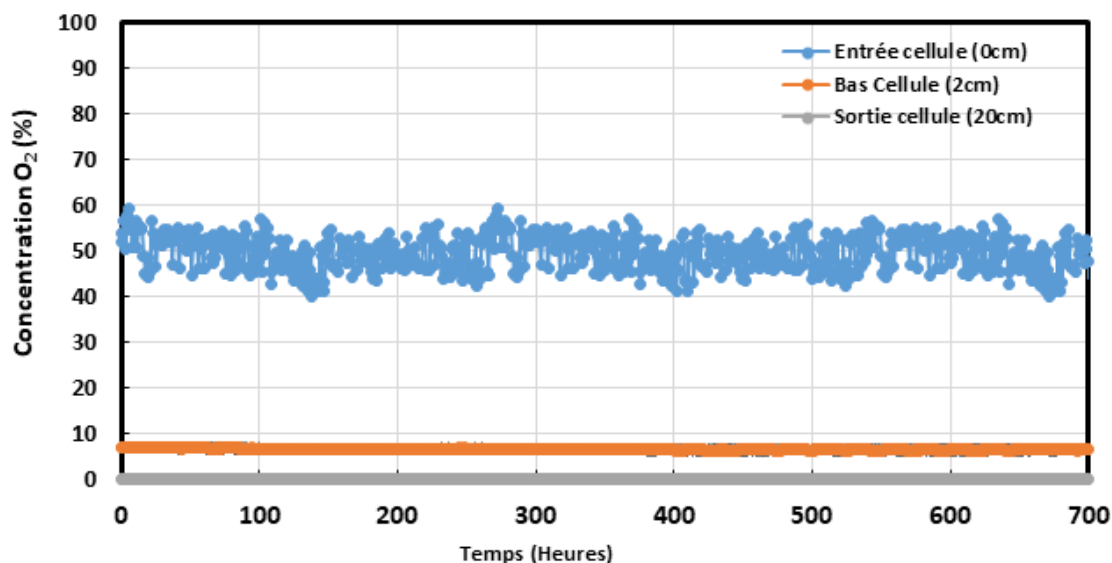


Figure 5.3 Évolution de la concentration en oxygène dissous dans l'eau d'entrée, dans les résidus (2 cm au-dessus de la base des cellules) et à la sortie des essais cinétiques Laronde.

L'oxygène dissous a été rapidement consommé par les résidus et les concentrations d'oxygène mesurées à une élévation de 2 cm étaient constantes et égales à 8% durant toute la durée des essais (voir par exemple les résultats pour la cellule Laronde L4 à la Figure 5.3). En d'autres termes, l'oxygène dissous présent dans l'eau d'entrée a été partiellement consommé dans les 2 premiers cm des échantillons. À la sortie des trois cellules, l'oxygène avait été entièrement consommé à une élévation de 20 cm et n'était plus mesurable. Ces observations ont confirmé que les matériaux avaient une réactivité relativement élevée même si la teneur en sulfure variait significativement entre les échantillons.

La consommation de l'oxygène dissous peut s'expliquer par deux réactions : l'oxydation directe des minéraux sulfureux et/ou l'oxydation du fer ferreux (produit par l'oxydation des sulfures) en fer ferrique. Le calcul stœchiométrique en se basant sur l'équation d'oxydation directe (équation 2.1) indique que la quantité de fer totale produite par l'éventuelle oxydation directe des sulfures au cours des essais était de 282 g pour les résidus Laronde (soit 0,19% de la quantité totale de fer libéré durant l'essai), 220 g pour les résidus Westwood (soit 0,22% du fer mesuré dans le lixiviat), et 219 g pour les résidus synthétiques (0,20% du fer mesuré dans le lixiviat). Le rôle de l'oxygène dissous dans l'oxydation de la pyrite semble donc marginal comparativement aux réactions d'oxydation indirecte.

5.1.3 Fer et sulfates

Les concentrations du fer ferreux dans le lixiviat (recueillies à la sortie) étaient fortement corrélées à la concentration en fer ferrique dans l'eau d'entrée. L'évolution de la concentration en fer ferrique dans la solution d'entrée, du fer ferreux dans la solution de sortie et du ΔFe qui représente le produit d'oxydation de la pyrite durant les essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétique sont présentées dans les Figures 5.4, a .b. c.

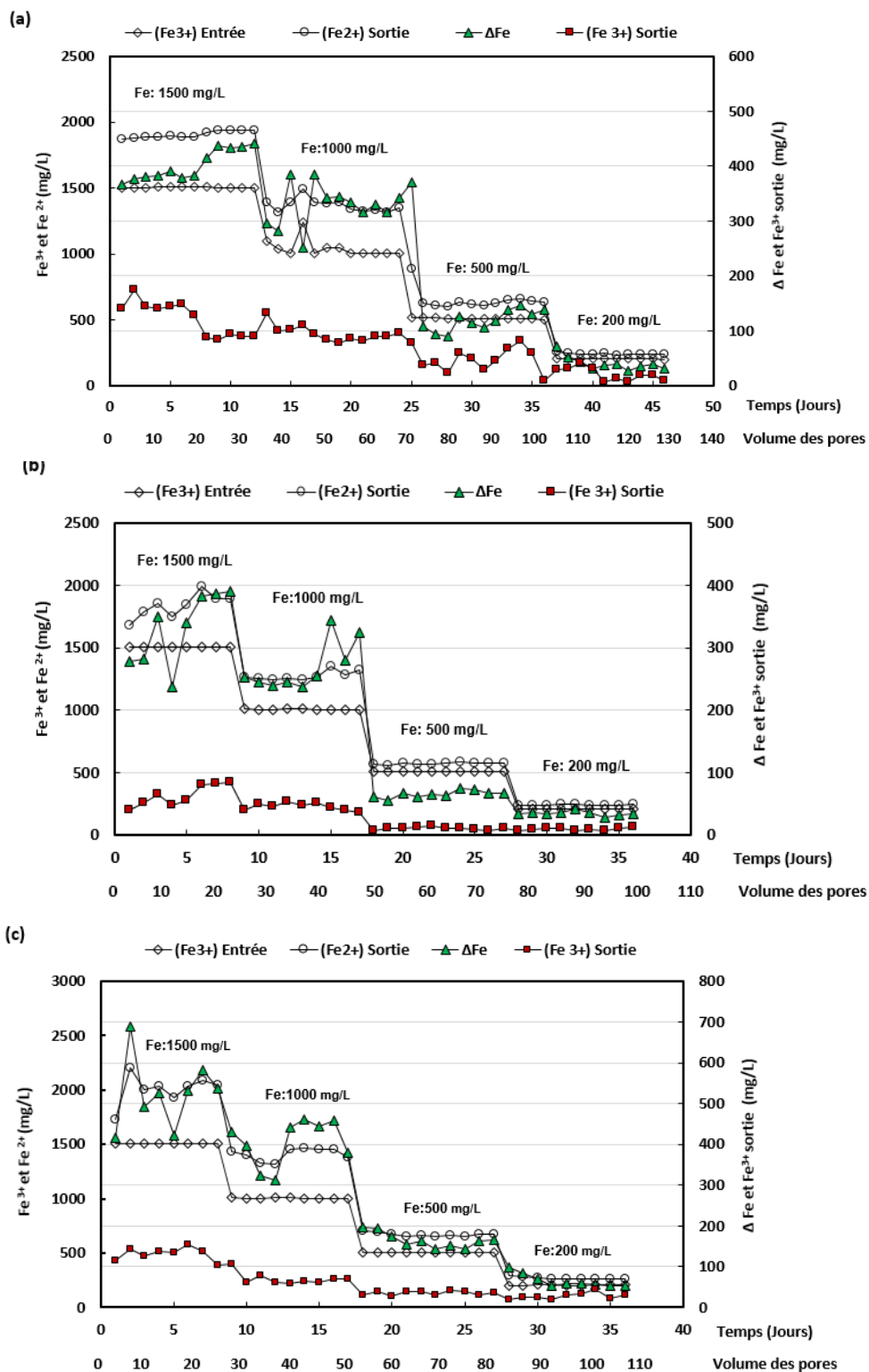


Figure 5.4 Évolution de la concentration en fer ferrique dans la solution d'entrée, du fer ferreux dans la solution de sortie et du ΔFe qui représente le produit d'oxydation de la pyrite durant les essais cinétiques pour les résidus (a) Laronde (b) Westwood (c) Synthétique.

Par exemple, pour les résidus Laronde, le $\Delta\text{Fe} (\text{Fe}^{2+})$ était en moyenne d'environ 401 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L, d'environ 326 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1000 mg/L, d'environ 140 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et autour de 41 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (figure 5.4a). Un comportement similaire a été observé pour les résidus Westwood (Figure 5.4b) et les résidus synthétiques (Figure 5.4c). Pour les résidus de Westwood qui avaient une teneur en sulfure d'environ 5%, la concentration en fer ferreux s'est stabilisée autour d'une valeur moyenne de 331 mg/L pour une concentration d'entrée en fer ferrique de 1500 mg/L, autour de 269 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 1000 mg/L, autour de 65 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et autour de 34 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (Figure 5.4b). Les concentrations de fer ferreux mesurées pour les résidus synthétiques suivent la même tendance. En effet, la concentration en fer ferreux s'est stabilisée autour d'une valeur moyenne de 524 mg/L pour une concentration d'entrée en fer ferrique de 1500 mg/L, autour de 405 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 1000 mg/L, autour de 164 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et autour de 64 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (Figure 5.4c). La concentration de Fe^{2+} libérée dans le lixiviat est donc fonction de la concentration en fer ferrique dans la solution d'entrée, mais aussi de la teneur en sulfures dans les résidus miniers.

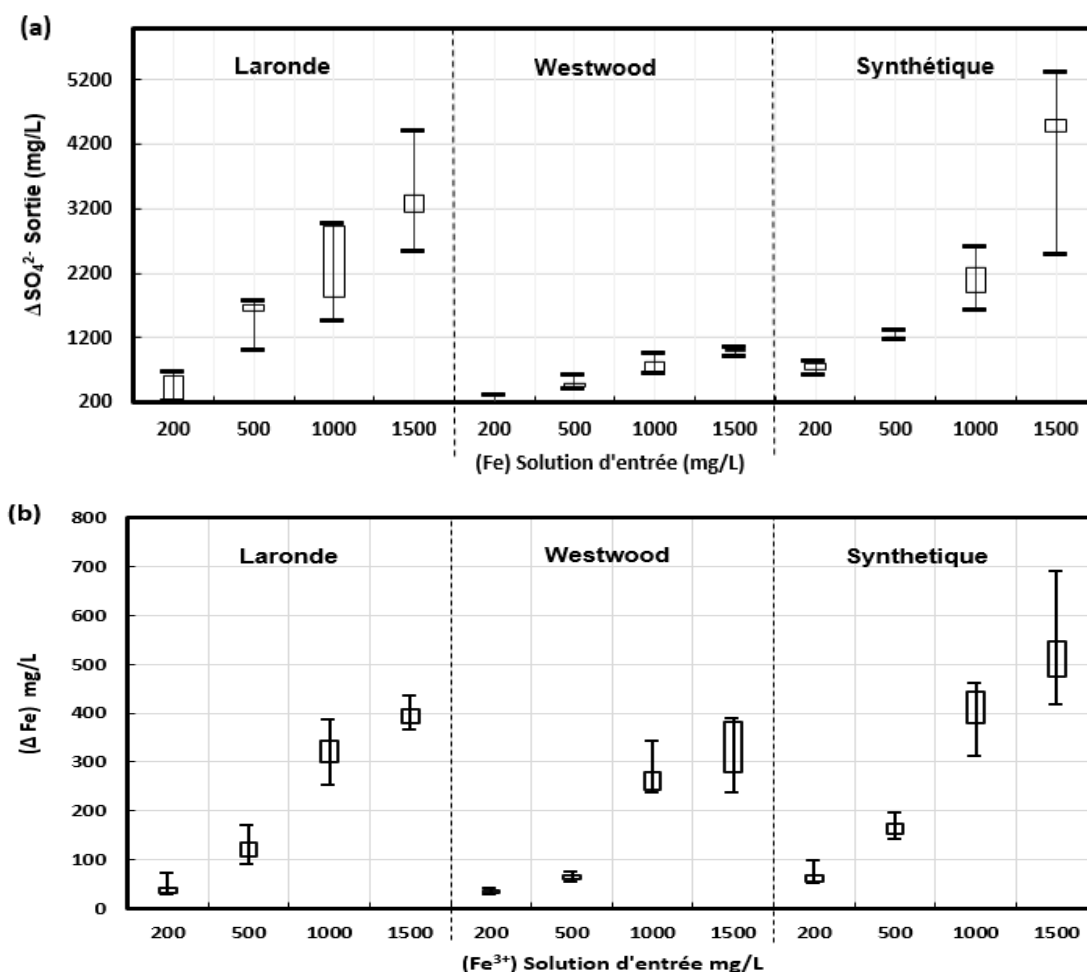


Figure 5.5 Évolution de la concentration des produits d'oxydation des sulfures (sulfate ΔSO_4^{2-} et ΔFe) libérés dans les solutions de sortie durant les tests cinétiques en milieu acide pour les résidus Laronde, Westwood et Synthétique. Valeur maximale, valeur minimale, médiane, 1^{er} et 3^{ème} quartile calculés pour dessiner la boîte à moustache pour chaque concentration.

Les concentrations de sulfates dans le lixiviat (recueillies à la sortie) étaient fortement corrélées à la concentration en fer ferrique dans l'eau d'entrée (Figure 5.5a). La différence des sulfates (ΔSO_4^{2-}), obtenu en soustrayant le sulfate introduit dans la solution d'entrée (sous forme d'acide sulfurique) aux concentrations mesurées à la sortie, correspond à la quantité des sulfates produite par la réaction d'oxydation. Par exemple, pour les résidus Laronde, la concentration moyenne de sulfates générés était de 3314 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L et diminuait progressivement pour atteindre des concentrations de 2387 mg/L, 1571 mg/L et 409 mg/L pour

des concentrations de fer de 1000 mg/L, 500 mg/L et 200 mg/L, respectivement (Figure 5.5a). Les résidus Westwood et synthétiques montraient des tendances similaires. Pour les résidus Westwood, le ΔSO_4^{2-} était en moyenne d'environ 992 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L, d'environ 730 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1000 mg/L, d'environ 476 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et autour de 214 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (figure 5.5a). Pour les résidus synthétique, le ΔSO_4^{2-} était en moyenne d'environ 4337 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L, d'environ 2113 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1000 mg/L, d'environ 1209 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et autour de 739 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (figure 5.5a).

Le même comportement a été observé pour la quantité de fer ferreux libéré ΔFe lors de l'oxydation indirect par le fer ferrique (Figure 5.5 b). La présente étude a démontré que la quantité de fer ferreux (Fe^{2+}) et de sulfates (SO_4^{2-}) libérés lors de l'oxydation indirecte des résidus à pH acide dépendait de la quantité d'agent oxydant (Fe^{3+}) et aussi de la teneur en pyrite dans les résidus. En effet, à faible pH, le fer ferrique peut devenir le principal accepteur d'électrons et contribuer à l'oxydation de la pyrite selon la réaction d'oxydation indirecte (5.3).

5.1.4. Résultats expérimentaux versus calcul stœchiométrique

Dans les essais de laboratoire, le fer ferreux Fe^{2+} libéré pour les trois résidus était légèrement supérieur à la stœchiométrie de la réaction d'oxydation indirecte de la pyrite. Par exemple, pour les résidus de Laronde, le fer ferrique Fe^{3+} injecté lors de l'essai était de $1,15 \times 10^5$ g de Fe^{3+} , et la quantité de fer ferreux Fe^{2+} dans le lixiviat était de $1,47 \times 10^5$ g de Fe^{2+} . Selon l'équation d'oxydation indirecte (équation 2.5), le rapport du Fe^{2+} généré sur le Fe^{3+} consommé devrait être de 15/14 soit 1,07, alors qu'il est de 1,28 pour les résidus Laronde (1,19 fois supérieur), de 1,21 pour les résidus Westwood (1,13 fois plus) et 1,35 pour les résidus synthétiques (1,26 fois plus). Les résultats de l'évolution du (Fe^{2+}) libéré comme produit d'oxydation indirecte et du (Fe^{3+}) comme agent oxydant sur les résidus synthétiques, les résidus Laronde et les résidus Westwood sont présentés dans la figure 5.6.

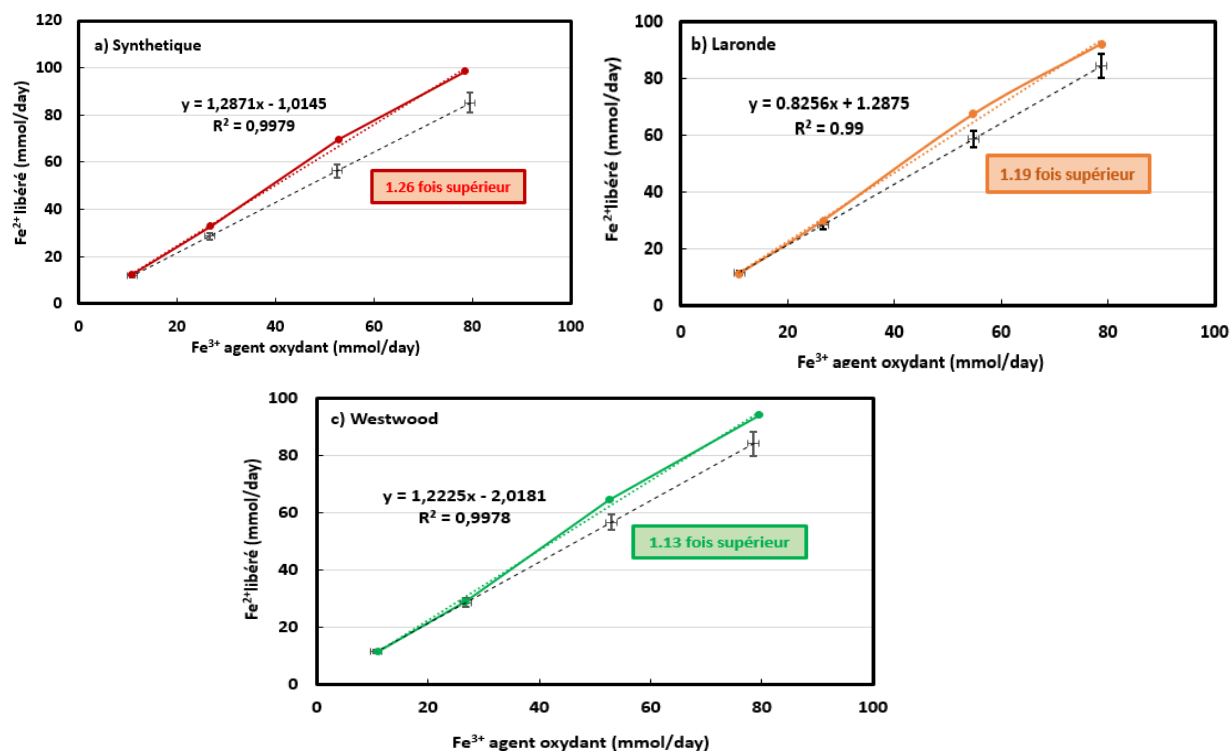
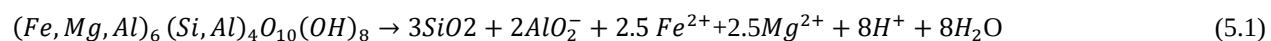


Figure 5.6 Évolution du (Fe^{2+}) libéré comme produit d'oxydation indirecte et du (Fe^{3+}) comme agent oxydant sur (a) les résidus synthétiques, (b) les résidus Laronde et (c) les résidus Westwood. Les pointillés noirs correspondent au ratio théorique de 1,07.

La quantité de Fe^{2+} en excès libérée dans la phase aqueuse pourrait être causée par deux phénomènes possibles autres que l'oxydation indirecte : **(1)** oxydation directe des sulfures par O_2 et **(2)** dissolution et solubilisation du fer (notamment présent dans les silicates) à pH acide. Premièrement, l'oxydation directe de la pyrite par l'oxygène était possible puisque la concentration en oxygène dissous dans la solution d'entrée était de 50% et presque nulle à la sortie (voir aussi section 5.2). Selon l'équation d'oxydation directe (équation 2.1), la quantité de Fe^{2+} générée à partir de l'oxydation directe par l'oxygène dissous consommé était de 282 g de fer pour les résidus Laronde (équivalent de 0,19% par rapport à la totalité du fer libéré), 220 g pour les résidus Westwood (équivalent de 0,22%), et 219 g pour les résidus synthétiques (équivalent de 0,20%). En d'autres termes, l'oxydation directe ne peut expliquer seule l'excès de Fe^{2+} observé dans le lixiviat.

Deuxièmement, la dissolution et la solubilisation du fer présent dans les silicates notamment la chlorite, peut également expliquer l'excès de fer ferreux récupéré dans la solution de sortie. La dissolution de la chlorite a été décrite par Alekseyev et al. (2006), où le taux de dissolution à

différents pH a été exprimé en ($\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$). Le taux le plus élevé est enregistré à des valeurs de pH acides (Ronglei Zhang et al., 2019). Selon l'équation (équation 5.1) et considérant que l'excédent du fer provient de la chlorite, la quantité de Fe^{2+} générée à partir de la dissolution de la chlorite était équivalente à 20,81% pour les résidus Laronde et 13,78% pour les résidus Westwood.



Enfin, l'incertitude des méthodes d'analyse peut aussi expliquer la légère différence entre les résultats expérimentaux et le calcul stœchiométrique. Ces résultats doivent cependant être considérés avec précaution en raison de la précision des analyses par ICP (précision relative de 5% ; Foudhaili, 2019) et avec le spectrophotomètre (précision $\pm 0,005 \text{ A}$; LaMotte 2000) pourrait aussi expliquer certaines différences.

La masse cumulée de fer ferreux mesurée dans la solution de lixiviat en tant que produit d'oxydation indirecte est tracée en fonction de la masse cumulée de fer ferrique injectée (Figure 5.6). Cela nous a permis d'obtenir une valeur moyenne de fer ferreux pour chaque étape et chaque résidu.

Notamment, l'oxydation des sulfures par le fer ferrique peut être considérée comme une réaction électrochimique associant l'oxydation anodique d'un réducteur (résidus minier) et la réduction cathodique d'un agent oxydant (Fe^{3+}) (Yun Liu et al., 2011). Pour des valeurs de pH inférieures à 3,5, le fer ferrique reste en solution et devient un agent oxydant qui peut oxyder la pyrite selon la réaction 5.1 ; il s'agit de l'oxydation indirecte (Jambor et al., 1994 ; Nordstrom et al., 2000 ; Nordstrom et Campbell, 2014). Certains auteurs estiment que la réaction d'oxydation indirecte est lente et négligeable lorsque les valeurs de pH dépassent 3-4, car Fe^{3+} se trouve principalement sous forme précipitée (Appelo et Postma, 1994, Holmes et al., 2000). Dans des conditions acides, le principal oxydant de la pyrite est le fer ferrique. Lorsque le rapport $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ est grand, la réaction d'oxydation est très rapide. Elle peut être encore accélérée en présence d'oxygène dissous (Smith et Shumate, 1970 ; Zheng et al., 1986), ceci a été confirmé dans la présente étude pour les trois résidus miniers (Figure 5.6).

5.1.5 Calcium, magnésium et manganèse

La génération de calcium, magnésium et manganèse durant les essais cinétiques est généralement considérée comme un indicateur de la dissolution des carbonates (Benzaazoua et al., 2004c). Les résultats de l'analyse minéralogique (section 3.2.3) ont montré la présence des carbonates dans les

résidus Westwood, principalement sous forme de dolomite (2,8%) et de la calcite (2,7%). De la calcite a également été détectée dans les résidus Laronde au moyen d'une caractérisation MEB-Zeiss, mais les teneurs étaient beaucoup plus faibles (0,3%). Les résidus synthétiques, pour leur part, ne contenaient aucune trace de carbonates. Les concentrations moyennes de métaux dans les solutions durant les essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et le Synthétique (en mg/L) comparés aux limites de la directive 019 (en rouge en mg/L) sont présentées dans le tableau 5.1.

Tableau 5.1 Concentrations moyennes de métaux dans les solutions durant les essais cinétiques pour les résidus Laronde, Westwood et le Synthétique (en mg/L) comparés aux limites de la directive 019 (en rouge en mg/L).

	Fe entrée (mg/L)	pH (-)	Cu (mg/L)	Ni (mg/L)	Zn (mg/L)	Fe (mg/L)	Pb (mg/L)	Mn (mg/L)	Mg (mg/L)	Ca (mg/L)
Directive 019		<6	0,6	1	1	6	0,4	-	-	-
Laronde	1500	<1	676	0,485	358	1904	2,85	2,86	33,8	31
	1000	<1	538	0,478	87	1352	3,32	2,1	8,13	6,5
	500	<1	145	0,088	213	640	0,33	1,8	1,4	1,2
	200	<1	3,5	0,496	15	240	2,34	0,8	0,001	0,9
Westwood	1500	<1	204	0,245	164	1842	1,78	25	182	419
	1000	<1	164	0,302	96	1276	1,95	25	131	300
	500	<1	77	0,358	73	571	0,89	1,7	11	11
	200	<1	50	0,618	67	242	1,59	1,6	3	2
Synthétique	1500	<1	121	0,180	45,9	2257	1,47	1,74	1,1	5,8
	1000	<1	67	0,123	28,3	1391	2,23	0,677	0,73	3,0
	500	<1	44	0,109	13,2	668	2,12	0,58	0,001	1,7
	200	<1	38	0,069	7,39	269	1,85	0,508	0,001	0,5

Les concentrations de calcium, magnésium et manganèse dans le lixiviat augmentaient avec la concentration de fer ferrique et étaient plus importantes (jusqu'à 13 fois supérieures) pour les résidus de Westwood que pour les résidus Laronde et synthétiques. Par exemple, la concentration de calcium était de 419 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L, d'environ 300 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1000 mg/L, de 11 mg/L pour une concentration

en fer ferrique de 500 mg/L et de 2 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (Tableau 5.1). Pour les résidus de Laronde qui avaient une teneur en carbonates moindre, la concentration en calcium s'est stabilisée autour d'une valeur moyenne de 31 mg/L pour une concentration d'entrée en fer ferrique de 1500 mg/L, autour de 6,5 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 1000 mg/L, autour de 1,2 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et autour de 0,9 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (Tableau 5.1). Pour les résidus synthétiques qui ne contenaient aucune trace de carbonates, le calcium mis en solution était plus faible. La concentration de calcium était de 5,8 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L, d'environ 3 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1000 mg/L, de 1,7 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et de 0,5 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (Tableau 5.1).

Les analyses de carbone total à la fin des essais ont confirmé son épuisement total dans toutes les cellules. Les concentrations de Mg et Mn pour les résidus Laronde et Westwood pourrait aussi provenir de la dissolution de la chlorite $((\text{Fe},(\text{Mg},\text{Mn})_5,\text{Al})(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH})_8)$ dans les conditions acides. Les résultats des travaux de Gustafsson et Puigdomenech (2003) indiquent et suggèrent une dissolution plus rapide de la chlorite pour des pH < 6 (Gustafsson et Puigdomenech, 2003). L'augmentation des concentrations de Mg pourrait également être expliquée par la dissolution des carbonates de magnésium, notamment la dolomite (Palandri et Kharaka, 2004).

5.1.6 Métaux et métalloïdes

La concentration des métaux et métalloïdes pour les trois résidus testés tendait à diminuer avec la concentration de fer ferrique dans l'eau d'entrée (Tableau 5.1). Par exemple, pour les résidus Laronde, la concentration d'aluminium libérée était d'environ 85 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L, de 49 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1000 mg/L, de 2,7 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et de 2,4 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (figure 5.3.a). Un comportement similaire a été observé pour le potassium et le sodium. Ces éléments provenaient essentiellement (d'après l'analyse DRX) de la dissolution de la chlorite, de la muscovite, de l'anorthite, de l'orthoclase, de la paragonite et de l'albite. Les silicates ont généralement un taux de dissolution faible à pH neutre mais celui-ci augmente avec la diminution du pH et peut atteindre $10^{-10} \text{ mole.m}^{-2}\text{s}^{-1}$ pour des pH < 2 (Chou et Wollast, 1985 ; Sverdrup, 1990). Les concentrations de métaux et métalloïdes étaient très faibles

pour les résidus synthétiques, puisque la présence de silicate était négligeable en dehors du quartz (Tableau 3.3). Par exemple, les concentrations d'aluminium, de potassium et de sodium ne dépassaient pas 0,2 mg/L, 1,5 mg/L et 5 mg/L, respectivement.

Les concentrations de Cu et Zn pour les résidus Laronde et Westwood étaient significatives et tendaient, elles aussi, à diminuer au cours des essais à mesure que les concentrations en fer ferrique diminuaient (Tableau 5.1). Par exemple pour les résidus Laronde, la concentration moyenne de Cu^{2+} était d'environ 676 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L. Ensuite, les concentrations de Cu^{2+} diminuaient progressivement pour atteindre des concentrations moyennes de 538 mg/L, 145 mg/L et 3,5 mg/L, respectivement, pour des concentrations de 1000 mg/L, 500 mg/L et 200 mg/L en fer ferrique. La concentration moyenne de Zn^{2+} était de 358 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L, de 87 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1000 mg/L, de 213 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et de 15 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (Tableau 5.1). Pour les résidus Westwood et les synthétiques, les mêmes tendances ont été enregistrées. Ces concentrations relativement élevées sont cohérentes avec l'oxydation de chalcoppyrite identifiée par analyse minéralogique automatisée. Une autre hypothèse envisageable est celle des substitutions du Zn, Cu et Ni dans la structure cristallographique de la pyrite (Appelo et Postma, 1993, Klein et Hurlbut, 1999) sans que ces changements ne soient détectables au DRX et au MEB. Par exemple, on trouve dans la littérature des occurrences de pyrite zincifère (Ballesterosite : $(\text{Fe}, \text{Zn}) \text{S}_2$), de pyrite nickélifère (Bravoite : $(\text{Fe}, \text{Ni}) \text{S}_2$) et de pyrite cuivreuse (de formule $(\text{Fe}, \text{Cu}) \text{S}_2$) qui peut aller jusqu'à 50% molaire de l'un ou l'autre métal (Lapparent et al., 1886 ; Bussière et al., 2011).

La concentration du plomb pour les trois résidus n'avait pas d'origine minéralogique claire selon les résultats de la caractérisation des résidus. Alors que quelques grains de galène auraient pu échapper au DRX et MEB. Des traces de galène (PbS) pourraient très bien expliquer les petites teneurs de Pb en solution. Par exemple, pour les résidus Laronde, la concentration moyenne de Pb^{2+} était d'environ 2,85 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1500 mg/L, de 3,32 mg/L pour une concentration de fer ferrique de 1000 mg/L, de 0,33 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 500 mg/L et de 2,34 mg/L pour une concentration en fer ferrique de 200 mg/L (Tableau 5.1). Pour les résidus Westwood et les synthétiques, les mêmes tendances ont été enregistrées. Sa présence en solution demeure très faible par rapport aux autres métaux, à moins de 3 mg/l pour les

trois résidus et elle n'a pas d'explication directe, ce qui nécessite l'utilisation d'un certain nombre d'hypothèses. La première est que, peut-être, certaines phases minéralogiques n'ont pas été détectées à la caractérisation minéralogique, notamment des traces de galène. Une autre hypothèse envisageable est celle de la précipitation du PbSO_4 qui est très insoluble. Ce dernier exerce un important contrôle sur les concentrations de Pb dans le DMA et le Pb en solution est souvent contrôlé par l'équilibre avec le PbSO_4 . Une autre hypothèse envisageable est celle des substitutions du Pb dans le réseau cristallin de la pyrite (Appelo et Postma, 1993). Ces résultats doivent être considérés avec précaution en raison de l'incertitude des analyses ICP-AES (précision relative de 5% ; Foudhaili, 2019) et les interférences spectrales qui se traduisent par le recouvrement plus ou moins important du signal de la raie plomb analysée par le signal de la raie d'un autre élément, ou par la présence d'un fond spectral suite aux effets de la matrice, qui induit une diminution significative du signal de l'élément Pb (Loula et al., 2019).

Les concentrations de Cu, Zn et Pb dépassaient généralement les limites fixées par la directive 019 (Tableau 5.1). Toutefois, ces concentrations diminuaient à fur et à mesure que la concentration du fer ferrique diminuait dans la solution d'entrée. Pour les concentrations moyennes de Ni^{2+} libérées dans les trois cellules, étaient inférieurs à la limite exigée par la directive 019 qui est de 1mg/L. Par exemple pour les résidus Laronde, ils n'ont présenté qu'une concentration moyenne de 0,48 mg/L, 0,47 mg/L et 0,08 mg/L respectivement pour des concentrations de 1500 mg/L, 1000 mg/L et 500 mg/L en fer ferrique.

Les concentrations de métalloïdes suivent la même tendance que SO_4^{2-} et Fe^{2+} . Plus la quantité de fer ferrique est importante, plus la concentration de métalloïdes libérés est importante (Tableau 5.1). Ceci est confirmé pour les trois types de résidus. La quantité de métalloïdes libérés pour les résidus synthétiques était très limitée par rapport aux résidus Laronde et Westwood. Ceci peut s'expliquer par la composition minéralogique des résidus synthétiques qui ne sont constitués que de sable et de pyrite. Pour les résidus synthétiques, les concentrations de Cu, Ni et Zn, bien qu'inférieure aux autres, ils étaient quand même assez importantes. Ceci peut être expliqué par le fait que la pyrite était contaminée en traces de ces métaux, ou encore quelques traces d'autres minéraux contenant ces éléments étaient présentes avec la pyrite.

5.2 Caractérisation des résidus après démontage des colonnes

Le démontage ainsi que la méthode de récupération des échantillons des colonnes sont décrits au chapitre 3. La hauteur totale des résidus est mesurée. Les échantillons sont ensuite découpés en trois morceaux cylindriques. Les analyses post-démantèlement ont concerné la détermination de l'indice des vides, le pH de la pâte, et les analyses granulométriques, minéralogiques et chimiques qui ont été effectuées (Annexes A et B) afin de comparer les caractéristiques initiales des résidus au moment du montage à celles finales au démontage des colonnes.

Une observation MEB des trois résidus avant et après les essais cinétiques en milieu acide a été réalisée (figure 5.7) pour voir les changements qui ont eu lieu dans la structure et la morphologie de surface de la pyrite suite à l'oxydation avancée des résidus et détecter la présence d'éventuels précipités secondaires.

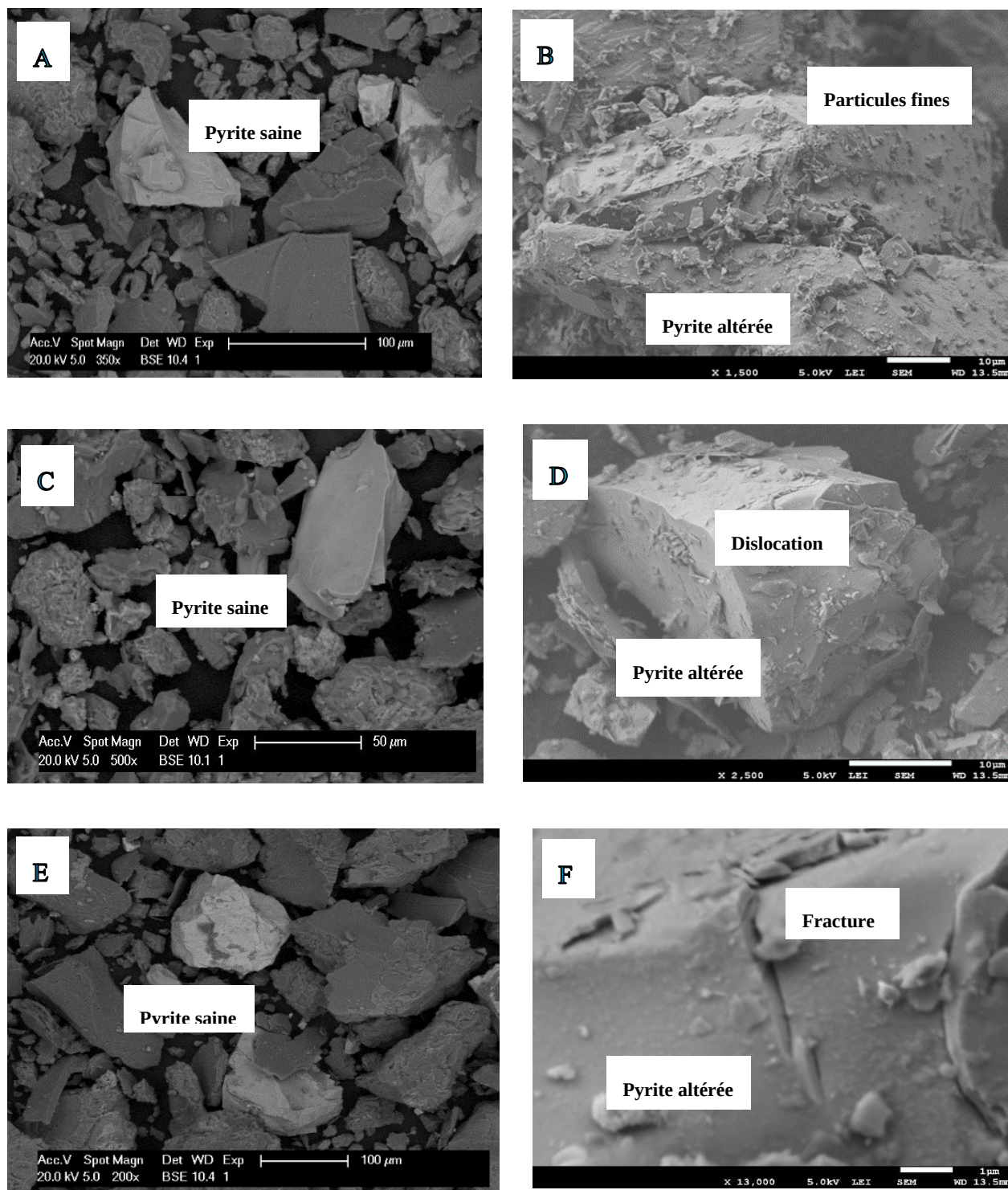


Figure 5.7 Images MEB des résidus avant (A.C.D) et après (B.D.F) les essais cinétiques pour les résidus Laronde (A, B), Westwood (C, D) et Synthétiques (E, F) montrant les fractures, les dislocations et les divers changements par rapport à la morphologie de surface initiale de la pyrite.

Avant les essais cinétiques, les surfaces de pyrite sont lisses et dépourvues de fractures (Figure 5.6 A.C.E) par rapport à la morphologie de surface du même matériau après les essais cinétiques (Figure 5.6 B.D.F). Les images MEB après les essais cinétiques ont montré qu'un grand nombre de fines particules de pyrite étaient présentes après 35 à 45 jours d'oxydation. Certaines dislocations semblaient également s'être produites sur les surfaces de pyrite, suggérant un état d'oxydation avancé (Blondin, 2006). Des piqûres de corrosion étaient également présentes. Les résultats de l'analyse MEB des résidus oxydés suggèrent que l'oxydation se produit facilement à des sites spécifiques, tels que les bords des particules, les fissures et les coins.

Habituellement, dans ce contexte, plusieurs phases peuvent précipiter, notamment la goethite, la ferrihydrite, la lepidocrocite et la jarosite (Nordstrom et Campbell, 2014), mais des études antérieures en laboratoire ont montré que la ferrihydrite a tendance à dominer à des valeurs de pH $> 5,5$, et que la schwertmannite a tendance à précipiter à des valeurs de pH intermédiaires $2,8 < \text{pH} < 4,5$ (Zhuo Zhang et Xue Bi ; 2018). En effet, dans notre cas, suite à la forte acidité de l'électrolyte, un composé ferrique a peu de chance de précipiter. Cela a été confirmé par les résultats de VMintech et le MEB. Les indices de saturation des phases: $\text{Fe}(\text{OH})_2$, $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$, $\text{Fe}_3(\text{OH})_8$, ferrihydrite, goethite, hématite, H-Jarosite, lepidocrocite, maghémite et magnétite étaient largement négatives et sont respectivement de -12,88 ; -15,72 ; -23,19 ; -4,98 ; -2,15 ; -1,93 ; -10,24 ; -2,85 ; -9,35 ; -6,99. La qualité d'eau qui a été simulée est l'eau d'entrée à la colonne qui était acide et oxydée, avec des valeurs moyennes de ($\text{pH}=1,0 \pm 0,2$ en utilisant de l'acide sulfurique à 98%), et du potentiel redox de la solution qui a été ajusté à ($\text{ORP}= 900 \pm 5 \text{ mV}$ avec 30% de H_2O_2). L'ajout d'acide sulfurique et de peroxyde d'oxygène avait pour objectif de maintenir des conditions oxydantes et acides pour empêcher la précipitation du fer.

5.3 Évaluation de l'activité des bactéries ferrooxydantes acidophiles

Les bactéries ciblées dans cette étude comprenaient les bactéries ferrooxydantes acidophiles, les bactéries sulfooxydantes acidophiles et les bactéries sulfooxydantes neutrophiles. Cette étude qualitative a été réalisée sur la base du protocole décrit au chapitre 3. La méthode utilisée dans ce travail peut être considérée comme une méthode de caractérisation traditionnelle mais elle est également essentielle pour optimiser la croissance et l'activité des microorganismes et pour l'isolement et la caractérisation de nouvelles souches pures de microorganismes (Kaksonen et al., 2018). Ce rôle n'est pas aisé et nécessite le développement de méthodes de culture, de

caractérisation et de surveillance spécifiques vu leurs uniques caractéristiques de croissance, le besoin en acidité et les conditions limitées en nutriment pour leur croissance (Gumulya et al., 2018). Mais, avec le développement de nouvelles technologies de séquençage, la génomique est devenue un outil puissant dans la compréhension du potentiel métabolique des microorganismes impliqués dans le DMA. Le développement des méthodes basées sur l'ADN et l'ARN ainsi que la bio-informatique ont fourni des informations sans précédent sur la phylogénie et les fonctionnalités des microorganismes (Tang et al., 2016).

Un schéma des différentes étapes de l'évaluation de l'activité bactérienne utilisée dans cette étude est présenté dans la figure 5.8.

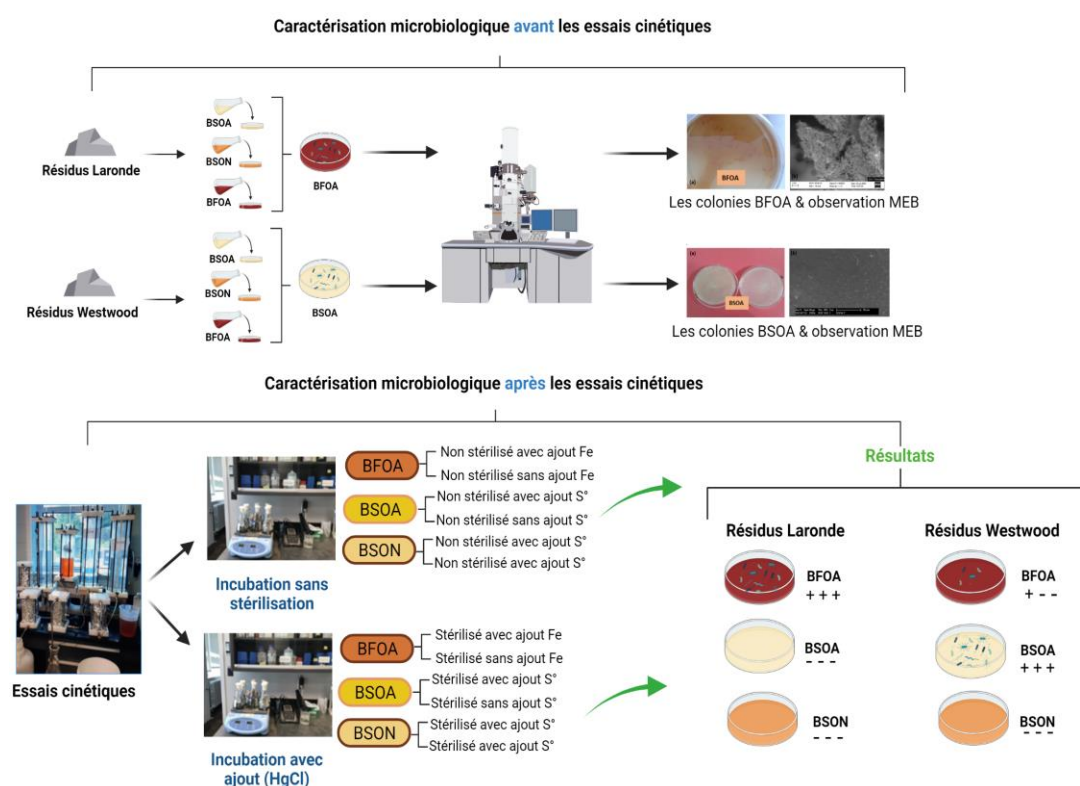


Figure 5.8 Schéma graphique des différentes étapes de la caractérisation microbiologiques des résidus Laronde et Westwood avant et après les essais cinétiques.

L'évaluation des bactéries ferroxydantes acidophiles au temps initial (W0-L0) avant les essais cinétiques, montrent la présence de ce groupe de micro-organismes surtout pour les résidus Laronde. En effet, des milieux de cultures spécifiques ont été ensemencés et incubés (Voir Annexe J). Une observation via le microscope électronique à balayage a démontré la présence des bacilles dans le milieu (Figure 5.9).

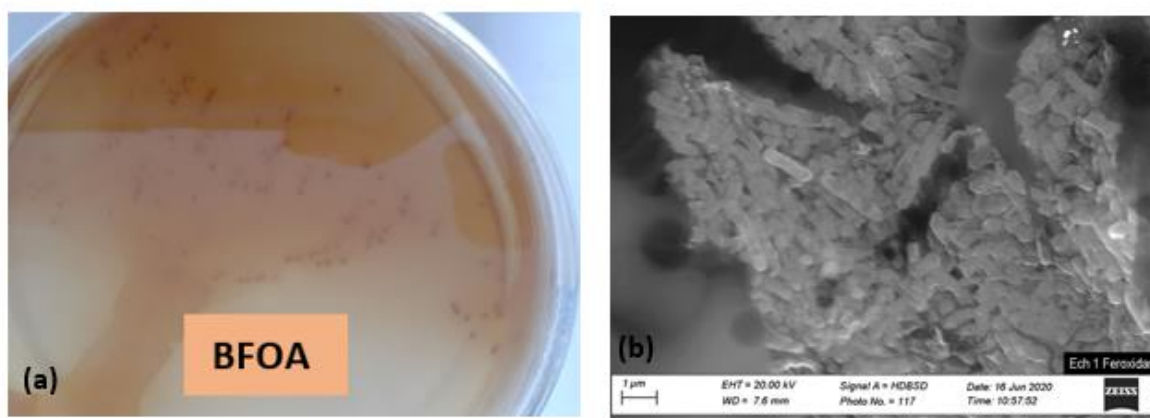


Figure 5.9 (a) Colonies de bactéries ferroxydantes acidophiles des résidus Laronde avant les essais cinétiques (b) observation des mêmes colonies via le microscope électronique à balayage.

Ces bactéries ferroxydantes acidophiles (BFOA) sont des bactéries chimiolithotrophes, utilisant l'énergie de l'oxydation des minéraux contenant du fer et du soufre pour leur croissance (Valdés et al., 2008). Ils se développent à des pH extrêmement bas ($\text{pH} = 1-2$) et fixent à la fois le carbone et l'azote de l'atmosphère (Jung, H et al., 2021). Grâce à leur capacité à se développer dans des environnements extrêmes, les BFOA font partie des consortiums microbiens les plus utilisés pour la biolixiviation industrielle du cuivre et d'autres minerais sulfurés à travers le monde (Bellenberg et al., 2019).

L'évaluation de l'activité des bactéries ferroxidantes acidophiles au démontage de (W4-L4 : essais cinétiques dans un milieu saturé avec du fer ferrique à pH acide) pour les résidus Laronde et pour les résidus Westwood est présentée dans la figure 5.10.

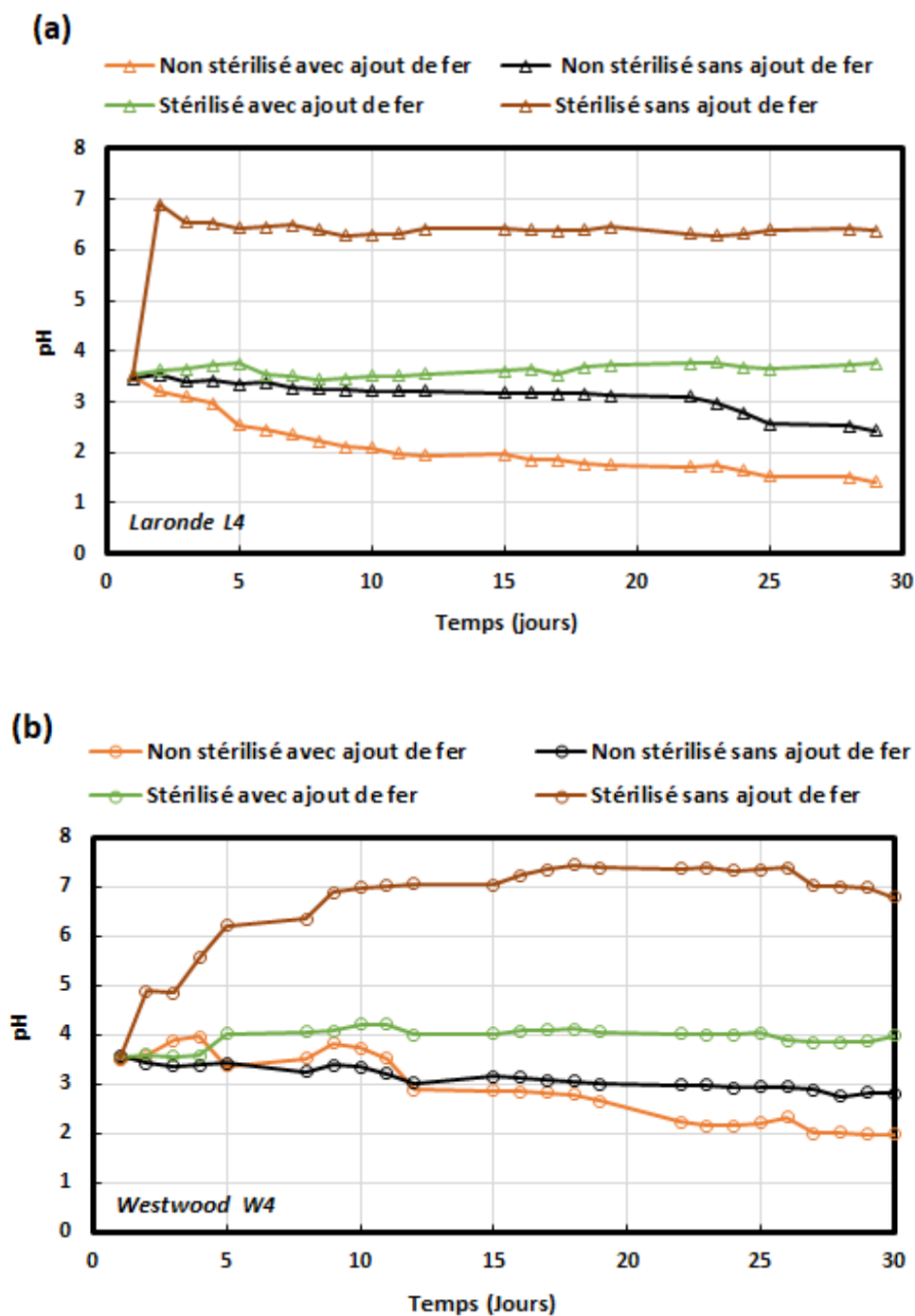


Figure 5.10 Évaluation de l'activité des bactéries ferroxidantes acidophiles au démontage de (W4-L4 : essais cinétiques dans un milieu saturé avec du fer ferrique à pH acide). (a) pour les résidus Laronde (b) pour les résidus Westwood.

Au démontage de L4 et W4 (après les essais cinétiques), la figure 5.10 montre que pour l'échantillon Laronde stérilisé et sans ajout de fer, le pH a augmenté de 3,5 à une valeur de 7. On n'a pas une acidification du milieu par l'activité bactérienne car l'échantillon est stérilisé. Pour l'échantillon non stérilisé avec ajout de sulfate de fer, le pH est passé de 3,51 au début de l'essai à 1,35 à la fin de l'essai. La diminution du pH dans les échantillons stérilisés avec ajout de fer peut s'expliquer par une oxydation purement chimique de la pyrite. Pour un échantillon non stérilisé, sans ajout de fer, le pH initialement ajusté à 3,5 diminue progressivement pour arriver à 2,2. Cette acidification du milieu peut être expliquée par l'activité des bactéries ferrooxydantes acidophiles qui est beaucoup plus importante dans L4 car la quantité d'acide libérée est plus importante. Alors que pour le résidu W4 de Westwood, l'oxydation est particulièrement présente lorsque le substrat à base de fer est ajouté. L'oxydation chimique était présente dans les deux cas. Peut-être que les conditions lors des essais cinétiques par le fer ferrique à pH acide ont favorisé le développement de ces populations bactériennes. Plusieurs études (Jafari et al., 2017 ; Banza et al., 2018) ont démontré la présence de ces bactéries dans ces conditions de pH et de concentration en fer, notamment *Leptospirillum ferrooxidans* et *Acidithiobacillus ferrooxidans*, qui sont des bactéries oxydant le fer dans des conditions très acides. Les ferrooxydantes acidophiles, ne se développent que dans des milieux riches en fer et à un pH très acide, inférieur à 1, durant la lixiviation des sulfures (Jafari et al., 2017). Après les essais cinétiques par le fer ferrique en milieu acide, on met clairement en évidence la présence de bactéries ferrooxydantes acidophiles pour les résidus Laronde et Westwood. L'activité bactérienne des ferrooxydantes acidophiles est plus importante pour les résidus Laronde.

5.4 Évaluation de l'activité des bactéries sulfooxydantes acidophiles

Les résultats de l'évaluation des bactéries sulfooxydantes acidophiles au temps initial (W0-L0) avant le test cinétique montrent la présence de ce groupe de micro-organismes surtout pour les résidus Westwood. En effet, des milieux de cultures spécifiques ont étéensemencés et incubés (Voir Annexes J). Une observation via le microscope électronique à balayage a démontré la présence des bacilles dans le milieu (Figure 5.11).

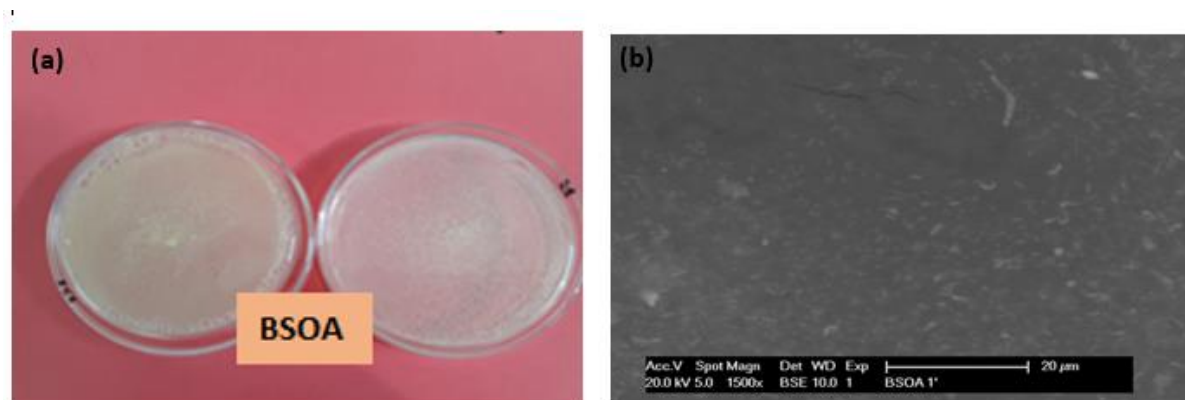


Figure 5.11 (a) Les colonies des bactéries sulfooxydantes acidophiles des résidus Westwood avant les essais cinétiques (b) observation des colonies via le microscope électronique à balayage MEB.

L'évaluation de l'activité des bactéries sulphooxydantes acidophiles au moment du démontage de (W4-L4 : essais cinétiques dans un milieu saturé avec du fer ferrique à pH acide) pour les résidus Laronde et pour les résidus Westwood est présentée dans la figure 5.12.

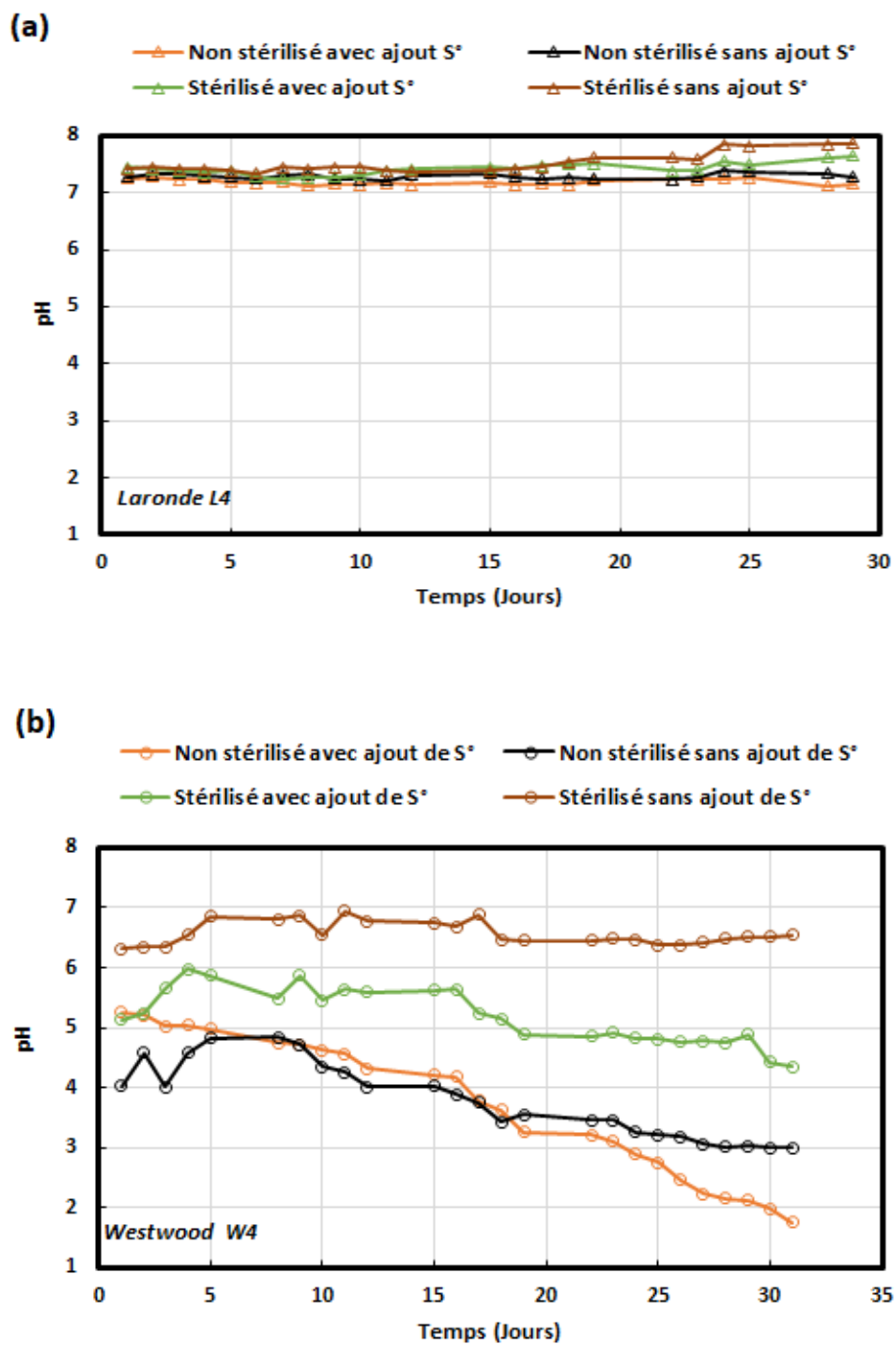


Figure 5.12 Évaluation de l'activité des bactéries sulfoxydantes acidophiles au moment du démontage de (W4-L4 : essais cinétiques dans un milieu saturé avec du fer ferrique à pH acide). (a) pour les résidus Laronde (b) pour les résidus Westwood.

Pour l'évaluation de l'activité des bactéries sulfoxydantes acidophiles au niveau des résidus Laronde, les essais ne montrent pas de variation significative des valeurs de pH pour les milieux sans ajout de soufre élémentaire en début d'essai. Ceci peut s'expliquer par la faible activité de cette population bactérienne. Cependant, les résultats de l'évaluation des bactéries sulfoxydantes acidophiles au démontage de la cellule W4 montrent une variation significative des valeurs de pH. Pour le milieu non stérilisé avec ajout de S° et sans ajout de S°, le pH décroît de 3,49 au début de l'essai à 2,99 et 1,75 respectivement à la fin de l'essai. Cette diminution du pH peut s'expliquer par la présence d'une activité bactérienne. Après les essais cinétiques par le fer ferrique en milieu acide, on met clairement en évidence la présence de bactéries sulfoxydantes acidophiles pour les résidus Westwood, mais une inhibition totale de l'activité bactérienne pour les résidus Laronde.

L'étude microbiologique réalisée pour ces deux résidus, Laronde et Westwood nous a montré qu'après l'essai cinétique par le fer ferrique à pH acide, l'activité bactérienne des ferroxydantes acidophiles est plus importante pour les résidus Laronde alors que l'activité des sulfoxydantes acidophiles est observée dans les résidus Westwood.

Plusieurs genre de bactéries sulfo-oxydantes (BSO) peuvent intervenir dans l'oxydation des sulfures. Le genre de BSO le plus connu est le genre *Thiobacillus* (Soupramanien, 2012 ; Peu et al., 2012). L'oxydation peut avoir lieu dans des conditions de pH qui varient (entre 1 et 8), incluant des *Thiobacillus acidophiles* tel que *Acidithiobacillus thiooxidans* (Aroca et al., 2007) ou neutrophiles (*T. thioparus*, *T. denitrificans* et *T. novellus*).

5.5 Évaluation de l'activité des bactéries sulfoxydantes neutrophiles

Les résultats de l'évaluation des bactéries sulfoxydantes neutrophiles au temps initial (W0-L0) avant le test cinétique, montrent l'absence totale de ce groupe de micro-organismes pour les deux résidus Laronde et Westwood (figure 5.13). En effet, des milieux de cultures spécifiques ont étéensemencés et incubés à plusieurs reprises (Voir Annexe J).

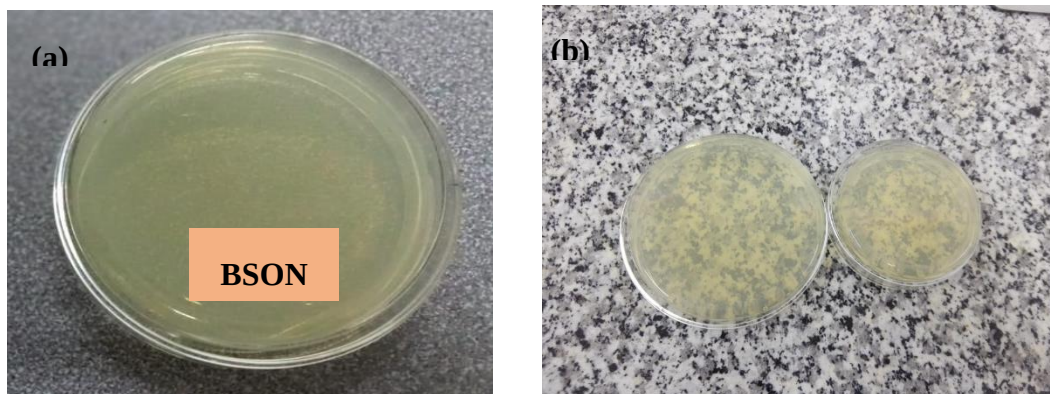


Figure 5.13 (a) Les milieux de cultures spécifiques pour les bactéries sulfooxydantes neutrophiles ensemencés par les résidus Laronde avant les essais cinétiques (b) Les milieux de cultures spécifiques pour les bactéries sulfooxydantes neutrophiles ensemencés par les résidus Westwood avant les essais cinétiques.

Au démontage de L4 et W4, les résultats de l'évaluation des bactéries sulfooxydantes neutrophiles montrent que, pour les résidus Laronde, en milieu de culture sans soufre, on n'observe pas d'activité bactérienne. Le pH ajusté à 7 au début des essais est resté pratiquement stable tout au long de l'essai (35 jours) pour l'échantillon et son témoin. Le même comportement a été observé pour les résidus Westwood.

Ces bactéries sulfooxydantes neutrophiles (BSON) sont des bactéries chimiolithotrophes (Waksman et Joffe, 1922 ; House et al., 2014) et ils ont été identifiées dans divers rejets miniers (Yang et al., 2019). Ils obtiennent l'énergie nécessaire à leur croissance en oxydant les composés soufrés (sulfure d'hydrogène [H_2S], soufre élémentaire [S^0], thiosulfate [$\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$]) et produisent de l'acide sulfurique qui acidifie le milieu (Vincke et al., 2001, Okabe et al., 2007, House et al., 2014). Ainsi, l'activité bactérienne se traduira essentiellement par une baisse du pH. Les états d'oxydation du soufre dépendent également du pH local et de l'activité des micro-organismes oxydant le soufre (House et al., 2014). Dans la présente étude, les résultats de l'évaluation des bactéries sulfooxydantes neutrophiles avant et après les essais cinétiques montrent que, pour les deux résidus Laronde et Westwood en milieu de culture avec ou sans soufre élémentaire, aucune activité n'est observée. Le pH ajusté à 7 au début des essais est resté pratiquement inchangé jusqu'à la fin des essais pour l'échantillon et son témoin.

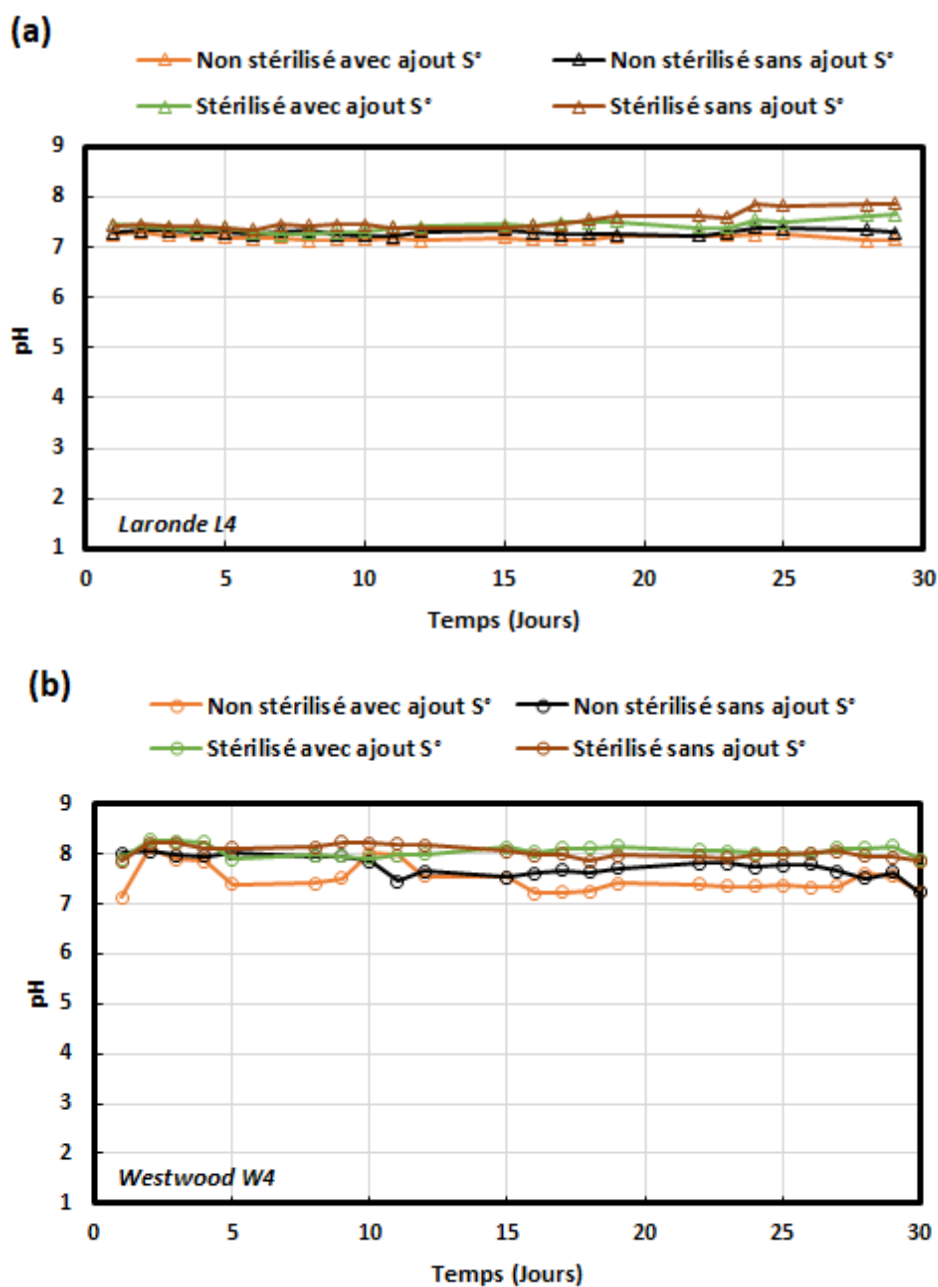


Figure 5.14 Évaluation de l'activité des bactéries sulphooxidantes neutrophiles au moment de démontage de (W4-L4 : essais cinétiques dans un milieu saturé avec du fer ferrique à pH acide). (a) pour les résidus Laronde (b) pour les résidus Westwood.

5.6 Implications pratiques pour le contrôle de la génération de DMA dans les fosses remblayées

Dans le chapitre 4, il a été démontré que durant les essais en milieu saturé, la qualité de l'eau a été significativement améliorée. Par exemple, les quantités de sulfates rejetées étaient très limitées par rapport aux conditions non saturées pour les trois résidus. Le pH est resté généralement constant et proche de la neutralité lors des tests pour les trois matériaux. Ces résultats ont confirmé que le maintien des résidus à un degré de saturation élevé peut contribuer à contrôler la génération de DMA (Awoh, 2012 ; Ethier, 2018 ; Demers, 2008).

Notamment, le risque d'oxydation indirecte via le fer ferrique peut être identifié durant le remplissage a posteriori d'une fosse en raison de la pré-oxydation des rejets (déposés temporairement en surface et laissés exposés à l'air) et aussi, dans certains cas, par les murs de la fosse préoxydés (Davis et Ashenberg, 1989; Blowes, 2003; Gammons, 2009). La génération d'acide pourrait alors être accélérée via le fer ferrique (oxydation indirecte).

Sachant que la production du DMA par les sulfures métalliques est un processus complexe et une suite de réactions chimiques (Ritchie 1994, 2003; Lefebvre et al., 2001a), ce processus peut être décomposé en trois phases (Kleinmann et al., 1981; Nordstrom et al., 2011 b). Dans une première phase, l'oxydation directe de la pyrite par l'oxygène domine et on note une baisse progressive du pH due à la libération en solution d'ions H^+ (l'oxydation directe de 1 mole de FeS_2 provoque la formation de 2 moles de H^+ ou 1 mole d'acide sulfurique; Blowes et al., 2003). Dans une deuxième étape, le fer ferreux libéré est oxydé en fer ferrique. Il y a alors précipitation des oxyhydroxydes comme la ferrihydrite, un hydroxyde de fer ferrique $Fe(OH)_3$, ce qui contribue à acidifier davantage le milieu. Pour des pH inférieurs à 2,5, le fer ferrique reste en solution et devient un agent oxydant pouvant oxyder la pyrite. Dans ce contexte, 1 mole de FeS_2 provoque la formation de 16 moles de H^+ ou 8 moles d'acide sulfurique, soit beaucoup plus d'acidité (Blowes et al., 2014). La réaction d'oxydation directe devient beaucoup moins rapide. La formation d'eaux acides s'accélère et des pH extrêmement faibles peuvent être atteints (Rohwerder et al., 2003; Lindsay et al., 2015).

Arrivant à ces conditions de pH acide de près de 1, le Fe^{3+} se libère à partir des oxyhydroxydes précipités dans le mur de la fosse et dans les résidus. Donc, l'eau souterraine qui traverse la fosse se charge en Fe^{3+} . Par exemple, les profils verticaux montrant les variations avec la profondeur de la concentration en fer de janvier 2006 à novembre 2006, dans le lac de mine d'Aznalcollar,

montrent que les concentrations en fer au cours d'une même année peuvent atteindre 1500 mg/L (Santofimia et al., 2007).

Afin d'évaluer l'ampleur et l'influence des eaux acides contaminées par différentes concentrations du fer ferrique sur la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans une fosse, une extrapolation de ces données expérimentales à plus grande échelle en appliquant les débits hydrogéologiques réels des fosses à ciel ouvert (1000 ; 10 000 ; 20 000 ; 30 000 ; 40 000 ; 50 000 ; 60 000 ; 70 000 ; 80 000 et 90 000) m³/an a été réalisée (Figure 5.13.a.b). Ces valeurs ont été choisies en se basant sur les valeurs maximales et minimales des débits qui traversent les 12 études de cas de fosses qui étaient remblayées par les rejets miniers dans divers endroits du monde entier (MEND, 2015).

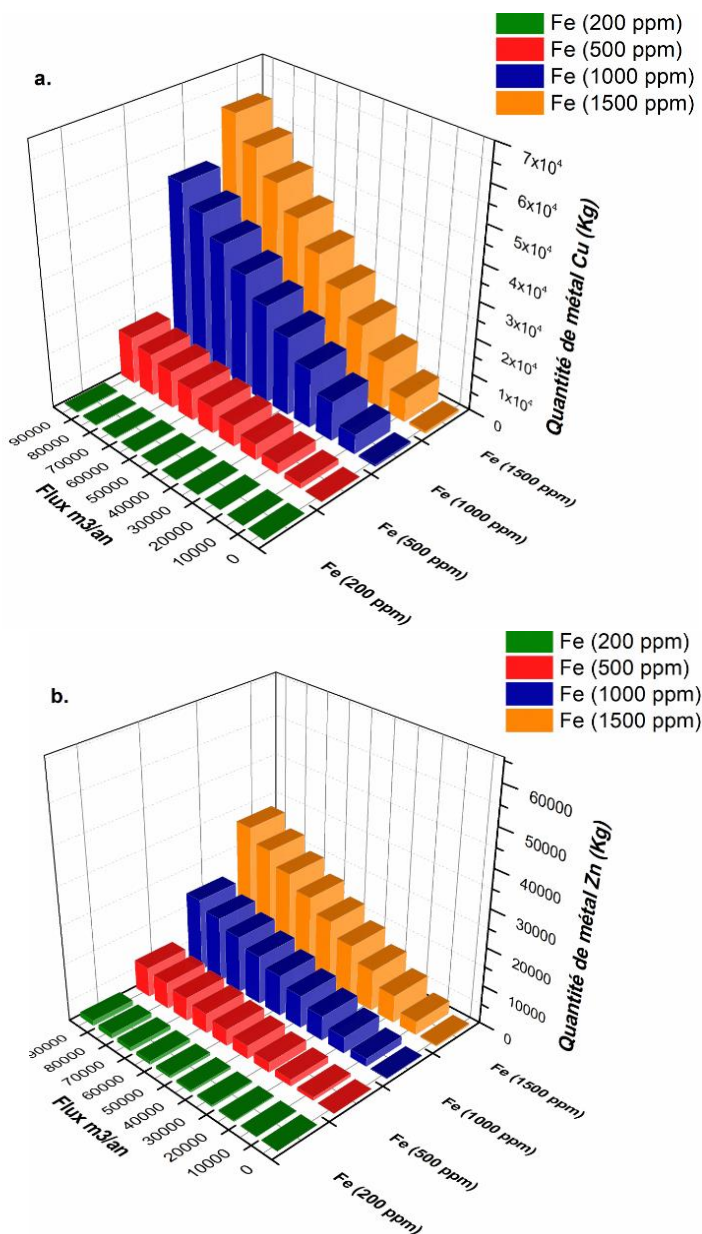


Figure 5.15 Évolution des métaux libérés en fonction de la concentration en fer ferrique (a) Extrapolation à plus grande échelle pour le cuivre (b) Extrapolation à plus grande échelle pour le Zinc.

Par exemple, pour une concentration en fer ferrique Fe^{3+} de 200 mg/L, la quantité de cuivre rejetée par an peut varier de 3,5 kg/an à 315 kg/an pour des débits hydrauliques qui traversent une fosse respectivement de 1000 m^3/an et 90 000 m^3/an . Cette quantité de métaux sera libérée à ce rythme si du fer ferrique comme oxydant est présent et maintenu à la même concentration dans le milieu et jusqu'à épuisement des résidus. Pour le même débit hydrologique et les mêmes résidus, la

quantité de zinc rejetée était de 15kg/an pour une fosse avec un débit hydrogéologique de 1000 m³/an et de 1350kg/an pour un débit hydrogéologique de 90 000 m³/an. Effectivement, les quantités de cuivre et de zinc libérées dépendent de la concentration de fer ferrique dans le milieu.

Les résultats obtenus à partir de tests cinétiques en milieu saturé à pH acide indiquent que la quantité de fer ferreux et de métaux libérés lors de l'oxydation à pH acide dépend de la quantité d'agent oxydant. La concentration de Fe(III) en solution a un effet sur le taux d'oxydation des sulfures (Mylona, Xenidis et al., 2000 ; Blowes et al., 2014). L'oxydation des sulfures par le Fe³⁺ a également été observée à pH neutre (Evangelou, et Zhang, 1995 ; Boon, 2001). L'O₂ dissous reste cependant nécessaire pour maintenir la réaction d'oxydation indirecte en apportant suffisamment de Fe³⁺ au système. Certains auteurs estiment que la réaction d'oxydation indirecte est lente et négligeable lorsque les valeurs de pH dépassent 3-4, car Fe³⁺ est essentiellement sous forme de précipité (hydroxydes oxyhydroxydes; Holmes et al., 2000). Le résidu le plus réactif est le synthétique, suivis de Laronde, puis de Westwood. La production de sulfate et de fer ferreux lors de l'oxydation des résidus est contrôlée par l'oxydation des sulfures, principalement la pyrite.

Les résultats du chapitre 4 et 5 ont permis de déterminer l'influence de l'état de saturation du milieu (saturé ou insaturé) ainsi que l'effet du pH (Neutre ou acide) et de la composition minéralogique (teneur en pyrite) sur la réactivité des résidus. L'étude de la biogéochimie (les populations microbiennes) de la DMA est importante en raison de l'impact qu'elle a sur l'évaluation et la compréhension du processus d'oxydation des résidus miniers (Edwards et al., 2000).

D'après ces résultats, l'optimisation de la mise en place des rejets lors de remplissage des fosses afin d'assurer leurs stabilités physique et géochimique est nécessaire. Le développement de nouvelles techniques de déposition (par exemple : codisposition des résidus et stériles miniers, déposition séquentielle) des rejets dans les fosses pourra permettre de limiter la génération de DMA et la contamination du milieu environnant.

CHAPITRE 6 CODISPOSITION

L'objectif principal de ce chapitre était d'évaluer expérimentalement et numériquement le rôle d'inclusions de roches stériles dans le contrôle des flux d'eau et d'oxygène sur la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans les fosses. Deux essais cinétiques en colonne ont été réalisés avec deux résidus miniers (Westwood et Laronde) parcourus en leur centre par une colonne de sable géochimiquement inerte. Différents flux du bas vers le haut de la colonne ont été imposés au moyen de différents gradients hydrauliques ($i=0,1$, $i=0,2$, $i=0,4$ et $i=0,5$) correspondant à des débits de 6,15 litre/jour, 12,6 litre/jour, 23,6 litre/jour et 25,1 litre/jour, respectivement, pour déterminer l'effet des gradients hydrauliques sur l'oxydation, la libération de contaminants et la stabilité géochimique des résidus. Les propriétés hydrogéotechniques et minéralogiques des deux résidus et du sable ainsi que le montage des essais cinétiques ont été présentés en détail au (chapitre 3.2). La qualité de l'eau (y compris le pH, le POR, la conductivité électrique, les concentrations de sulfates et d'oxygène) a été suivie quotidiennement (section 6.1). Les essais en colonne de laboratoire ont été simulés numériquement à l'aide du modèle de transport réactif et d'écoulement MIN3P (Mayer et al., 2002 ; section 3.5). Une fois calibrées, les simulations numériques ont été extrapolées afin d'étudier l'effet de la largeur d'inclusion, du gradient hydraulique et de la composition minéralogique des résidus sur la génération de DMA.

6.1 Géochimie des essais cinétiques en présence d'inclusions de sable inerte

L'oxydation des sulfures a été ici suivie en mesurant l'évolution du pH, du POR, de la conductivité électrique, ainsi que des concentrations des sulfates et des métalloïdes dans le lixiviat pour les deux résidus Laronde et Westwood. Les concentrations en oxygène dans la colonne à différentes élévations (0 cm, 20 cm, 40 cm et 60 cm) en fonction du temps ont aussi été mesurées.

6.1.1 Variations du pH et du POR

L'évolution du pH et du POR en fonction du temps pour les résidus Laronde et Westwood, en conditions saturées et en présence d'inclusion du sable lors des essais cinétiques est présentée dans la figure 6.1.

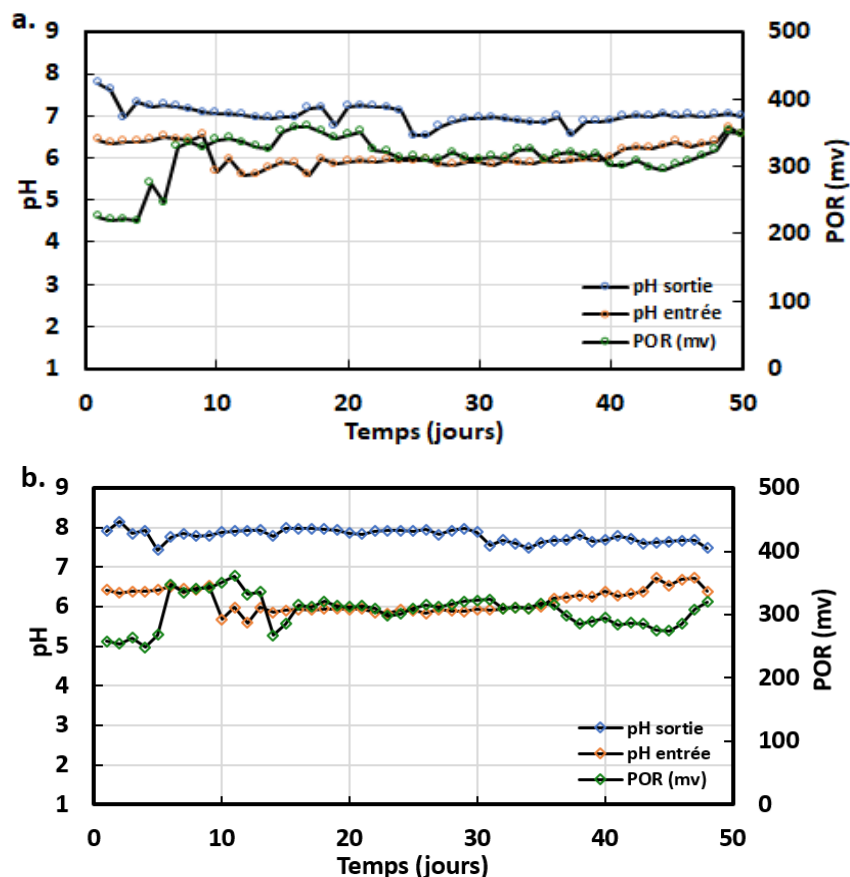


Figure 6.1 Évolution du pH et du (POR) en fonction du temps pour les résidus Laronde (a) et Westwood (b), en conditions saturées et en présence d'inclusion du sable lors des essais cinétiques.

Initialement, la valeur moyenne de pH dans la solution d'entrée pour les des deux cellules était de l'ordre de $\text{pH} = 6,2$. Par exemple pour les résidus Laronde, le pH est demeuré relativement constant et autour de 7 pendant l'essai (Figure 6.1 a), c'est-à-dire plus élevé que dans l'eau d'entrée ($\text{pH} = 6,2$). Le POR était d'environ 200 mV au début de l'essai (Figure 6.1 b) puis évolue progressivement pour atteindre des valeurs de l'ordre de 350 mV à la fin de l'essai, ce qui indiquait une certaine oxydation des sulfures.

Le comportement des résidus Westwood était similaire (Figure 6.1 b). Le pH dans la solution de sortie est également resté relativement constant pendant les essais, mais plus basique que les résidus Laronde ($\text{pH} = 8$), ce qui peut être expliqué par la présence des carbonates qui sont confirmés par l'analyse DRX et MEB (Tableau 3.4 ; Section 3.2.3). Le POR oscillait entre 250 mV et 300 mV et a augmenté pour atteindre des valeurs 310 mV à la fin de l'essai. Ces valeurs indiquaient la présence d'un milieu légèrement oxydant (Figures 6.1b).

6.1.2 Variations des sulfates et de la conductivité électrique

Le gradient hydraulique appliqué à l'entrée des colonnes a été modifié lors des essais en conditions saturées : initialement de $i = 0,1$ puis $i = 0,2$, $i = 0,4$, $i = 0,5$ avant finalement d'être réduit à nouveau jusqu'à $i = 0,1$ pour s'assurer que le phénomène observé est réversible. L'évolution des concentrations de sulfates et de la conductivité électrique en fonction du temps et du gradient hydraulique appliqué dans les résidus Laronde et les résidus Westwood est présentée dans la figure 6.2.

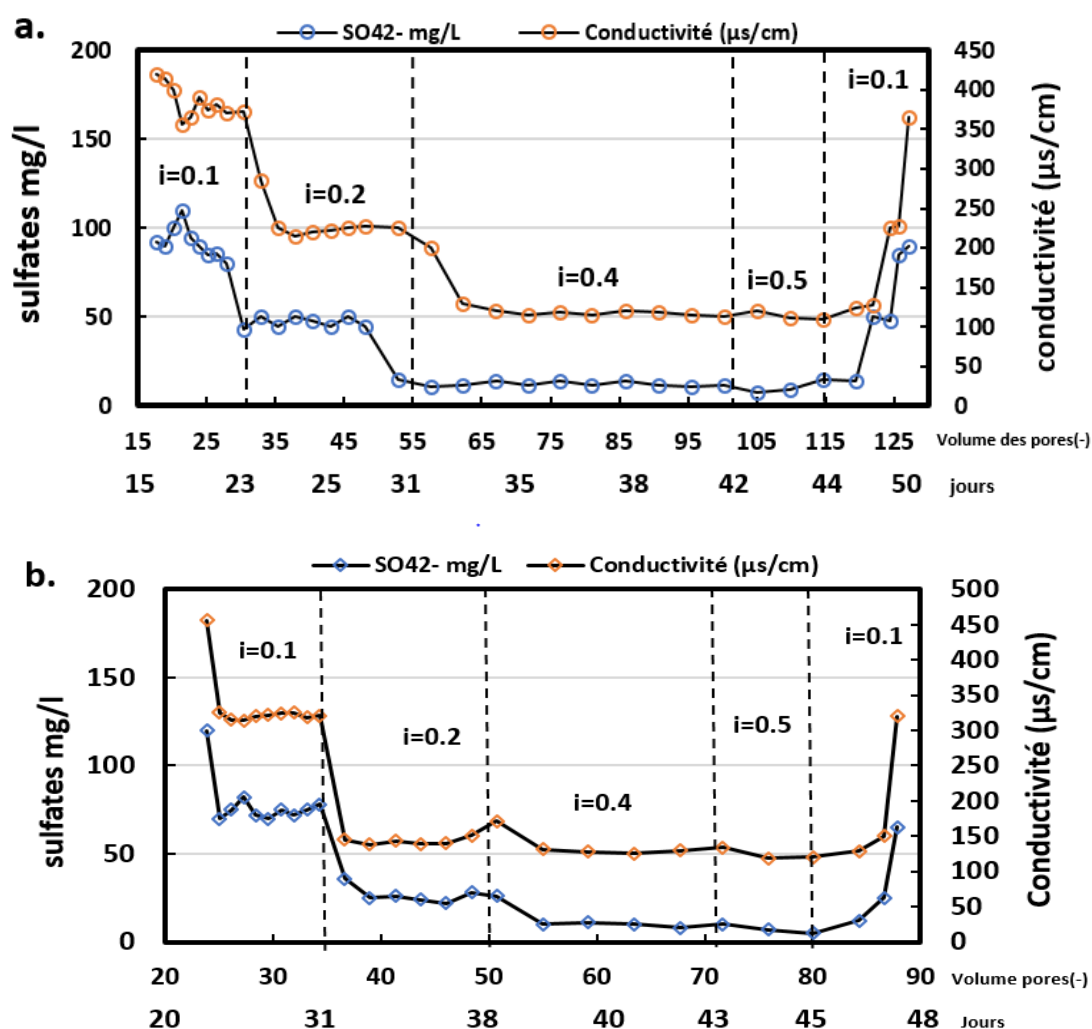


Figure 6.2 Évolution des concentrations de sulfates et de la conductivité électrique en fonction du temps et du gradient hydraulique appliqué dans (a) les résidus Laronde (b) les résidus Westwood. Les résultats sont présentés à partir du volume de pore 15 et 20 pour se concentrer sur les résultats

représentatifs des réactions se produisant dans les cellules, et non affectés par la qualité initiale de l'eau interstitielle.

Les concentrations de sulfates mesurées dans les lixiviats étaient fortement corrélées à la conductivité électrique du milieu et au gradient appliqué. Par exemple, pour les résidus Laronde, la concentration moyenne en sulfate était d'environ 92 mg/L pour un gradient hydraulique $i = 0,1$ et une conductivité électrique de 385 $\mu\text{S}/\text{cm}$, d'environ 47 mg/L pour un gradient hydraulique $i = 0,2$ et une conductivité électrique de 230 $\mu\text{S}/\text{cm}$, et d'environ 12 mg/L pour un gradient hydraulique $i = 0,4$ et une conductivité électrique de 126 $\mu\text{S}/\text{cm}$, et d'environ 8,5 mg/L pour un gradient hydraulique $i = 0,5$ et une conductivité électrique de 110 $\mu\text{S}/\text{cm}$, (Figure 6.2 a). Notamment la concentration moyenne en sulfate était d'environ 85 mg/L et une conductivité électrique de 368 $\mu\text{S}/\text{cm}$. Un comportement similaire a été observé pour les résidus Westwood mais avec des plus faibles valeurs de sulfate. La composition minéralogique semblait avoir un effet sur la production de sulfate (Figures 6.2 b).

La concentration en sulfates dans le lixiviat était donc fonction du gradient hydraulique appliqué et aussi de la teneur en sulfure. La conductivité électrique était principalement contrôlée par les concentrations de sulfates pour les deux résidus.

6.1.3 Variations de la concentration d'oxygène dissous

Les variations des concentrations en oxygène dissout sont montrées à la figure 6.3. La concentration en oxygène de l'eau d'entrée était initialement de $95\% \pm 5\%$ (8,3 mg/L) pour les résidus Laronde (Courbe bleue, 0 cm) et les résidus Westwood (Courbe orange, 0 cm) le long de l'essai. Le maintien de la concentration en oxygène a nécessité des ajustements réguliers (section 3.3.1) ce qui explique les faibles variations observées. Cependant, les concentrations d'oxygène sont toujours restées proches ($\pm 5\%$) de la concentration cible.

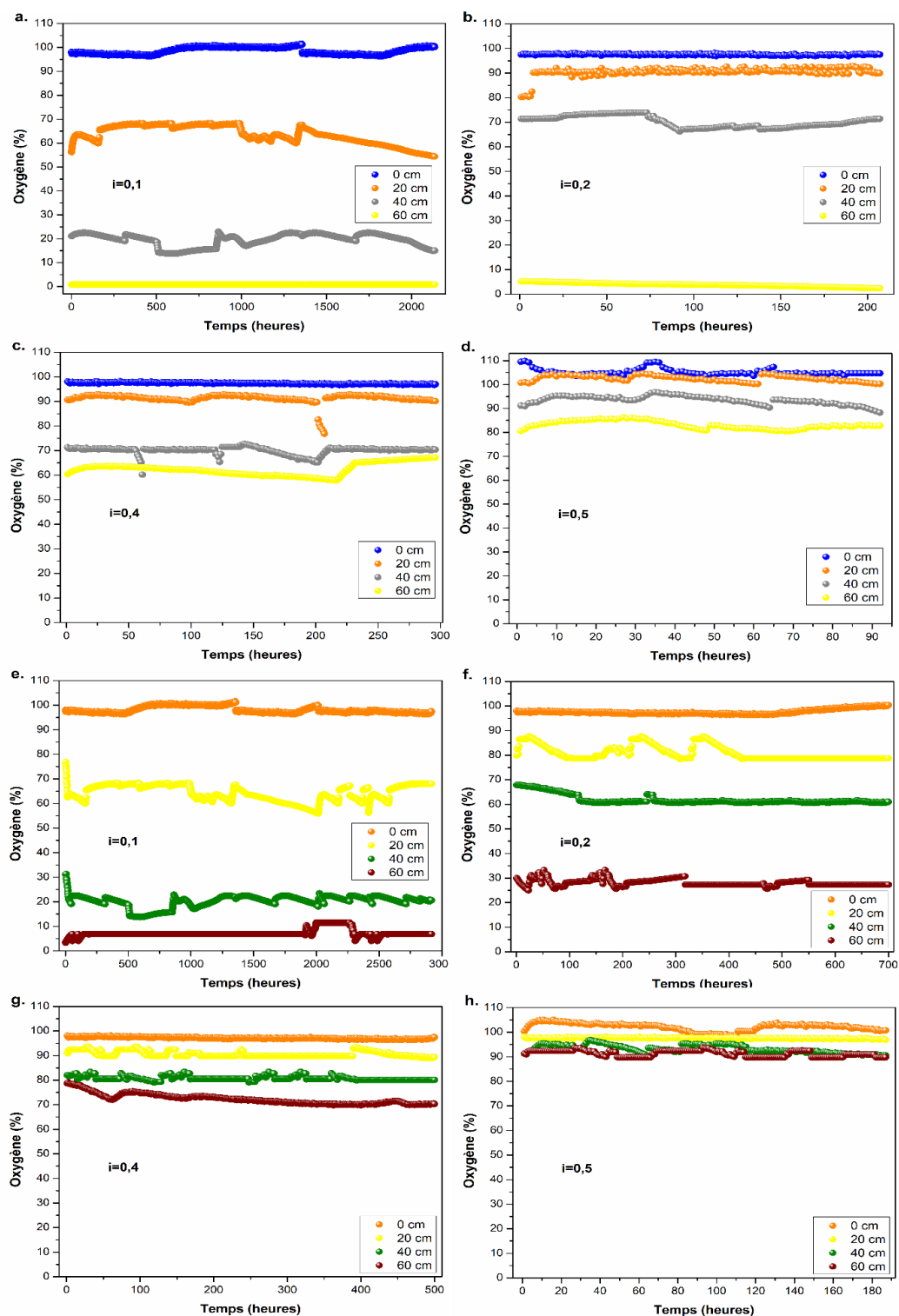


Figure 6.3 Évolution de la concentration en oxygène dissous dans l'eau d'entrée et à différentes élévations de colonne en fonction du temps et en fonction des gradients hydrauliques appliqués ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus Laronde (a.b.c.d) et Westwood (e.f.g.h).

Les concentrations en oxygène mesurées aux différentes hauteurs dans la colonne varient peu en fonction du temps mais diminuent avec l'élévation de la colonne, montrant une consommation progressive par les minéraux sulfurés. Avec un faible gradient hydraulique de 0,1, le débit d'eau est lent dans la colonne permettant une consommation complète d'oxygène au sommet de la colonne (courbe jaune) à une altitude de 60 cm, ($O_2 = 0\%$). Par exemple, à 40 cm de hauteur, la concentration en oxygène est d'environ 20% (courbe grise), 60% à 20 cm de hauteur (courbe orange) et 100% à $z = 0$ m. La concentration en oxygène dans la colonne variait également avec le gradient hydraulique et pour un même emplacement, plus le gradient était important, plus la concentration en oxygène enregistrée était grande. Par exemple avec un gradient hydraulique de 0,2, les concentrations d'oxygène mesurées à 60 cm, 40 cm et 20 cm d'élévation étaient 6%, 70% et 90% respectivement. Pour un gradient hydraulique de 0,4, les concentrations en oxygène mesurées à 60 cm, 40 cm et 20 cm d'élévation étaient 60%, 76% et 95% respectivement. En d'autres termes, la diffusion de l'oxygène est relativement lente pour un débit d'eau plus rapide. Le même comportement a été observé pour les résidus de Westwood, mais l'oxygène n'est pas consommé à la même vitesse que pour les résidus Laronde. Ceci peut s'expliquer par le fait que les résidus Westwood sont moins réactifs que les résidus Laronde, donc moins consommateurs d'oxygène.

6.1.4 Variations de la concentration en métaux et métalloïdes

La génération de Ca, Mg et Mn durant les essais cinétiques est généralement considérée comme indicateur de la dissolution des carbonates (Benzaazoua et al., 2004c). Les concentrations mesurées en solution pour le calcium, le magnésium et le manganèse diminuaient avec l'augmentation du gradient hydraulique appliqué et étaient plus importantes pour les résidus de Westwood que pour Laronde. L'évolution des concentrations moyennes de métaux dans les lixiviats durant les essais cinétiques (en mg/L) en fonction du temps et en fonction des gradients hydrauliques appliqués ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus Laronde (a) et Westwood (b) est présentée dans la figure 6.4.

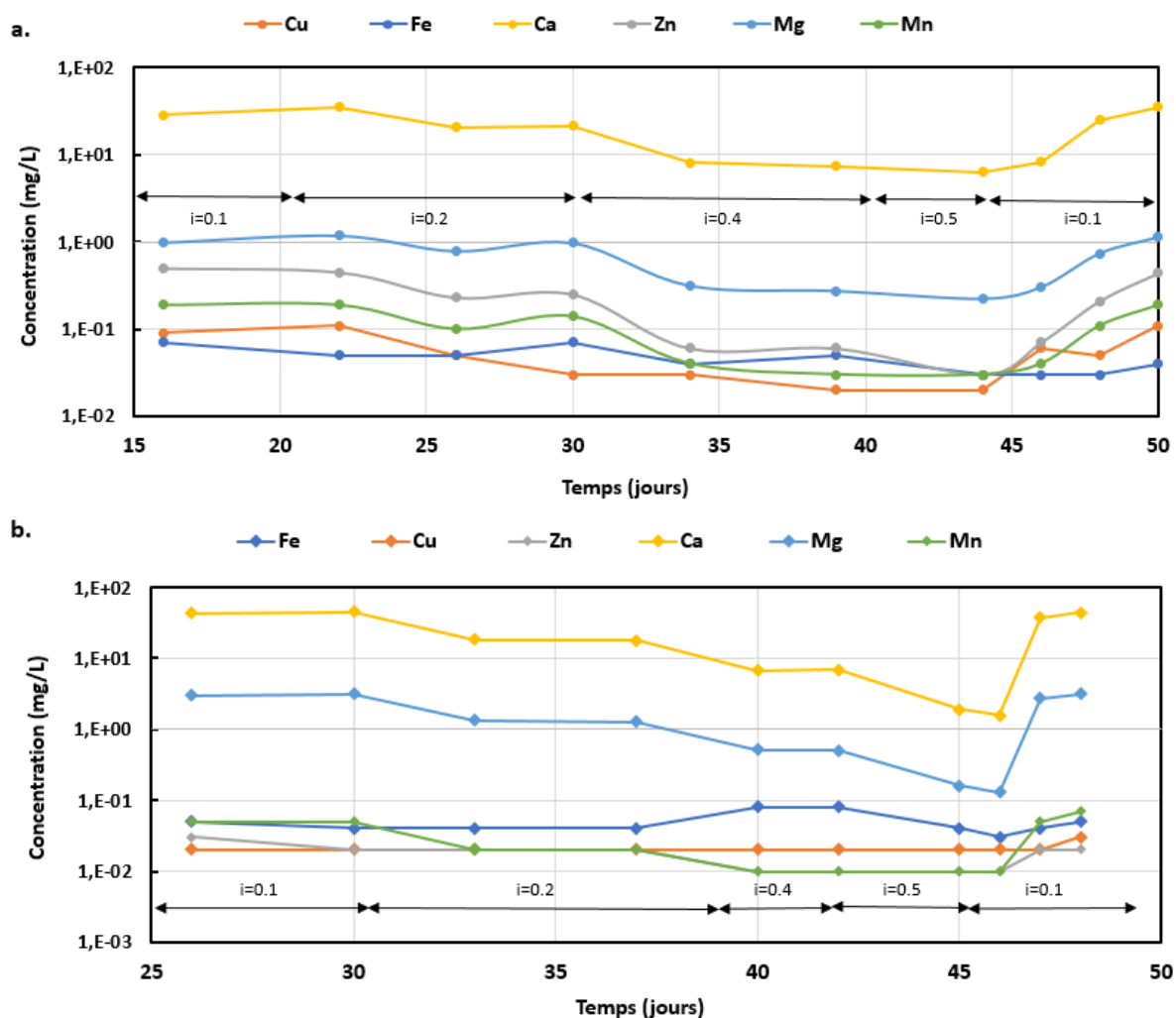


Figure 6.4 Évolution des concentrations moyennes de métaux dans les lixiviats durant les essais cinétiques (en mg/L) en fonction du temps et en fonction des gradients hydrauliques appliqués ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus Laronde (a) et Westwood (b).

Par exemple, pour les résidus Laronde, la concentration de calcium, était d'environ 31,8 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,1, d'environ 21 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,2, de 7,75 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,4 et de 6,2 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,5 pour augmenter à nouveau à une concentration de 35 mg/L à la fin du test à un gradient hydraulique de 0,1 (Figure 6.4a). Le même comportement a été observé pour le Mg et les concentrations enregistrées aux gradients hydrauliques 0,1, 0,2, 0,4, 0,5 et 0,1 sont respectivement de 1,08 mg/L, de 0,88 mg/L, de 0,29 mg/L de 0,22 mg/L et de 1,14 mg/L. Pour les résidus Westwood, la

concentration de calcium, était d'environ 45 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,1, d'environ 18 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,2, de 7 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,4 et de 2 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,5 pour augmenter à nouveau à une concentration de 44 mg/L à la fin du test à un gradient hydraulique de 0,1 (Figure 6.4b). Le même comportement a été observé pour le Mg et les concentrations enregistrées aux gradients hydrauliques 0,1, 0,2, 0,4, 0,5 et 0,1 sont respectivement de 3,07 mg/L, de 1,3 mg/L, de 0,5 mg/L de 0,2 mg/L et de 3,2 mg/L. Effectivement, les résultats de l'analyse minéralogique (section 3.2.3) ont montré la présence des carbonates dans les résidus Westwood principalement de la dolomite (2,85%) et de la calcite (2,71%). Pour les résidus Laronde, la caractérisation MEB-Zeiss a détecté des carbonates sous forme de calcite (0,3%).

La concentration en Ca, Mg et Mn dans le lixiviat était donc fonction du gradient hydraulique appliqué et aussi de la teneur en sulfure.

Notamment, l'évolution des valeurs de pH à la solution de sortie pour les résidus Westwood est légèrement élevée par rapport aux résidus Laronde. Aussi, les analyses de carbone total à la fin des essais ont d'ailleurs confirmé l'épuisement partiel du carbone dans les cellules pour atteindre des concentrations de 0,01 % pour Laronde et 0,38% pour Westwood (alors que la teneur initiale était de 0,06% et 0,41% pour Laronde et Westwood respectivement). L'origine suspectée des concentrations de Ca, Mg et Mn pour les deux résidus Laronde et Westwood peut être expliquée par le phénomène de la neutralisation dû à la dissolution des carbonates.

Pour les éléments Cu, Zn et Fe leurs concentrations mesurées en solution diminuaient avec l'augmentation du gradient hydraulique appliqué et aussi étaient inférieures aux limites de la directive 019 pour les deux résidus de Westwood et Laronde. Par exemple pour les résidus Laronde, la concentration moyenne de Cu^{2+} était d'environ 0,1 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,1, d'environ 0,04 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,2, de 0,03 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,4 et de 0,02 mg/L pour un gradient hydraulique de 0,5 pour augmenter à nouveau à une concentration de 0,11 mg/L à la fin de l'essai à un gradient hydraulique de 0,1 (Figure 6.4b). Le même comportement a été observé pour le Zn et les concentrations enregistrées aux gradients hydrauliques 0,1, 0,2, 0,4, 0,5 et 0,1 sont respectivement de 0,48 mg/L, de 0,24 mg/L, de 0,06 mg/L de 0,02 mg/L et de 0,11 mg/L.

La présence de ces éléments peut être expliquée par l'existence (Section 3; Figure 3.2) de certaines particules de chalcopryrite et sphalérite identifiées par analyse minéralogique automatisée. Il semble

également très peu probable que ces éléments proviennent de l'eau d'entrée (Section 3; Tableau 6.8). L'analyse de la qualité chimique de la solution d'entrée (eau distillée) utilisée dans les essais cinétiques pour les résidus Laronde et Westwood montre que la teneur en Cu <0.003 et le Zn <0.007 mg/L. Cependant, ces concentrations étaient très faibles et proches de la limite de détection. Ces résultats doivent cependant être considérés avec précaution en raison de la précision des analyses ICP-AES (précision relative de 5%, Foudhaili, 2019).

6.2 Calibration des résultats hydrogéologiques

La calibration des simulations numériques avec Min3P a été réalisée en se basant sur les méthodes de calibration courantes utilisées pour les modèles de transport réactif (Mayer et al., 2002 ; voir description à la section 3.5). La calibration a été réalisée dans un premier temps sur les paramètres hydrogéologiques afin de reproduire les écoulements et les débits mesurés dans les cellules au laboratoire en fonction du gradient hydraulique appliqué (Demers et al., 2013, Pabst et al., 2017; Kalonji et al., 2020). L'objectif de cette étape de calibration est de simuler le plus précisément possible le comportement enregistré lors d'essais expérimentaux et en donner une approximation acceptable (Jauregui et Silva, 2011).

Les débits mesurés et simulés pour différents gradients hydrauliques ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus Laronde et Westwood sont présentés dans la figure 6.5.

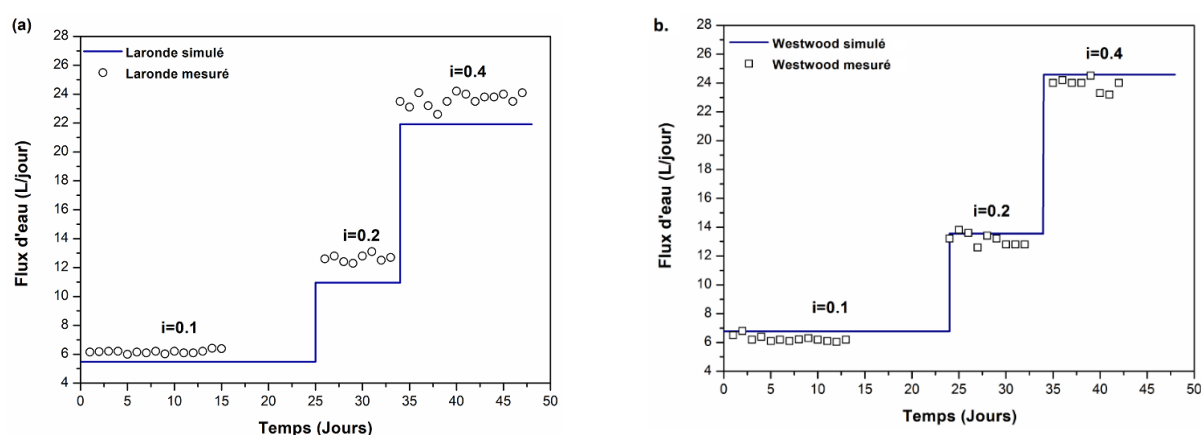


Figure 6.5 Débits mesurés (points noirs) et simulés (lignes bleues) pour différents gradients hydrauliques ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus (a) Laronde et (b) Westwood.

Le débit d'eau mesuré dans les deux colonnes (figure 6.5) était linéairement proportionnel au gradient appliqué. Pour les résidus Laronde, le débit d'eau mesuré et simulé pour un gradient hydraulique de 0,1 était de (6,17 L/jour et 5,48 L/jour respectivement), (12,65 L/jour et 11 L/jour respectivement) pour un gradient hydraulique de 0,2 et (3,64 L/jour et 22 L/jour respectivement) pour un gradient de 0,4. Le débit simulé était en bon accord avec les mesures en laboratoire. Pour les résidus de Westwood, le débit d'eau mesuré et simulé pour un gradient hydraulique de 0,1 était de (6,2 L/jour et 6,7 L/jour respectivement), (13,1 L/jour et 13,5 L/jour respectivement) pour un gradient hydraulique de 0,2 et (23,9 L/jour et 24,6 L/jour respectivement) pour un gradient de 0,4.

Le débit d'eau dans les colonnes était principalement contrôlé par l'inclusion de sable en raison du contraste significatif entre la conductivité hydraulique des résidus ($K_{sat} \text{ Laronde} = 4 \times 10^{-6}$, $K_{sat} \text{ Westwood} = 4,5 \times 10^{-6}$) et celle du sable ($K_{sat} \text{ sable} = 2,5 \times 10^{-2}$). Notamment, le calcul du débit volumique en se basant sur la loi de Darcy a permis de quantifier l'eau passant dans le sable et dans les résidus (99 % du flux d'eau qui traverse la fosse est dirigée vers l'inclusion ; Annexe M). L'inclusion de sable a donc contribué à créer un chemin d'écoulement préférentiel pour l'eau, réduisant ainsi considérablement le contact entre l'eau et les résidus. La conductivité hydraulique saturée utilisée dans le modèle pour les deux résidus miniers provient des mesures effectuées au laboratoire (test de perméabilité). La conductivité hydraulique saturée utilisée dans le modèle pour le sable provient de la calibration ($k_{sat} \text{ laboratoire} = 2,5 \times 10^{-02} / k_{sat} \text{ simulation} = 1,4 \times 10^{-02}$). Min3P semblait donc reproduire l'écoulement hydrogéologique dans les colonnes de manière satisfaisante pour les besoins de cette étude.

6.3 Calibration géochimique des simulations numériques

Une fois le modèle hydrogéologique validé, les paramètres minéralogiques et géochimiques ont été ajoutés (section 3.5.1). La calibration des paramètres géochimiques a été effectuée de manière itérative (plusieurs simulations ont été nécessaires pour obtenir les paramètres ajustés). La stœchiométrie des réactions et les constantes d'équilibre ($\log K_i^m$) utilisées dans les simulations ont été extraites des bases de données Min3P (Mayer et al., 2002; Tableau 6.1). Les fractions volumiques des résidus miniers utilisés dans la simulation sont présentées dans le (Tableau 6.2). Les formules du taux de réactions provenaient aussi de la base de données de Min3P et dépendaient de la loi de l'équilibre (Mayer et al., 2002; Tableau 6.3).

Tableau 6.1 Stœchiométries de réaction et constances d'équilibre ($\text{Log } K_i^m$) employées dans les simulations et tirées des bases de données de Min3P.

Minéraux	Stœchiométrie	$\text{Log } K_i^m$
Quartz	$\text{SiO}_{2(\text{amorphe})} + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow 3\text{H}_4\text{SiO}_4$	3,9
Pyrite	$\text{FeS}_2 + 7/2\text{O}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Fe}^{2+} + 2\text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}^+$	-215,3
Muscovite	$\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OH})_2 + 10\text{H}^+ \rightarrow \text{K}^+ + 3\text{Al}^{3+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_{4(\text{aq})}$	-12,99
Orthoclase	$(\text{K}, \text{Al})\text{Si}_3\text{O}_8 + 4\text{H}^+ + 4\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{K}^+ + \text{Al}^{3+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_{4(\text{aq})}$	-0,08b
Calcite	$\text{CaCO}_3 \rightarrow \text{Ca}^{2+} + \text{CO}_3^{2-}$	8,46
Chalcopyrite	$\text{CuFeS}_2 + 4\text{O}_{2(\text{aq})} \rightarrow \text{Cu}^{2+} + \text{Fe}^{2+} + 2\text{SO}_4^{2-}$	35,27
Paragonite	$\text{NaAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OH})_2 + 10\text{H}^+ \rightarrow \text{Na}^+ + 3\text{Al}^{3+} + 3\text{SiO}_2 + 6\text{H}_2\text{O}$	-17,52
Albite	$(\text{Na}, \text{Al})\text{Si}_3\text{O}_8 + 4\text{H}^+ + 4\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Na}^{2+} + \text{Al}^{3+} + 3\text{H}_4\text{SiO}_{4(\text{aq})}$	a
Dolomite	$\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2 \rightarrow \text{MgO} + \text{CaO} + 2\text{CO}_2$	4,5

^a dissolution irréversible

Les éléments chimiques de la phase aqueuse introduits dans les simulations étaient ceux mesurés en laboratoire, avec l'ajout d'autres éléments nécessaires aux réactions (par exemple CO_3^{2-} produit par la dissolution des carbonates, Cl^- qui permettait d'équilibrer les charges ioniques). Au total, 18 éléments sont inclus dans les simulations: $\text{O}_2(\text{aq})$, Fe^{2+} , SO_4^{2-} , H_4SiO_4 , K^+ , Al^{3+} , Fe^{3+} , CO_3^{2-} , HS^- , Na^+ , Mg^{2+} , Cl^- , H^+ , Ca^{2+} , Cu^{2+} , Mn^{2+} , Mn^{3+} . Deux couples redox $\text{Fe}^{2+} / \text{Fe}^{3+}$ et $\text{SO}_4^{2-} / \text{HS}^-$ ont également été simulés.

Les espèces secondaires ont été déterminées au moyen du code d'équilibre thermodynamique VMinteq. Min3P rejette les espèces présentes en trop faibles quantités, et les espèces finalement retenues étaient donc au nombre de 18 avec 9 espèces secondaires. Au total, 148 espèces ont été exclues par Min3P (Annexe N).

Pour les résidus Laronde, 4 minéraux ont été simulés, à savoir la pyrite, le quartz, la calcite et la muscovite. Pour les résidus Westwood, 5 minéraux ont été pris en considération, à savoir la pyrite, le quartz, la calcite, la muscovite et la dolomite. Le rutile, le corundum et la paragonite, également détectés au DRX dans les résidus Laronde, mais n'ont pas été pris en compte dans les simulations, d'une part parce que les fractions étaient faibles (rutile : 1,7%) et, d'autre part, parce que ces minéraux étaient absents la base de données de Min3P. Les minéraux non simulés ont été remplacés par du quartz afin de maintenir la porosité du milieu égale à celle mesurée dans les cellules. Les fractions solides des différents minéraux ont été calculées à partir des teneurs massiques mesurées par DRX, de leur densité dans la base de données de MIN3P et de la porosité du milieu. Les

résultats des calculs sont présentés dans le tableau 6.2. La calibration des taux de réaction des minéraux a commencé avec les taux de réaction disponibles dans la littérature, puis ces derniers ont été ajustés pour reproduire les résultats expérimentaux de laboratoire (Tableau 6.3). Le modèle du noyau réactif (Mayer et al., 2002), couramment utilisé dans la littérature pour simuler l'oxydation des sulfures (Pabst et al., 2017; Seigneur et al., 2021), n'a pas été utilisé ici. Deux types de mise à jour ont été utilisés : « constant » pour le quartz, la calcite, la dolomite et la muscovite, ou « deux tiers » pour la pyrite et la chalcopryrite. Un type de mise à jour "constant" signifie que la réactivité minérale reste constante au cours d'une simulation (Mayer, 2002). La spécification de type de mise à jour « deux tiers » implique qu'une relation de puissance deux tiers de la forme est utilisée pour mettre à jour la réactivité minérale (Mayer, 2002).

Tableau 6.2 Densités minérales et fractions volumiques des résidus miniers utilisés dans la simulation. Les fractions de volume minéral utilisées dans le modèle sont également présentées.

Minérale	Formule	Fraction massique XRD (%)	Densité (g/cm ³)	Fv model (cm ³ /cm ³)
Laronde				
Quartz	SiO ₂	59,6	2,65	0,4902
Calcite	CaCO ₃	1,1	2,71	0,0001
Pyrite	FeS ₂	18,0	5,02	0,0594
Chlorite	(Fe,Mg,Al) ₆ (Si,Al) ₄ O ₁₀ (OH) ₈	3,6	3,00	0,0000
Muscovite	KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀) (OH,F) ₂	3,4	2,82	0,0203
Orthoclase	KAlSi ₃ O ₈	10,6	2,56	0,0000
Paragonite	NaAl ₂ [(OH) ₂ AlSi ₃ O ₁₀]	0,0	2,78	0,0000
Albite	NaAlSi ₃ O ₈	4,6	2,60	0,0000
Total		100,0		0,57
Westwood				
Quartz	SiO ₂	44,9	2,65	0,4887
Pyrite	FeS ₂	4,3	5,02	0,0137
Chlorite	(Fe,Mg,Al) ₆ (Si,Al) ₄ O ₁₀ (OH) ₈	13,5	3,00	0,0000
Muscovite	KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀) (OH,F) ₂	1,2	2,82	0,0068
Albite	NaAlSi ₃ O ₈	16,0	2,60	0,0000
Chalcopryrite	CuFeS ₂	1,9	4,10	0,0074
Corundum	Al ₂ O ₃	10,5	4,02	0,0000
Rutile	TiO ₂	1,7	4,23	0,0000
Calcite	CaCO ₃	3,5	2,71	0,0209
Dolomite	CaMg(CO ₃) ₂	2,2	2,85	0,0125
Total		99,8	34,00	0,55
<i>Paramètres physiques utilisés dans la simulation des échantillons étudiés</i>				
		Laronde	Westwood	Sand
ϕ^a Porosité		0,43	0,45	0,32
Conductivité Hydraulique saturée (m/s)		2,0 x10 ⁻⁰⁶	4,0x10 ⁻⁰⁶	1,4 x10 ⁰²

Lors de la calibration géochimique des différentes concentrations d'oxygène à différentes profondeurs de la colonne, nous avons agi sur deux paramètres. «Effective rate constant » et « Dispersivity ». Les teneurs minéralogiques ne sont pas modifiées, mais le paramètre « Effective rate constant » a été changé plusieurs fois, notamment pour la pyrite. On a donné la priorité à la calibration de la pyrite avant celle de la chalcopryrite parce que, d'une part, c'était le minéral le plus abondant dans les résidus étudiés et aussi plus réactive que la chalcopryrite comme rapporté par Blowes et al. (2014), et d'autres part, lorsqu'on utilise des valeurs élevées, il y a une surestimation de la réactivité de la pyrite et une consommation rapide d'oxygène, ce qui ne correspondait pas aux valeurs mesurées en laboratoire. La valeur choisie de «Effective rate constant » de la pyrite lors des simulations était de $4 \times 10^{-07} \text{ mol/m}^3\text{s}$.

Les modèles ont été calibrés en ajustant dans un premier temps les concentrations d'oxygène à différentes élévations de la colonne et à différents gradients hydrauliques appliqués ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$), puis en visant à reproduire les concentrations des sulfates et des ions métalliques provenant de l'oxydation des sulfures. Les variations de pH ont été ajustées en calibrant les cinétiques de dissolution des carbonates.

Le taux de réaction de la calcite utilisé pour les résidus Westwood a été fixée à une valeur de $10^{-4} \text{ mol.L}^{-1} \text{ s}^{-1}$ qui était largement supérieur à celui utilisé pour les résidus Laronde $10^{-10} \text{ mol.L}^{-1} \text{ s}^{-1}$, pour la calibration du pH et du calcium. Pour les résidus Westwood, l'utilisation des deux carbonates (dolomite et calcite) avec les mêmes taux de réaction que Laronde, ne permettait pas de reproduire les variations de pH, de Ca et de Mg observées lors des essais au laboratoire. Par conséquent, la réactivité de la dolomite a été fixée à une valeur de $10^{-4} \text{ mol.L}^{-1} \text{ s}^{-1}$. La calibration des taux de réaction des minéraux a commencé avec les taux de réaction des études précédentes dans la littérature puis ces derniers ont été ajustés pour reproduire les résultats de laboratoire (Tableau 6.4). Le taux de réaction utilisé dans les simulations numériques de la présente étude était le taux de réaction effectif et qui a permis de simuler le plus fidèlement possible le comportement observé lors d'essais laboratoire.

Tableau 6.3 Expression des taux de réaction des minéraux et coefficients des taux de réaction utilisés dans les simulations numériques pour les résidus Laronde et Westwood.

Minérale	Expression du taux (100% O2)	K_k^{eff} Laronde	K_k^{eff} Westwood	Type
Pyrite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{Fe^{2+}\}\{SO_4^{2-}\}^{5.6}\{H^+\}^2\{H_2O\}^{-1}\{O_2(aq)\}^{-3.5}}{k_{i,eq,25}} \right\}$	4×10^{-7}	4×10^{-7}	Two thirds
Quartz	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{H_2O\}^{-2}\{H_4SiO_4\}}{k_{i,eq,25}} \right\}$	10^{-08}	10^{-08}	Constant
Calcite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{Ca^{2+}\}^2\{CO_3^{2-}\}^{0.8}}{k_{i,eq,25}} \right\}$	10^{-10}	1×10^{-4}	Constant
Muscovite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{K^+\}\{Al^{3+}\}^3\{H_4SiO_4\}^3\{H^+\}^{-10}}{k_{i,eq,25}} \right\}$	10^{-10}	10^{-10}	Constant
Dolomite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{Ca^{2+}\}\{Mg^{2+}\}^2\{CO_3^{2-}\}^2}{k_{i,eq,25}} \right\}$	-	1×10^{-4}	Constant
Chalcopyrite	$-k_i^{m,eff} \left\{ 1 - \frac{\{h^+\}^{-2}\{Cu^{2+}\}\{Fe^{2+}\}\{hs^-\}^2}{k_{i,eq,25}} \right\}$	-	8×10^{-7}	Two thirds

La durée des simulations était très variable d'un modèle à l'autre et pouvait aller de quelques minutes à plusieurs jours pour les modèles les plus complexes. La durée des calculs était fonction du nombre d'éléments, du gradient hydraulique appliqué, de la composition minéralogique et chimique des résidus et de la présence des matériaux inertes (co-disposition).

Tableau 6.4 Comparaison des taux de réaction effectifs ($k_k^{m,eff}$) en ($\text{mol L}_{\text{vrac}}^{-1} \text{s}^{-1}$) calibrés dans cette étude avec ceux rapportés dans la littérature.

Minéraux	Taux de réaction calibrés (Cette étude)	Taux de réaction dans la littérature	Références
Quartz	1×10^{-8}	1×10^{-12}	Chafana. (2023)
		1×10^{-14}	Kalonji et al. (2020)
		1×10^{-14}	Pabst et al. (2017)
		1×10^{-8}	Ouangrawa et al. (2009)
Pyrite	4×10^{-07}	-2×10^{-08}	Chafana. (2023)
			Kalonji et al. (2020)
		Shrinking core	Demers et al. (2013)
		$R = -S_K K_K^m [\text{O}_2]^{0,5}$	Molson et al. (2007)
			Pabst et al. (2017)
Muscovite	1×10^{-10}	1×10^{-10}	Chafana. (2023)
		1×10^{-11}	Demers et al. (2013)
		1×10^{-6}	Pabst et al. (2017)
		1×10^{-14}	Pabst et al. (2017)
Calcite	1×10^{-4}	3×10^{-07}	Chafana. (2023)
		1×10^{-6}	Pabst et al. (2017)
		1×10^{-6}	Molson et al. (2007)
		1×10^{-6}	Ouangrawa et al. (2009)
Chalcopyrite	8×10^{-7}	4×10^{-10}	Chafana. (2023)
			Kalonji et al. (2020)
		Shrinking core	Demers et al. (2013)
		$R = -S_K K_K^m [\text{O}_2]^{0,5}$	Pabst et al. (2017)
			Ouangrawa et al. (2009)
			Molson et al. (2007)

6.4 Résultats de la calibration des simulations numériques

La concentration en oxygène dans l'eau entrante était de $95\% \pm 5\%$ dans les deux colonnes à ($z = 0$ cm) et pour tous les gradients hydrauliques appliqués au cours de l'essai. Les profils de la concentration d'oxygène O_2 mesurés et simulés dans les colonnes Laronde et Westwood pour différents gradients hydrauliques ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) sont présentés dans la figure 6.6.

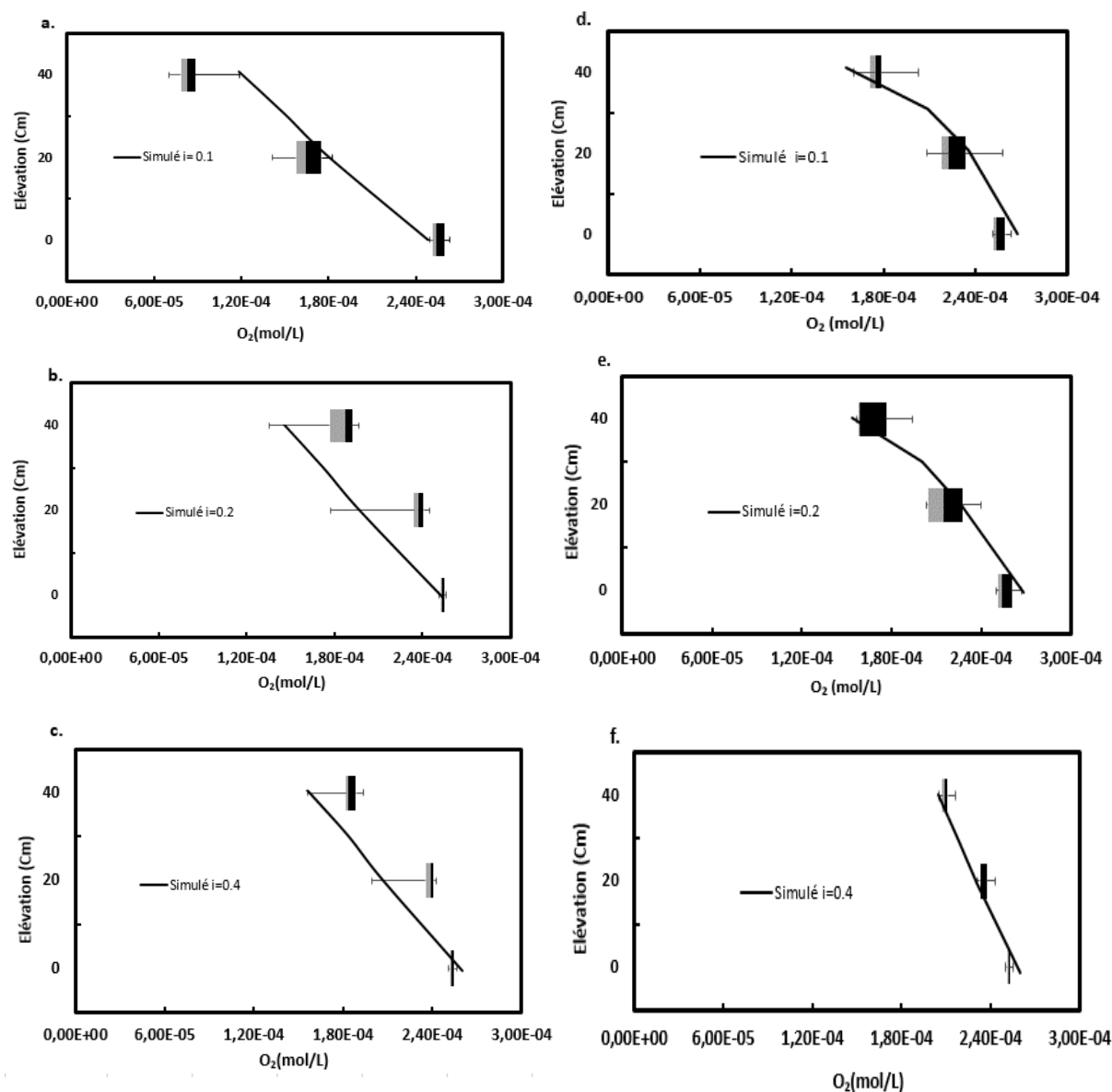


Figure 6.6 Profils de la concentration d'oxygène O_2 mesurés et simulés dans les colonnes Laronde et Westwood pour différents gradients hydrauliques ($i = 0,1$, $i = 0,2$, $i = 0,4$) pour les résidus Laronde (a.b.c) et Westwood (d.e.f). Valeur maximale, valeur minimale, médiane, 1^{er} et 3^e quartile calculés pour dessiner la boîte à moustache pour chaque profondeur.

La concentration en oxygène mesurée dans la colonne diminuait avec l'élévation, montrant une consommation progressive par les minéraux sulfureux. Avec un faible gradient hydraulique de 0,1, le débit d'eau qui est relativement faible dans la colonne contribuait à la consommation complète de l'oxygène à une élévation de 60 cm, ($O_2 = 2.19 \times 10^{-6}$ mol/L). A 40 cm de hauteur, la concentration en oxygène est d'environ $1,19 \times 10^{-4}$ mol/L et $1,82 \times 10^{-4}$ mol/L à 20 cm de hauteur. La concentration en oxygène dans la colonne variait également avec le gradient hydraulique et pour un même emplacement, plus le gradient était important, plus la concentration en oxygène enregistrée était élevée. Par exemple avec un gradient hydraulique de $i = 0,2$, les concentrations d'oxygène mesurées à 60 cm, 40 cm et 20 cm d'élévation étaient de $9,96 \times 10^{-6}$ mol/L, $1,35 \times 10^{-4}$ mol/L et $1,77 \times 10^{-4}$ mol/L respectivement. Pour un gradient hydraulique de $i=0,4$, les concentrations en oxygène mesurées à 60 cm, 40 cm et 20 cm de hauteur sont respectivement de $1,62 \times 10^{-4}$ mol/L, $1,56 \times 10^{-4}$ mol/L et $1,99 \times 10^{-4}$ mol/L. Les résultats de la simulation de la concentration d'oxygène à différentes élévations après calibration (Figure 6.6) étaient similaires aux résultats des tests expérimentaux sur colonne pour les deux résidus Laronde et Westwood et à différents gradients hydrauliques. Min3P était donc capable de bien calibrer à la fois la consommation d'oxygène par la réaction d'oxydation du sulfure et la diffusion d'oxygène à travers le milieu poreux. Le même comportement a été observé pour les résidus de Westwood, mais l'oxygène n'est pas consommé à la même vitesse que pour les résidus Laronde. Ceci peut s'expliquer par le fait que les résidus Westwood sont moins réactifs que les résidus Laronde, donc moins consommateurs d'oxygène. Par exemple, avec un faible gradient hydraulique de 0,1, les concentrations d'oxygène mesurées à une hauteur de 60 cm étaient de l'ordre de $1,87 \times 10^{-5}$ mol/L, contrairement aux résidus Laronde où la concentration était de l'ordre de $2,19 \times 10^{-6}$ mol/L O_2 . A 40 cm de hauteur, la concentration en oxygène était de l'ordre de $5,25 \times 10^{-5}$ mol/L, $1,99 \times 10^{-4}$ mol/L à 20 cm et $2,5 \times 10^{-4}$ mol/L, à $Z=0$ m (Figure 6.6).

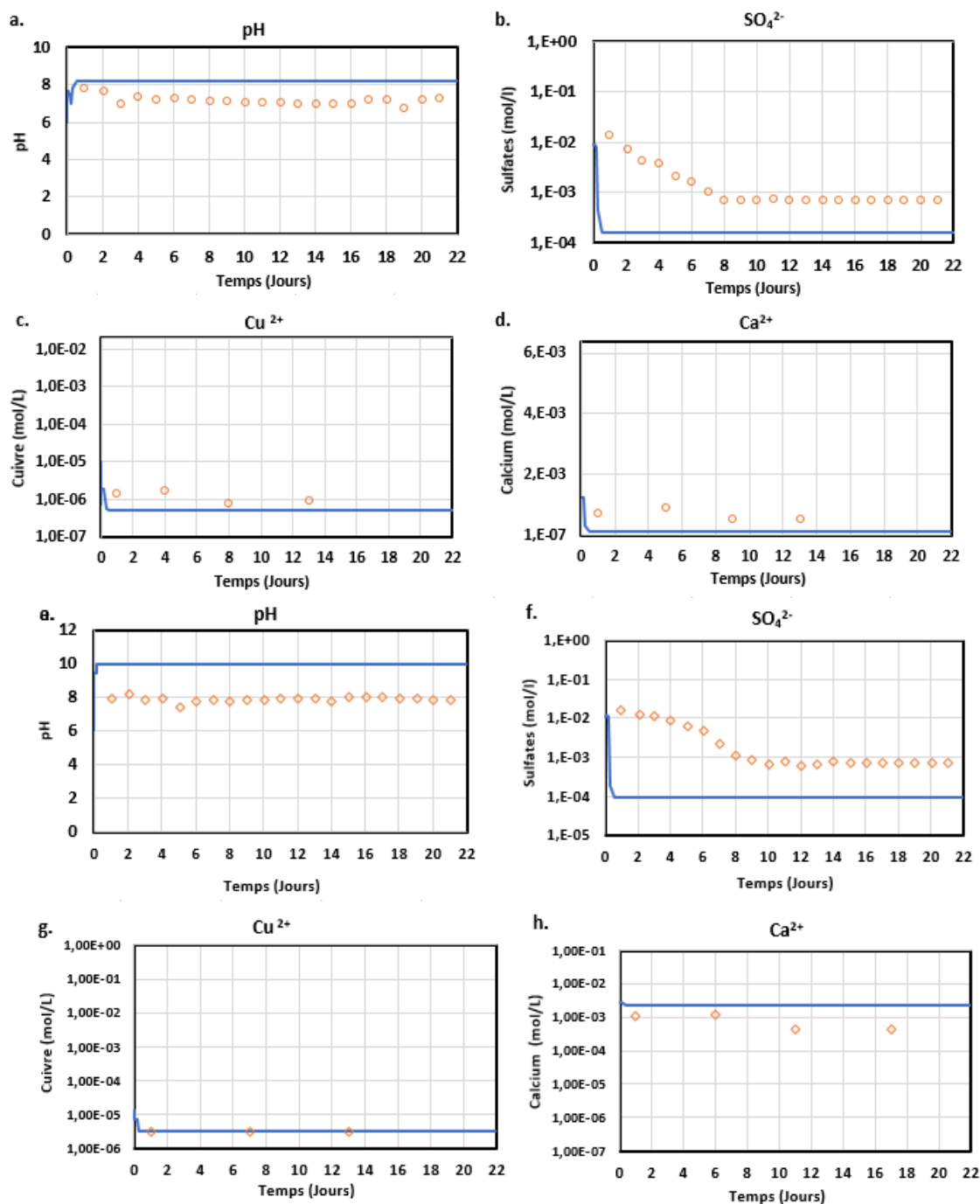


Figure 6.7 Calibration des simulations numériques de la colonne des résidus Laronde (a.b.c et d) et la colonne des résidus Westwood (e.f.g et h). Les valeurs simulées (courbe bleue) comparée aux valeurs mesurées lors des essais au laboratoire (losanges orange).

Le pH simulé pour l'essai cinétique Laronde était visuellement proche de celui mesuré pendant l'essai, et reproduisait assez bien la tendance observée durant tout l'essai. Cependant, les valeurs simulées durant la première semaine étaient plus élevées et constante dans le temps. Par exemple une diminution brusque du pH mesuré de 8 à 6,5 au jour 2, alors que le pH simulé montrait une stagnation durant tout l'essai (Figure 6.7a). Cette diminution brusque du pH pourrait être liée aux eaux interstitielles acides au départ de l'essai. D'ordre général, ces variations n'avaient pas d'incidences sur la qualité de la calibration des simulations numériques. Le pH simulé pour l'essai cinétique Westwood était de l'ordre de 10 durant toute la période de l'essai. Cependant, les valeurs mesurées sont plus basses, de l'ordre de pH = 8. Cette surestimation des valeurs simulées peut être expliquée par la dissolution rapide des carbonates notamment, la calcite et la dolomite. La calibration du pH dans les deux colonnes pouvait donc être considérée de qualité suffisante pour les besoins de la présente étude.

Les simulations des valeurs des sulfates pour les deux essais cinétiques Laronde et Westwood n'ont pas pu reproduire les tendances observées au laboratoire (Figure 6.7 b.f). Les valeurs simulées étaient sous-estimées (environ 7 fois moins pour les résidus Laronde) et (environ 6 fois moins pour les résidus Westwood). La raison de cette mauvaise calibration peut être expliquée par la différence entre les sulfates produits expérimentalement et les calculs stœchiométriques de la réaction d'oxydation directe de la pyrite (section 4.3).

Les concentrations de calcium simulées pour l'essai cinétique Laronde suivaient relativement bien les résultats des essais (Figure 6.7d). Les valeurs simulées étaient sous-estimées (environ 4 fois). Ceci peut être expliqué par le faible taux de réaction de la calcite, de l'ordre de 10^{-10} mol/L, avec des taux plus élevés les valeurs de pH s'échappent vers des valeurs plus élevées (Figure 6.7h). Contrairement aux résidus Westwood, les valeurs de calcium simulées étaient surestimées et ceci peut être expliqué par la présence des deux carbonates (calcite et dolomite).

Les concentrations du cuivre simulées pour l'essai cinétique Westwood suivaient bien les concentrations mesurées. Les simulations ont pu reproduire les tendances très précisément (Figure 6.7 g). La raison de cette bonne calibration de Cu est due d'une part au fait que le cuivre précipite sous forme d'hydroxyde à ces valeurs de pH, ce que les équilibres thermodynamiques arrivent très bien à reproduire, et, d'autre part au choix adéquat du taux de réaction de la chalcopryrite par itération qui était de l'ordre de 10^{-7} mol/L.

6.5 Synthèse des résultats des essais cinétiques à petite échelle

La réponse géochimique des deux résidus miniers (Laronde et Westwood) à différentes compositions minéralogiques en codisposition avec le sable géochimiquement inerte lors d'essais cinétiques en milieu saturé est discutée. Rappelons que les résultats et l'interprétation sont basés sur les réponses géochimiques des essais cinétiques réalisés au laboratoire et sur la modélisation (MIN3P) à partir des lixiviats collectés. Les résultats expérimentaux des essais cinétiques avec co-disposition du sable obtenus à l'échelle du laboratoire ont montré que l'oxygène dissous à l'entrée ($95\% \pm 5\%$) n'est pas consommée rapidement, contrairement aux essais cinétiques avec les mêmes résidus mais sans co-disposition du sable (Chapitre 4). Pour les essais cinétiques sans codisposition, l'oxygène a été rapidement consommé dans les résidus Laronde et Westwood et les concentrations d'oxygène mesurées à une élévation de 2 cm, 4 cm et 6 cm ont été constantes et égales à 0% durant l'ensemble des essais (section 4.2). Les résultats expérimentaux obtenus à petite échelle au laboratoire ont montré l'intérêt d'utiliser des inclusions pour assurer la stabilité géochimique des résidus sulfureux réactifs (Figure 6.4).

D'autre part, la mesure et le suivi des différents paramètres indicateurs d'oxydation des sulfures ont montré que la présence d'inclusions améliore la qualité chimique des eaux qui traversent les résidus réactifs. Par exemple, l'évolution de la concentration moyenne en oxygène à différentes profondeurs pour le test cinétique en conditions saturées avec inclusion de sable pour les résidus Laronde et Westwood (Figure 6.2) montre clairement que l'oxygène n'est pas consommé rapidement pendant les premiers centimètres de la colonne mais il y a un gradient de concentration et une évolution progressive de la consommation d'oxygène qui dépend du gradient hydraulique appliqué ainsi que de la composition minéralogique des résidus. Pour les résidus Laronde à faible gradient hydraulique $i = 0,1$, l'eau traverse la colonne et l'oxygène dissous prend le temps nécessaire pour se diffuser et être entièrement consommé à la sortie de la colonne. Pour les forts gradients hydrauliques $i = 0,4$, l'eau traverse rapidement la colonne par l'inclusion et l'oxygène dissous n'est pas consommé avec la même vitesse ; on note alors la présence d'oxygène dissous à la sortie de la colonne. Pour limiter l'oxydation des résidus réactifs, en plus de leur dépôt en milieu saturé, cette nouvelle méthode de co-disposition, consistant en la mise en place de résidus avec un matériau hautement perméable permet de créer des chemins préférentiels pour l'eau oxygénée qui traverse les résidus miniers réactifs.

Le suivi des sulfates a confirmé les mêmes tendances et montre que les inclusions améliorent la qualité de l'eau. L'évolution des concentrations de sulfates en fonction du gradient hydraulique pour les résidus Laronde et les résidus Westwood montre que les principaux paramètres d'oxydation notamment les sulfates, varient significativement avec le gradient hydraulique (Figure 6.3). Lorsque le débit devient très important, l'oxygène dissous n'a pas le temps de réagir avec les résidus réactifs et par conséquent la concentration en sulfates dans le milieu est plus faible. De plus, la composition minéralogique a un effet sur le lixiviat récupéré de la colonne. Les lixiviats qui sortent de la colonne Laronde (plus réactive que Westwood) sont plus riches en sulfates que les résidus Westwood quel que soit le gradient hydraulique.

On observe la même tendance évolutive des valeurs mesurées et simulées. Il est évident que le modèle peut reproduire avec précision les résultats expérimentaux basés sur des données de laboratoire. L'objectif est de reproduire au plus près les résultats expérimentaux en privilégiant les tendances générales plutôt que les valeurs absolues. En résumé, ces simulations à petite échelle montrent que le code Min3P reproduit assez bien les phénomènes de dilution et de transport des contaminants par advection et dispersion. Cela a également été confirmé par plusieurs études qui ont utilisé le code MIN3P. Ces simulations à petite échelle suggèrent que le modèle permettra d'évaluer le rôle de l'inclusion à plus grande échelle, notamment au niveau d'une fosse. Des travaux récents ont montré que ce modèle de transport réactif avec le contrôle d'importants paramètres physicochimiques et une paramétrisation fondée sur des preuves peut être utilisés pour expliquer la dynamique du drainage minier acide des stériles à l'échelle du laboratoire et les extrapoler à plus grande échelle (Seigneur et al., 2021). La modélisation du transport réactif via le code MIN3P a été aussi utilisée pour évaluer les processus géochimiques contrôlant l'oxydation des minéraux sulfurés et leur dépendance à la température et à la teneur en minéraux sulfurés dans les stériles de la mine Diavik (Wilson et al., 2018). Il s'agit des expériences au laboratoire qui ont été menées en cellule d'humidité pour l'étude et la mise à l'échelle de l'évolution géochimique des déchets miniers sulfurés.

6.6 Extrapolation des résultats à grande échelle

Le code numérique MIN3P au moyen du modèle (3D) a été utilisé pour extrapoler les résultats à plus grande échelle (Mayer et al., 2002). La géométrie de la fosse simulée dans cette étude est inspirée du cas réel de la fosse Doyon. La fosse mesure environ 800 mètres de long, 400 mètres de

large et 175 mètres de hauteur (Golder, 1986 ; Levesque, 2019). La taille totale du modèle correspond aux mêmes dimensions, avec quatre inclusions de 10 mètres chacune entouré de part et d'autre de 70 mètres des résidus avec un peu plus de 200 éléments pour le maillage (Figure 6.8). La durée des simulations pouvait aller jusqu'à plusieurs jours (Figure 6.9).

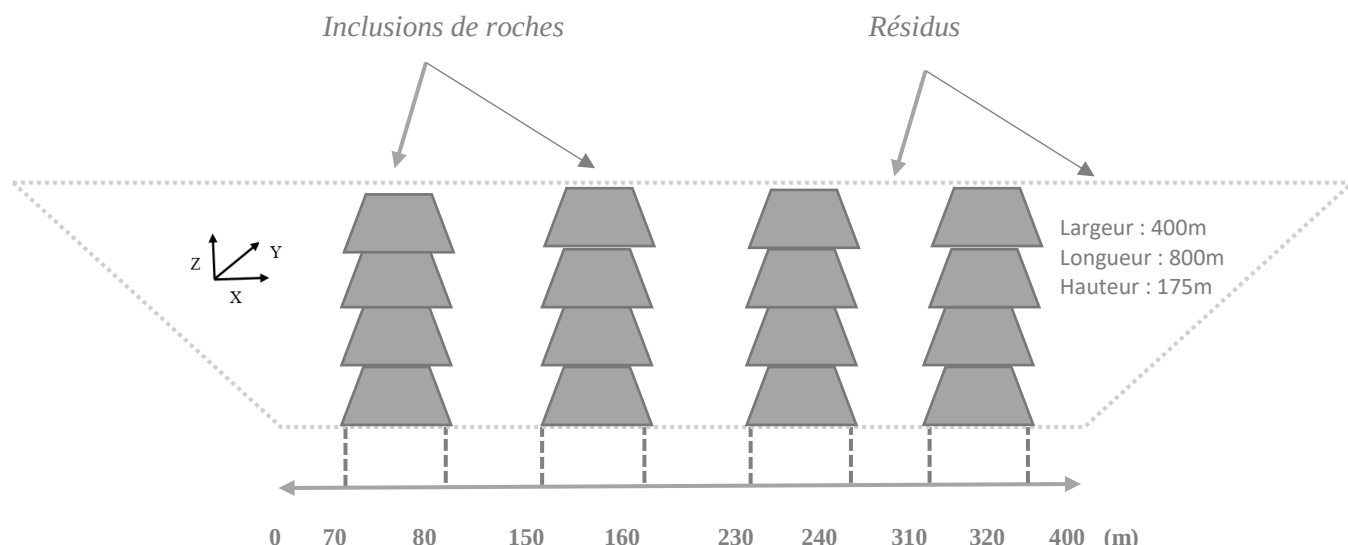


Figure 6.8 Illustration conceptuelle schématisée du modèle au cours de l'extrapolation des résultats à grande échelle pour les simulations avec MIN3P (maillage : un peu plus de 200 éléments).

Pour accélérer les simulations et assurer un bon compromis entre la précision des résultats et la vitesse des calculs, une simplification du système a été réalisée en prenant un cas de base avec une seule inclusion de 10 mètres de largeur et une épaisseur des résidus de 70 m de part et d'autre. Le maillage utilise des éléments de hauteur 1 m pour l'axe X, 1 m pour l'axe Y et 5 m pour l'axe Z, ce qui représente à peu près 80 éléments. Les temps de calculs varient avec le nombre d'éléments (de quelques minutes à plusieurs heures voire jours). La dispersivité longitudinale correspondait à 1/10 de l'échelle du système (Gelhar et al., 1992) et était ici de 17,5 m.

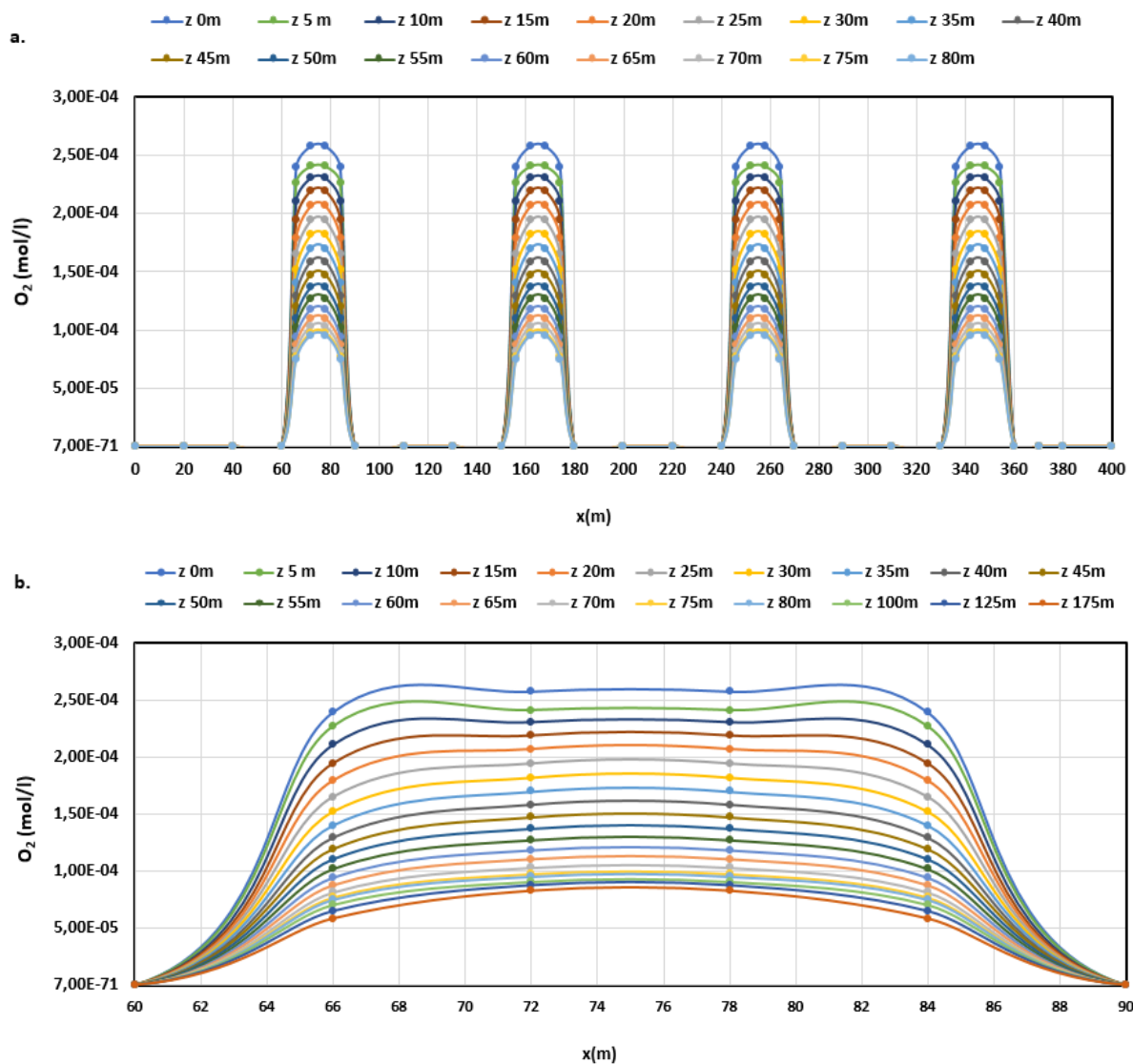


Figure 6.9 Évolution de la concentration d'oxygène dissous dans la fosse suite à l'extrapolation des résultats à grande échelle (a) dans l'ensemble de la fosse (b) avec un zoom sur l'inclusion centrée à 75m.

6.6.1 Résultats des simulations du cas de base

Une inclusion de 10 m de largeur a été considérée comme cas de base et l'évolution des différents paramètres calibrés (pH , SO_4^{2-} , Ca^{2+} , Cu^{2+}) est présentée dans la figure 6.10.

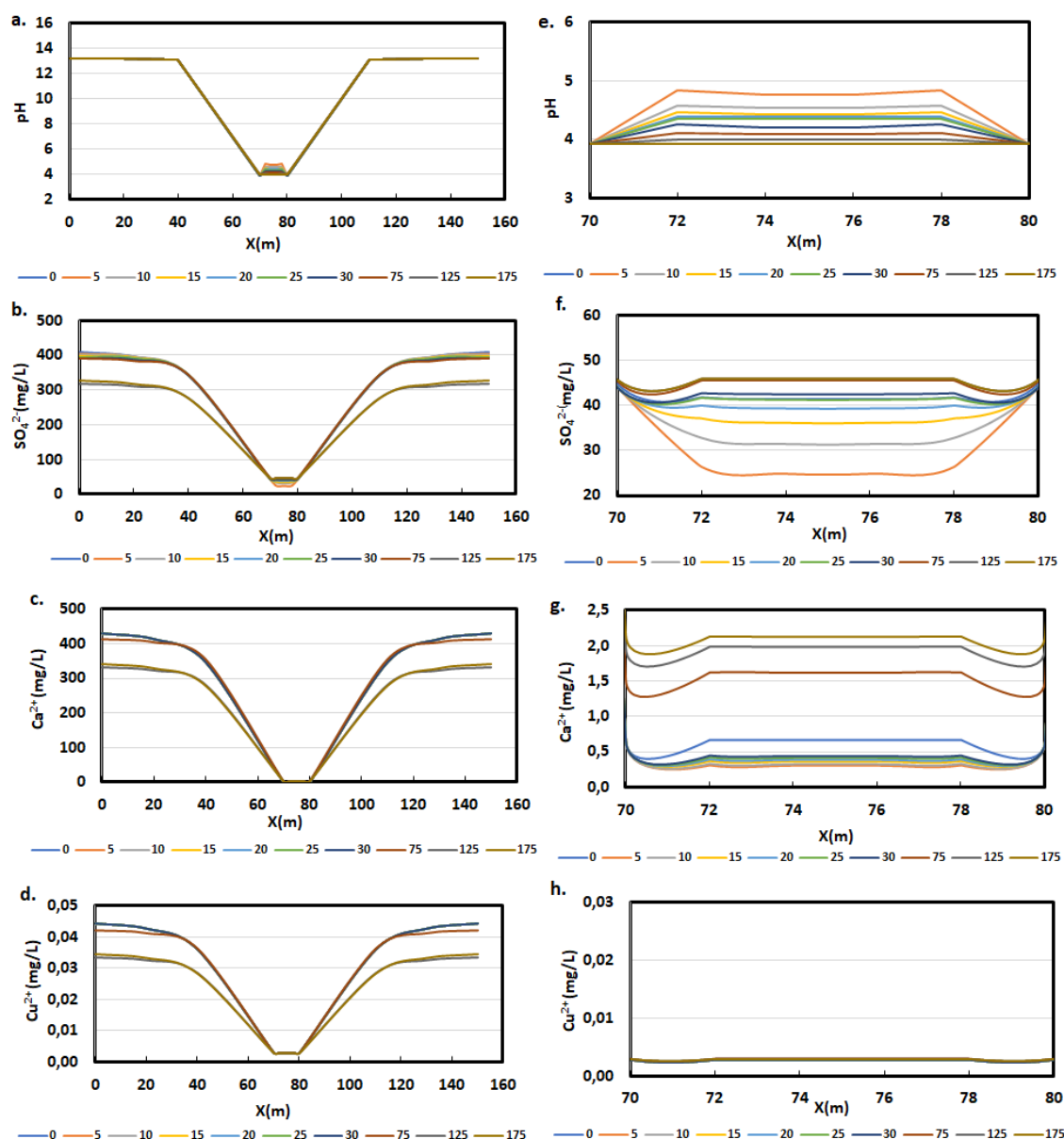


Figure 6.10 Profils simulés des concentrations de sulfates, de calcium de cuivre et de pH en fonction de (Y) au sein de la fosse remblayée par les résidus Laronde (a.b.c.d). Un zoom sur les profils simulés de pH, de concentrations de sulfates, de calcium et de cuivre en fonction de (Y) au niveau de l'inclusion (e.f.g.h).

Les valeurs de pH les plus basses ont été notées au niveau de la zone de contact entre les résidus et l'inclusion (pH = 3,92) ce qui peut être expliqué par la diffusion de l'oxygène dissout à la frontière entre l'inclusion et les résidus, provoquant l'oxydation de la pyrite et l'acidité qui en résulte. Les valeurs de pH les plus élevées ont été enregistrées au niveau des résidus de part et d'autre de l'inclusion (figure 6.10.a), ce qui peut être expliqué par la diffusion limitée de l'oxygène à travers les résidus. Les valeurs de pH au sein de l'inclusion sont acides (figure 6.10.e) et diminuent avec la distance (par rapport à l'entrée de la fosse). Par exemple, à $y = 5$ m, la valeur de pH enregistrée était de 4,85 et à $Y = 175$ m, la valeur de pH enregistrée était de 3,93. Ce comportement est dû à la présence d'une fraction plus élevée d'oxygène dissous dans l'inclusion, car 99% de l'eau qui traverse la fosse est dirigée vers l'inclusion (Voir calcul dans l'annexe M), et aussi au fait que nous n'utilisons pas le pouvoir tampon et neutralisant des résidus. Bien qu'une fraction des résidus sulfureux ait été oxydée et provoqué l'acidification du milieu, le mécanisme de neutralisation n'a pas pu être déclenché pour tamponner le pH des eaux, qui ont été rapidement déviées vers le chemin préférentiel (inclusion).

Les concentrations de sulfates les plus élevées sont enregistrées au niveau des résidus. Plus on s'éloigne de l'inclusion, plus la concentration en SO_4^{2-} augmente. Par exemple, pour ($X=40$ m) la concentration en $\text{SO}_4^{2-} = 343$ mg/L, pour ($X=20$) la concentration en $\text{SO}_4^{2-} = 397$ mg/L et pour ($X=0$) la concentration de $\text{SO}_4^{2-} = 410$ mg/L (figure 6.10.b). Les valeurs les plus basses sont enregistrées au niveau de l'inclusion (figure 6.10.f). Un tel résultat peut être expliqué par la dilution des sulfates par le grand flux d'eau qui traverse l'inclusion et, inversement, les concentrations élevées dans les résidus s'expliquent par le faible flux d'eau qui traverse ces derniers (très faible dilution).

Les plus fortes concentrations de calcium sont enregistrées au niveau des résidus et à l'entrée de la fosse. Pour $Y=5$ m, la valeur de calcium enregistrée était de 429 mg/L et pour $Y=175$ m, les concentrations de calcium étaient de $\text{Ca}^{2+} = 332$ mg/L. Plus on se rapproche de l'inclusion, plus la concentration en calcium diminue. La concentration en calcium au niveau de la zone de contact avec l'inclusion était de $\text{Ca}^{2+} = 0,7$ mg/L (figure 6.10.c). Les valeurs de calcium les plus basses sont enregistrées au niveau de l'inclusion, pour $y=5$ m la valeur de calcium enregistrée était de 0,31 mg/L et pour $Y=175$ m la valeur de calcium enregistrée était de 2,13 mg/L (figure 6.10.g). Ce comportement s'explique par l'absence de phases neutralisantes au niveau des inclusions. C'est

d'ailleurs la raison pour laquelle les valeurs de pH sont faibles dans cette zone. Le flux qui traverse l'inclusion ne profite pas du pouvoir neutralisant des résidus.

Les concentrations de cuivre enregistrées au niveau de la fosse sont très faibles, elles sont de l'ordre de $\text{Cu}^{2+} = 0,03 \text{ mg/L}$ au niveau des résidus. La concentration au niveau des inclusions est d'environ $\text{Cu}^{2+} = 0,0029 \text{ mg/L}$. Ces faibles valeurs peuvent s'expliquer, d'une part, par la très faible fraction de chalcoppyrite et de l'absence d'autres phases minéralogiques porteuses de cuivre dans l'échantillon sur lequel nous avons travaillé dans cette étude et, d'autre part, au fait que le cuivre précipite sous forme d'hydroxyde à ces valeurs de pH.

En d'autres termes, la figure 6.10 montre que les pH les plus acides sont notés au niveau de la zone de contact entre l'inclusion et les résidus et au sein de l'inclusion. En effet, le flux d'eau chargé en oxygène dissous traverse l'inclusion et permet une réaction d'oxydation accélérée des résidus aux bords de l'inclusion. Contrairement aux résidus, l'inclusion ne contient pas de phases neutralisantes (par exemple, la calcite) ce qui explique les faibles valeurs de calcium au sein de l'inclusion et le faible pH. Il n'y a pas de mécanisme de neutralisation au sein de l'inclusion, contrairement à la zone de résidus riches en sulfates suite à l'oxydation des sulfures, en particulier dans les parties à forte concentration en oxygène dissous. La dissolution de la calcite est suffisamment rapide dans cette zone pour tamponner le pH des eaux interstitielles acides.

6.6.2 Analyse paramétrique

L'objectif visé ici est de faire une analyse paramétrique du cas de base. Trois scénarios ont été choisis pour étudier l'effet de la largeur de l'inclusion de sable (10 m, 20 m et 30 m) sur le comportement géochimique de la fosse remblayée avec des résidus réactifs : trois valeurs de gradient hydraulique ($i = 1$, $i = 0,1$, $i = 0,01$) ont été choisies, et deux résidus ont été utilisés lors des simulations (Laronde et Westwood) pour étudier l'effet de la composition minéralogique sur le comportement géochimique des résidus déposés dans des fosses avec inclusion.

- **Effet de la largeur d'inclusion**

Trois cas ont été testés pour les résidus de Laronde (10 m, 20 m et 30 m). L'évolution de la concentration en oxygène dissous en fonction de la largeur de l'inclusion pour le résidu Laronde est présentée dans la figure 6.11.

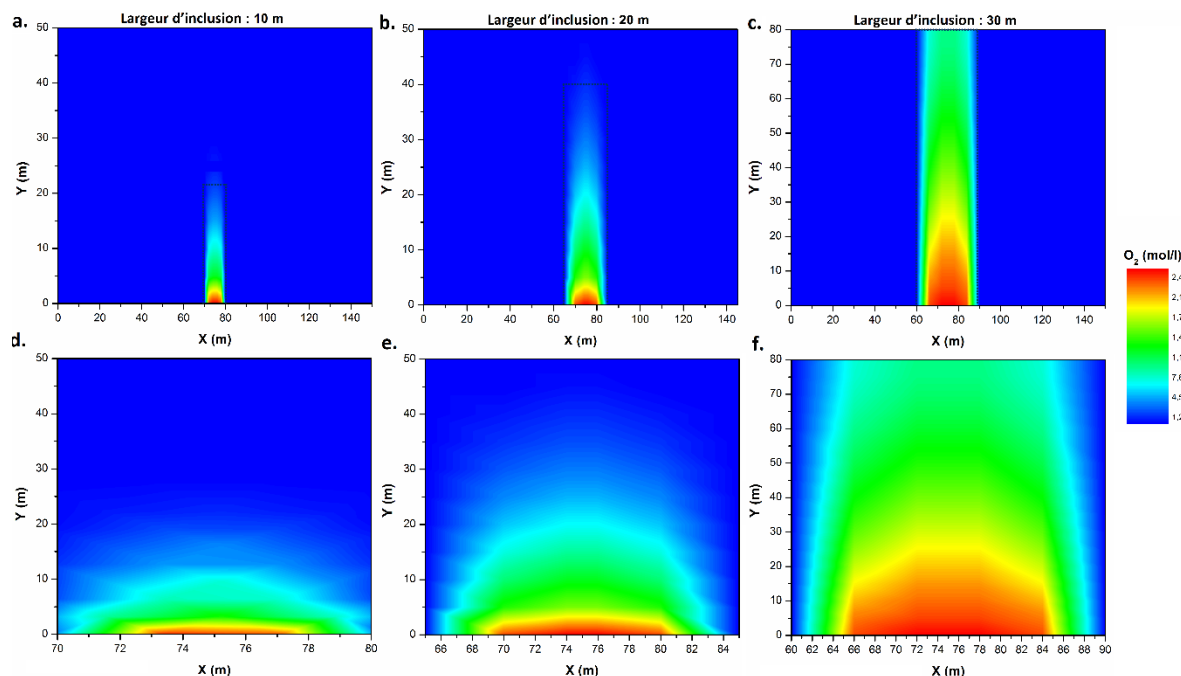


Figure 6.11 Évolution de la concentration en oxygène dissous en fonction de la largeur de l'inclusion pour le résidu Laronde. Les figures (a.b.c) montrent la vue général au sein de la fosse. Les figures (d.e.f) est un zoom qui montre la concentration d'O₂ au centre de l'inclusion en fonction de Y et pour différentes largeurs d'inclusion.

Pour une inclusion de 10 m, la concentration en oxygène diminue progressivement le long de la fosse pour s'épuiser à une distance de 25 m. Par exemple, les concentrations d'oxygène sont passées de $2,58 \times 10^{-4}$ mol/L initialement à environ $6,77 \times 10^{-6}$ mol/L à 25 m au milieu de l'inclusion (Figure 6.11). Pour une inclusion de 20 mètres de largeur, la concentration en oxygène au sein de l'inclusion diminue progressivement le long de la fosse pour être épuisée à 45 m. Par exemple, les concentrations en oxygène sont passées de $2,58 \times 10^{-4}$ mol/L initialement à environ $3,96 \times 10^{-6}$ mol/L à 45 m au milieu de l'inclusion (Figure 6.11). Pour une inclusion de 30 mètres de largeur, la concentration en oxygène au sein de l'inclusion diminue progressivement le long de la fosse. Par exemple, les concentrations d'oxygène sont passées de $2,58 \times 10^{-4}$ mol/L initialement à environ $9,55 \times 10^{-5}$ mol/L à 80 m (Figure 6.11). Il est à noter que plus l'inclusion est large, plus l'oxygène dissous dans le flux d'eau qui traverse la fosse par le chemin préférentiel (inclusion perméable) est protégée durant les premiers mètres, mais plus le débit d'eau avance, plus l'oxygène est consommé. Dans les parcs à résidus miniers en fosse, l'apport d'oxygène aux résidus est principalement régi par des mécanismes de diffusion. La diffusion est un phénomène de transport moléculaire, dans

l'eau ou dans l'air, se développant sous l'effet d'un gradient de concentration. Le flux unitaire d'oxygène diffusif est décrit par la première loi de Fick (Hillel, 1998 ; Aachib et al., 2004). La compréhension des mécanismes de transport de l'oxygène est essentielle pour la conception d'inclusions perméables qui limitent la disponibilité de l'oxygène dans les résidus réactifs.

- **Effet de la composition minéralogique des résidus**

Pour étudier l'effet de la composition minéralogique sur le comportement géochimique des résidus déposés dans des fosses avec inclusion, deux résidus ont été utilisés lors des simulations (Laronde et Westwood). L'évolution de la concentration en oxygène le long de l'inclusion à différentes longueurs pour les deux résidus de composition minéralogique différente est présentée dans la figure 6.12.

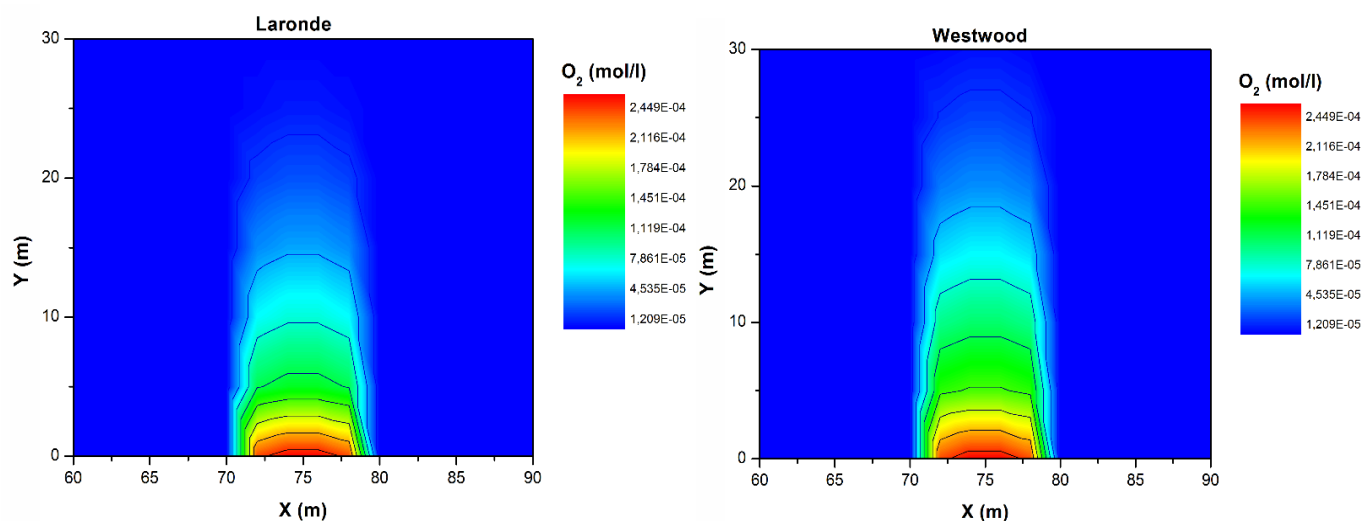


Figure 6.12 Évolution de la concentration en oxygène le long de l'inclusion à différentes longueurs pour deux résidus de composition minéralogique différente a) résidus Laronde, b) résidus Westwood.

Pour les résidus Laronde avec une inclusion de 10 m de largeur, la concentration en oxygène diminue graduellement le long de la fosse pour s'épuiser à une longueur de 25 m. Par exemple, les concentrations d'oxygène sont passées de $2,58 \times 10^{-4}$ mol/L initialement à environ $6,77 \times 10^{-6}$ mol/L à 25 m au milieu de l'inclusion (Figure 6.12.a). Pour les résidus de Westwood et dans les mêmes conditions c'est-à-dire avec une inclusion de 10 m de largeur, la concentration en oxygène au sein

de l'inclusion diminue progressivement le long de la fosse pour être épuisée à 30 m. Par exemple, les concentrations en oxygène sont passées de $2,58E^{-04}$ mol/L initialement à environ $4,55E^{-06}$ mol/L à 30 m au milieu de l'inclusion (Figure 6.12.b). L'oxygène a été rapidement consommé dans les résidus de Laronde le long de l'inclusion sableuse. Au final, la différence est très subtile entre les deux résidus malgré que le comportement géochimique des résidus Westwood a été marqué le long de cette étude par un effet tampon relativement important, qui pourrait s'expliquer par la présence de carbonates et une teneur en sulfures plus faibles que les résidus Laronde. Il convient également de noter que la concentration en oxygène diminue progressivement latéralement pour s'épuiser au contact des résidus de part et d'autre.

- **Effet du gradient hydraulique**

Pour étudier l'effet du gradient hydraulique sur le comportement géochimique des résidus déposés dans des fosses avec inclusion de sable (méthode de co-disposition), trois valeurs de gradient hydraulique ($i=1/i=0,1/i=0,01$) ont été utilisées lors des simulations pour les résidus Laronde dans les mêmes conditions, soit avec une inclusion de 10 mètres de largeur. Les principaux résultats de l'évolution de la concentration en oxygène dissous le long de l'inclusion à différents gradients hydrauliques sont présentés dans la figure 6.13.

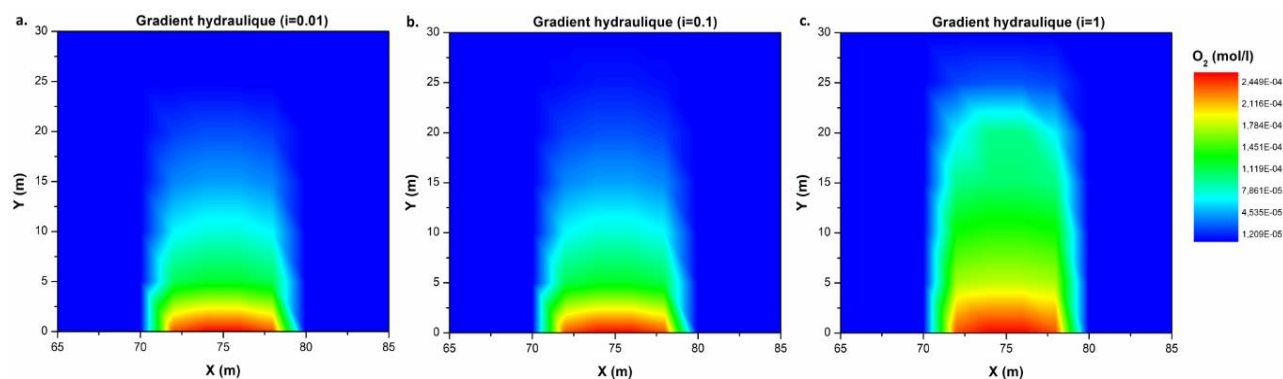


Figure 6.13 Évolution de la concentration en oxygène dissous le long de l'inclusion à différents gradients hydrauliques pour les résidus Laronde.

Selon les résultats obtenus, plus le gradient est élevé, moins il y aura de contamination, car l'oxygène a moins de temps pour se diffuser et réagir avec les résidus. Pour des gradients inférieurs à 1, la différence de diffusion de l'oxygène n'est pas très grande. Lorsque le gradient hydraulique diminue, le débit d'eau traverse lentement le système et les concentrations d'oxygène dissous dans l'eau s'épuisent rapidement.

Pour les résidus Laronde avec un gradient hydraulique de 0,01, la concentration en oxygène au sein de l'inclusion diminue graduellement le long de la fosse pour s'épuiser rapidement à 20 m. Par exemple, les concentrations en oxygène sont passées de $2,58E^{-04}$ mol/L initialement à environ $1,99E^{-05}$ mol/L au milieu de l'inclusion (Figure.6.13). Pour un gradient hydraulique de 0,01, la concentration en oxygène au sein de l'inclusion diminue progressivement le long de la fosse pour s'épuiser à 25 m. Par exemple, les concentrations d'oxygène sont passées de $2,58E^{-04}$ mol/L initialement à environ $6,77E^{-06}$ mol/L (Figure 6.13). Pour un gradient hydraulique de 1, l'oxygène n'est pas consommé avec la même vitesse. Par exemple, les concentrations en oxygène sont passées de $2,58E^{-04}$ mol/L initialement à environ $2,17E^{-05}$ mol/L à 25 m au milieu de l'inclusion (Figure 6.13). Pour un gradient hydraulique de 1, la diffusion d'oxygène est peu importante durant les premiers mètres de la fosse car le débit d'eau traverse rapidement l'inclusion. Il faut également noter que la concentration en oxygène diminue progressivement latéralement pour s'épuiser au contact des résidus de part et d'autre.

6.7 Synthèse des résultats de l'extrapolation et de l'analyse paramétrique

L'objectif de cette extrapolation à plus grande échelle est de simuler l'impact des différents paramètres clés pour la conception d'une fosse remblayée avec des résidus miniers afin de limiter la génération de DMA et la contamination du milieu environnant. Pour l'étude de l'effet de la largeur de l'inclusion (10 m, 20 m et 30 m) sur le comportement géochimique de la fosse remblayée avec des résidus réactifs, il est à noter que plus l'inclusion est large, plus l'oxygène dissous présent dans les eaux souterraines qui traverse la fosse par le chemin préférentiel (inclusion perméable) est protégé durant les premiers mètres. Par contre, plus le flux d'eau avance, plus l'oxygène est consommé. À la sortie du système, tout l'oxygène est consommé, quelle que soit la largeur de l'inclusion. Toutefois, la largeur de l'inclusion a un impact majeur. En effet plus la largeur de l'inclusion est grande plus d'O₂ qui entre dans le système est important, et donc beaucoup plus d'oxydation et de génération d'acide potentiellement (et de contaminants).

Pour l'effet de la composition minéralogique des résidus, les deux scénarios retenus lors des simulations sont l'utilisation de deux résidus de réactivités différentes : Laronde, fortement acidogène et Westwood, moins générateur d'acide. Les résultats de la simulation à grande échelle ont montré que plus les résidus remblayés dans la fosse en présence d'inclusions sont réactifs, plus la consommation d'oxygène est rapide pendant les premiers mètres de la fosse remblayée. Cependant, il n'y a pas de différence très significative exploitable pour le choix des critères de rejet dans la présente étude. Peut-être avec l'utilisation d'un résidu minier avec un grand potentiel de neutralisation (supérieur à celui de Westwood), la composition minéralogique aura un impact sur la consommation d'oxygène.

Pour l'effet du gradient hydraulique sur le comportement géochimique des résidus déposés dans des fosses remblayées en milieu saturé avec présence d'inclusions, trois valeurs de gradient hydraulique ($i = 1$, $i = 0,1$, $i = 0,01$) ont été utilisées lors des simulations pour les résidus Laronde dans les mêmes conditions c'est-à-dire avec une inclusion de 10 mètres de largeur. D'après les résultats obtenus, plus le gradient hydraulique appliqué est faible, plus l'oxygène qui pénètre dans la fosse a le temps de se diffuser et d'être consommé, et les concentrations d'oxygène dissous dans l'eau s'épuisent rapidement. Pour les gradients hydrauliques supérieurs à 1, on observe que l'oxygène n'est pas consommé aussi rapidement que les faibles gradients hydrauliques. Cette variation (gradient d'oxygène) n'est observée que pendant les premiers mètres de la fosse. Comme pour les deux premiers paramètres (largeur de l'inclusion et composition minéralogique des résidus), quel que soit le gradient hydraulique appliqué, une consommation complète d'oxygène est observée en sortie de fosse. Cela dit, ce paramètre n'a pas d'influence significative sur la conception, d'autant plus qu'il est dicté par le gradient régional.

L'analyse et l'interprétation des résultats expérimentaux et numériques ont montré que l'utilisation d'une inclusion avec un grand contraste de perméabilité par rapport aux résidus permet de créer un chemin d'écoulement préférentiel pour l'écoulement de l'eau, réduisant ainsi de manière significative (comme prévu) le contact entre l'eau et les résidus. Cependant, nous avons constaté que l'oxydation accélérée aux bords de l'inclusion suite aux fortes concentrations d'oxygène dissous génère des eaux acides. L'absence de phases neutralisantes au sein de l'inclusion provoque une acidification des eaux. Afin d'améliorer la qualité chimique de l'eau circulant dans la fosse, une modification de la composition minéralogique de l'inclusion a été simulée (Résidus : Laronde,

Largeur d'inclusion : 10 m, gradient hydraulique : 0,1) et les principaux résultats sont présentés dans la figure 6.14.

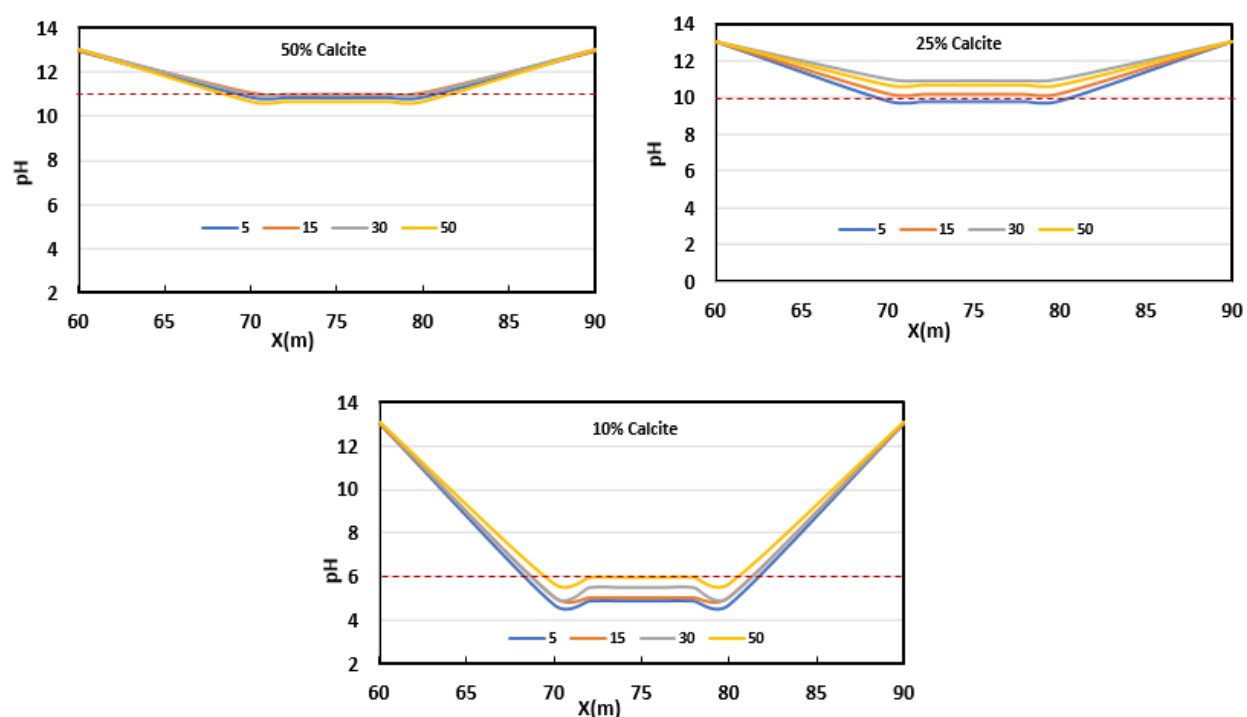


Figure 6.14 Évolution des valeurs de pH simulés au sein de l'inclusion en fonction de (Y) à différentes compositions minéralogiques de l'inclusion (a) 10% de calcite (b) 25% de calcite (c) et 50% de calcite.

En effet, l'ajout de calcite à différentes proportions (CaCO_3 : 10%, 25% et 50%) à la composition minéralogique de l'inclusion a permis d'augmenter les valeurs de pH au sein de l'inclusion. Les carbonates aident à maintenir le pH entre 5 et 7 dans les zones d'accumulation de résidus miniers (Blowes et al., 2003, Lindsay et al., 2009). Par exemple, pour le cas de CaCO_3 à 10%, la valeur de pH enregistrée au niveau de l'inclusion était pH = 5, pour le cas de CaCO_3 à 25%, la valeur de pH enregistrée au niveau de l'inclusion était de l'ordre de 9,9, alors que pour le cas de CaCO_3 à 50%, la valeur du pH enregistrée au niveau de l'inclusion était de 11. La présence de phases neutralisantes au sein de l'inclusion améliorera la qualité chimique de l'eau qui coule dans la fosse. Le pouvoir neutralisant (ou pouvoir tampon) de la calcite est un moyen naturel d'atténuer la génération de DMA (Jambor et Blowes., 1998 ; Lindsay, 2009).

Les résultats obtenus dans cette étude constituent donc une avancée et un plus pour une meilleure compréhension du comportement géochimique des résidus déposés à ciel ouvert en présence

d'inclusions à matériaux perméables et géochimiquement neutres. Plus l'inclusion est importante, plus l'oxygène dissous dans le flux d'eau qui traverse la fosse par le chemin préférentiel (inclusion perméable) est protégé pendant les premiers mètres. Cependant, plus le flux d'eau avance, plus l'oxygène est consommé. Plus les résidus remblayés dans la fosse en présence d'inclusions sont réactifs, plus la consommation d'oxygène est rapide pendant les premiers mètres de la fosse remblayée. Plus le gradient hydraulique appliqué est petit, plus l'oxygène qui pénètre dans la fosse a le temps de diffuser et d'être consommé, et les concentrations d'oxygène dissous dans l'eau sont rapidement épuisées.

Avec cette configuration, en sortie de fosse, tout l'oxygène est consommé, quelles que soit la largeur de l'inclusion, la composition minéralogique des résidus et le gradient hydraulique appliqué. Certes, tous ces paramètres ont un effet, mais très local et limité. Cela signifie que l'oxygène se diffuse dans le système et que l'oxygène dissous à travers l'inclusion pourrait également contribuer à l'oxydation des résidus réactifs déposés dans les fosses. L'utilisation d'inclusions avec des matériaux plus perméables et géochimiquement inertes est intéressante mais pas suffisante. L'inclusion doit comporter des matériaux contenant des phases neutralisantes telles que la calcite (CaCO_3), la dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) et l'ankérite pour utiliser leur pouvoir tampon et neutraliser l'acidité générée suite à l'oxydation des sulfures se trouvant dans la zone de contact entre les résidus et l'inclusion. Dans cette perspective, nous suggérons que des travaux supplémentaires puissent être menés sur la composition des matériaux d'inclusion, en particulier ceux qui peuvent soit consommer directement de l'oxygène, soit neutraliser l'acidité générée.

CHAPITRE 7 SYNTHÈSE ET DISCUSSION

7.1 Rappel de la problématique

Plusieurs cas de remblayage des mines à ciel ouvert avec des rejets miniers à travers le monde (Canada, Australie, Espagne, Allemagne, Guyana) ont montré que la déposition des rejets réactifs dans les fosses pouvait permettre d'améliorer la stabilité physique des aires d'entreposage tout en limitant les réactions d'oxydation, grâce à un meilleur contrôle des échanges avec l'atmosphère et le milieu environnant (MEND 2007; MEND 2015). Avec la multiplication des mines à ciel ouvert de grandes dimensions, les compagnies minières ont besoin de plus d'informations pour bien évaluer et mieux comprendre le comportement hydrogéologique et géochimique des rejets qui peuvent être retournés dans les fosses, afin de réduire les incertitudes de cette approche et d'en favoriser l'application. Notamment, la compréhension des phénomènes qui agissent sur la stabilité géochimique de ces rejets miniers, lors de leurs dépôts dans les fosses.

7.2 Stabilité géochimique des résidus miniers déposés dans des fosses à ciel ouvert

7.2.1. Comportement géochimique des résidus miniers réactifs dans des conditions saturées et non saturées

La réactivité des résidus Laronde et Westwood et leurs potentiels d'acidification ont été confirmés par des tests cinétiques en milieu non saturé, où le lixiviat a été caractérisé par un pH bas et des concentrations élevées en sulfate et en métaux. Pour les essais cinétiques en milieu saturé avec les mêmes résidus miniers, la qualité de l'eau a été significativement améliorée. Le comportement géochimique des résidus de Laronde dans des conditions saturées était significativement différent, car le flux d'oxygène était limité dans l'eau. La qualité de l'eau est restée relativement constante pendant l'essai, avec quelques variations en fonction de la concentration en oxygène dissous dans l'eau d'alimentation.

Notamment, les résultats obtenus à partir d'essais cinétiques en milieu saturé et non saturé dans la présente étude, confirme que le contrôle de l'oxydation est assuré par le maintien d'un haut degré de saturation dans le résidu, car l'eau est une excellente barrière à l'oxygène (MEND, 2001b ; Awoh, 2012 ; Ethier, 2018 ; Demers, 2008 ; Aubertin, 2010). Cependant certaines études ont

soulevé que même lors du dépôt des résidus réactifs dans les fosses à ciel ouvert en milieu saturé, l'oxygène dissous dans les eaux souterraines pourrait être une source importante d'oxygène, surtout si les flux hydrogéologiques sont importants (Spiessl et al., 2007).

D'où la nécessité d'étudier l'effet de la concentration d'oxygène dissous en milieu saturé sur l'oxydation et la libération de contaminants. Cette approche semble donc quantifier et estimer (avec plus de précision) la quantité de sulfates générés et de métaux en solution en fonction de la concentration d'oxygène dissous dans l'eau. La précision d'une telle approche devrait cependant être validée avec d'autres types de résidus miniers. Une étude au cas par cas reste fortement recommandée.

7.2.2. Effet de la concentration d'oxygène dissous sur la réaction d'oxydation directe des résidus miniers réactifs en milieu saturé

Les flux gazeux traversant le milieu rocheux fracturé (au-dessus de l'aquifère) pourraient également contribuer à l'oxydation des résidus réactifs déposés dans les fosses (Villain et al., 2015). Par exemple, dans la fosse remblayée de la Mine Solbec, des essais de forage ont été effectués et ont déterminé que les eaux souterraines coulaient à travers les rejets déposés dans la fosse. Sur la base de conductivités hydrauliques de 1×10^{-6} et 1×10^{-7} m/s dans le substrat rocheux fracturé environnant, la vitesse moyenne linéaire des eaux souterraines a été estimée entre 10 et 95 m/an. Le volume total de l'écoulement des eaux souterraines a été estimé à $1,2 \times 10^4$ m³/an = (33 m³/jours). Les eaux interstitielles des rejets miniers submergées contiennent plus de 1 mg/l d'oxygène dissous, ce qui peut provoquer l'oxydation des minéraux sulfureux et peut être, par conséquent, une source de contamination des eaux souterraines (MEND 2015 Report 2.36.1b Solbec Mine).

Dans le présent travail, des tests cinétiques en colonne en milieu saturé ont été effectués au laboratoire et l'eau d'entrée avec différentes concentrations d'oxygène (100% $\pm$ 5% ; 50% $\pm$ 5% ; 0% $\pm$ 5%) a été testée pour déterminer l'effet de la concentration d'oxygène dissous sur l'oxydation et la libération de contaminants. Les résultats obtenus indiquent que les concentrations de sulfates mesurées dans le lixiviat étaient fortement corrélées à la concentration en oxygène de l'eau d'entrée.

La quantité de sulfates générés et de métaux en solution varient linéairement avec la concentration en oxygène dissous dans l'eau ainsi qu'avec la teneur en pyrite. On a aussi noté, au cours des essais, que pour une eau à $0\% \pm 5\% \text{ O}_2$, elle est pratiquement exempte de SO_4^{2-} . L'oxygène dissous en milieu saturé a un effet sur l'oxydation des résidus et une inhibition de la réaction d'oxydation des sulfures en l'absence d' O_2 dissous dans l'eau à un pH de 7,8 est enregistrée.

Par conséquent, la déposition des résidus réactifs dans les fosses en milieu saturé permet de limiter l'oxydation et la génération du DMA, mais pas une inhibition totale de l'oxydation malgré la saturation des résidus. Les eaux interstitielles des rejets miniers submergées peuvent contenir plus de 1 mg/l d'oxygène dissous (Vilain, 2014), ce qui peut provoquer l'oxydation des minéraux sulfureux. L'oxygène dissous présent dans les eaux souterraines ainsi que les flux latéraux d'oxygène à travers l'environnement rocheux fracturé à la périphérie de la fosse qui est relativement perméable peut contribuer à l'oxydation des résidus et peut être, par conséquent, une source de contamination des eaux souterraines.

7.2.3. Évaluation du rôle de l'oxydation indirecte sur le comportement géochimique des mêmes résidus miniers en milieu saturé à pH acide

Notamment, le risque d'oxydation indirecte via le fer ferrique peut être identifié durant le remplissage a posteriori d'une fosse en raison de la pré-oxydation des rejets (déposés temporairement en surface et laissés exposés à l'air) et aussi, dans certains cas, par les murs préoxydés de la fosse (Davis et Ashenberg, 1989; Blowes, 2003; Gammons, 2009). La génération d'acide pourrait alors être accélérée via le fer ferrique (oxydation indirecte).

Des tests cinétiques ont été menés en milieu saturé à pH acide avec différentes concentrations de fer en solution (1500, 1000, 500 et 200 mg/l) pour les mêmes résidus miniers. L'objectif principal était d'évaluer expérimentalement l'effet du fer ferrique en solution présent dans les eaux de la fosse sur l'oxydation indirecte de différents résidus en milieu saturé et acide au moyen d'essais cinétiques au laboratoire (Chapitre 5), et de réaliser une extrapolation de ces résultats à plus grande échelle afin d'évaluer l'ampleur et l'influence des eaux acides contaminées par différentes concentrations du fer ferrique sur la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans une fosse.

Les principaux résultats de ces essais (Chapitre 5) montrent que les concentrations du fer ferreux dans le lixiviat étaient fortement corrélées à la concentration en fer ferrique dans l'eau d'entrée.

La présente étude a démontré que la quantité de fer ferreux (Fe^{2+}) et de sulfates (SO_4^{2-}) libérés lors de l'oxydation indirecte des résidus à pH acide dépendait de la quantité d'agent oxydant (Fe^{3+}) et aussi de la teneur en pyrite dans les résidus. En effet, à faible pH, le fer ferrique peut devenir le principal accepteur d'électrons et contribuer à l'oxydation de la pyrite. Ceci montre que la génération de drainage contaminé par les rejets remblayés pourrait également être occasionnée par les ions ferriques générés par l'oxydation des minéraux sulfureux (ou via la dissolution des oxyhydroxides de fer ferrique accumulés sur les parois des fosses ou dans les rejets eux-mêmes) contenus dans le roc et la génération d'acide s'en trouve multipliée et accélérée via le fer ferrique.

Les résultats des chapitres 4 et 5 ont permis de déterminer l'influence de l'état de saturation du milieu (saturé ou insaturé) ainsi que l'effet du pH (neutre ou acide) et de la composition minéralogique (teneur en pyrite) sur la réactivité des résidus. Par ailleurs, l'effet de la température sur la réaction d'oxydation des résidus n'a pas été pris en compte dans les essais laboratoires ni évaluer dans la simulation numérique. Cependant, la température peut augmenter le taux de réactions d'oxydation des sulfures et favoriser la prolifération de l'activité bactérienne (Baker et Banfield, 2003 ; Plante et al., 2021).

7.2.4. Effet de la codisposition des stériles et des résidus dans des fosses à ciel ouvert pour contrôler la génération de DMA : Étude expérimentale et numérique

Des essais cinétiques avec les mêmes résidus miniers, Laronde et Westwood, ont été réalisés en milieu saturé mais avec codisposition des résidus et du sable plus perméable et non générateur de DMA. La concentration en oxygène dans l'eau entrante a été maintenue autour de $95 \pm 5\%$ dans des conditions saturées (ou 8,72 mg/L pour une température moyenne de 20 °C), et le gradient hydraulique a été modifié pour évaluer son effet sur l'oxydation des résidus et la qualité de l'eau récupérée. Les essais en colonne de laboratoire ont été simulés numériquement à l'aide du modèle de transport réactif et d'écoulement MIN3P. Une fois calibrées, les simulations numériques ont été extrapolées afin d'étudier l'effet de la largeur d'inclusion, du gradient hydraulique et de la composition minéralogique des résidus sur la génération de DMA.

Les principaux résultats des essais cinétiques en codisposition ont montré que l'oxygène n'est pas consommé rapidement pendant les premiers centimètres de la colonne, contrairement aux mêmes essais cinétiques sans codisposition. Un gradient de concentration et une évolution progressive de la consommation d'oxygène, qui dépendaient du gradient hydraulique appliqué et aussi de la composition minéralogique des résidus (Laronde ou Westwood), ont été enregistrés. La surveillance d'autres paramètres tels que les sulfates et la conductivité électrique, a confirmé les mêmes tendances. La concentration de sulfates et de la conductivité électrique varient significativement avec le gradient hydraulique. Plus le gradient hydraulique appliqué est faible, plus la quantité de sulfates libérés dans le milieu et la conductivité électrique mesurée dans le lixiviat en sortie de colonne sont importantes.

La calibration des simulations numériques avec Min3P a été réalisée en se basant sur les méthodes de calibration courantes utilisées pour les modèles de transport réactif. La calibration a été réalisée dans un premier temps sur les paramètres hydrogéologiques afin de reproduire les écoulements et les débits mesurés dans les cellules au laboratoire en fonction du gradient hydraulique appliqué. Une fois le modèle hydrogéologique validé, les paramètres minéralogiques et géochimiques ont été ajoutés (Jauregui et Silva, 2011).

De point de vue hydrogéologique, le modèle numérique était en mesure de reproduire relativement bien les mesures de laboratoire. Les tendances générales sont bien respectées et les vitesses d'écoulement sont assez bien reproduites par les simulations (Chapitre 6). D'un point de vue géochimique, les modèles ont été calibrés à partir des résultats des essais en colonne. Certaines limites et instabilités du code ont été rencontrées, et des hypothèses plus simples se sont avérées nécessaires. La réactivité des minéraux a aussi été compliquée suite aux sensibilités fortes notamment pour les paramètres décrivant la pyrite dans le modèle. Ajoutons à cela l'incertitude liée à la détermination des paramètres de dispersion et de diffusion (non mesurées). La calibration a été réalisée sur les paramètres jugés les plus importants de cette étude, à savoir la concentration d'oxygène à différentes profondeurs, le pH, les sulfates, le cuivre et le calcium. Pour ces paramètres, les simulations avec Min3P ont permis de reproduire assez bien les observations de laboratoire.

En résumé, ces simulations à petite échelle montrent que le code Min3P reproduit assez bien les phénomènes de dilution et de transport des contaminants par advection et dispersion. Cela a

également été confirmé par plusieurs études qui ont utilisé le code MIN3P (Demers et al, 2013, Pabst et al., 2017). Des travaux récents ont montré que ce modèle de transport réactif avec le contrôle d'importants paramètres physicochimiques et une paramétrisation fondée sur des preuves peuvent être utilisés pour expliquer la dynamique du drainage minier acide des stériles à l'échelle du laboratoire et les extrapoler à plus grande échelle (Seigneur et al., 2021). Par ailleurs les processus géochimiques peuvent différer d'un site à l'autre et l'utilisation des mêmes valeurs de calibration à d'autres sites sans étude expérimentale peut être considérée risquée (Demers et al., 2013).

Une extrapolation des résultats à plus grande échelle et plusieurs scénarios ont été simulés et testés à savoir l'effet de la largeur de l'inclusion (10, 20 et 30 m), l'effet de la composition minéralogique (Westwood et Laronde) et l'effet du gradient hydraulique ($i=1$, $i=0.1$ et $i=0.01$).

Il est à noter que plus l'inclusion est large, plus l'oxygène dissous dans le flux d'eau qui traverse la fosse par le chemin préférentiel (inclusion perméable) est protégée durant les premiers mètres. Mais plus le débit d'eau avance, plus l'oxygène est consommé (Diffusion d'oxygène). À la sortie du système, tout l'oxygène est consommé, quelle que soit la largeur de l'inclusion. Certes, les dimensions de l'inclusion ont un effet, mais très local et limité. On observe le gradient d'oxygène quand on zoome sur les premiers mètres de la fosse. Cela signifie que l'oxygène se diffuse dans le système et que l'oxygène dissous à travers l'inclusion pourrait également contribuer à l'oxydation des résidus réactifs déposés dans les fosses.

L'extrapolation à plus grande échelle avec les simulations numériques ont permis d'étendre ces résultats à des cas plus réalistes pour avoir une idée précise de ce qui se passera dans un contexte réel sur le terrain. Les simulations à plus grande échelle ont montré qu'à la sortie de la fosse, tout l'oxygène est consommé quelles que soient la largeur de l'inclusion, la composition minéralogique des résidus et le gradient hydraulique appliqué. On juge par conséquent que l'oxygène se diffuse dans le système et que l'oxygène dissous à travers l'inclusion pourrait également contribuer à l'oxydation des résidus réactifs déposés dans les fosses. L'utilisation d'inclusions avec des stériles plus perméables et géochimiquement inertes est intéressante mais pas suffisante. Il permet de créer un cheminement préférentiel pour le flux d'eau oxygénée et isoler les résidus réactifs, mais il y a une diffusion d'oxygène le long de la fosse.

L'analyse et l'interprétation des résultats expérimentaux et numériques ont montré que l'utilisation d'une inclusion avec un grand contraste de perméabilité par rapport aux résidus permet de créer un

chemin d'écoulement préférentiel pour l'écoulement de l'eau, réduisant ainsi de manière significative (comme prévu) le contact entre l'eau et les résidus. Ces résultats ouvrent une voie pour optimiser la mise en place des stériles miniers dans les fosses afin de limiter la génération de DMA et la contamination du milieu environnant. Cependant, l'absence de phases neutralisantes au sein de l'inclusion provoque une acidification des eaux. Afin d'améliorer la qualité chimique de l'eau circulant dans la fosse, une modification de la composition minéralogique de l'inclusion a été proposée et simulée. Les principaux résultats ont montré que l'ajout de calcite à différentes proportions (CaCO_3 : 10%, 25% et 50%) à la composition minéralogique de l'inclusion a permis d'augmenter les valeurs de pH au sein de l'inclusion et d'activer le mécanisme de neutralisation. La présence de phases neutralisantes au sein de l'inclusion améliorera la qualité chimique de l'eau qui coule dans la fosse. Le pouvoir neutralisant (ou pouvoir tampon) de la calcite est un moyen naturel d'atténuer la génération de DMA (Jambor et Blowes., 1998 ; Lindsay, 2009).

CHAPITRE 8 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

8.1 Conclusions

Le monde est confronté à un défi majeur de transition énergétique qui implique certes le déclin des énergies fossiles, mais fait de plus en plus appel aux ressources minières. L'industrie minière se voit contrainte de déployer davantage de moyens pour extraire des grandes quantités de minerais, mais tout en garantissant une gestion durable de ces déchets afin d'assurer une empreinte environnementale réduite. Pour faire passer le secteur minier au vert, le concept ESG (environnemental, social et gouvernance) oblige l'entreprise minière à déterminer, limiter et maîtriser les impacts de son activité sur la planète.

La déposition des rejets miniers dans les fosses, bien que considérée comme une approche efficace pour isoler les rejets miniers, pourrait engendrer des réactions géochimiques entre les eaux souterraines et les rejets remblayés. Les présents travaux ont permis d'évaluer la stabilité géochimique de résidus miniers réactifs déposés dans les fosses en milieu saturé et non saturé et optimiser leur mise en place afin de contrôler la génération de DMA. Les principales conclusions de cette étude étaient les suivantes:

La réactivité des résidus et le potentiel d'acidification des résidus Laronde et Westwood ont été confirmés par des essais non saturés, où le lixiviat a été caractérisé par un pH bas et des concentrations élevées de sulfate et de métaux.

Le comportement des résidus de Westwood a été marqué par un effet tampon relativement important qui pourrait s'expliquer par la présence de carbonates et une teneur en sulfures plus faibles que les résidus Laronde.

Comme attendu, le comportement géochimique des résidus dans des conditions saturées était significativement différent puisque la saturation en eau permet de réduire significativement le flux d'oxygène. De plus, les concentrations de sulfates mesurées dans les lixiviats étaient fortement corrélées à la concentration en oxygène dissous de l'eau d'entrée.

L'extrapolation de ces données expérimentales à plus grande échelle, en appliquant des gradients hydrauliques réels de fosses ($i=0,001$ à $i=1$), montre que les concentrations de métaux relâchés en milieu non saturé sont bien supérieures aux résidus qui seront déposés dans des fosses en milieu

saturé. Plus le débit hydrogéologique qui traverse la fosse est important, plus la quantité de cuivre et de zinc rejetée est importante.

Les résultats obtenus à partir de tests cinétiques en milieu saturé à pH acide indiquent que la quantité de fer ferreux et de métaux libérés lors de l'oxydation à pH acide dépend de la quantité d'agent oxydant (fer ferrique à 1500, 1000, 500 et 200 mg/L). La concentration de Fe^{3+} en solution a un effet sur le taux d'oxydation des sulfures.

L'étude microbiologique réalisée pour les deux résidus, Laronde et Westwood, nous a montré qu'après l'essai cinétique par le fer ferrique à pH acide, l'activité bactérienne des ferrooxydantes acidophiles est plus importante pour les résidus Laronde, alors que l'activité des sulfooxydantes acidophiles est observée seulement dans les résidus Westwood.

Les essais cinétiques en colonne avec codisposition d'inclusions de roches stériles jouaient un rôle important dans le contrôle des flux d'eau et d'oxygène et sur la stabilité géochimique des rejets miniers déposés dans les fosses. Notamment, la concentration en oxygène mesurée dans la colonne diminue avec l'élévation de la colonne, montrant une consommation progressive par les minéraux sulfurés, contrairement aux essais sans codisposition, où la consommation d'oxygène dissous est quasi instantanée. La concentration en oxygène dans la colonne variait également avec le gradient hydraulique et, pour un même emplacement, plus le gradient était important, plus la concentration en oxygène enregistrée était grande. En d'autres termes, la diffusion de l'oxygène est relativement lente pour un débit d'eau plus rapide.

La réponse géochimique des deux résidus miniers (Laronde et Westwood) à différentes compositions minéralogiques, en codisposition avec le sable géochimiquement inerte lors d'essais cinétiques en milieu saturé, montre que la présence d'inclusions améliore la qualité géochimique des eaux qui traversent les résidus réactifs. Le même comportement a été observé pour les deux résidus, mais pour les résidus Westwood, l'oxygène n'est pas consommé à la même vitesse que pour les résidus Laronde. Ceci peut s'expliquer par le fait que les résidus Westwood sont moins réactifs que les résidus Laronde, donc moins consommateurs d'oxygène.

L'approche de calibration à partir des résultats des essais cinétique avec les résidus Laronde et Westwood permettait de reproduire le comportement hydrogéologique et géochimique des essais réalisés au laboratoire, montrant ainsi une bonne capacité d'extrapolation du code Min3P.

Les simulations numériques à l'échelle d'une fosse ont montré que la largeur de l'inclusion de sable géochimiquement inerte (10, 20 et 30 m) a un effet sur le comportement géochimique de la fosse remblayée avec des résidus réactifs. Il est à noter que plus l'inclusion est importante, plus l'oxygène dissous dans le flux d'eau qui traverse la fosse par le chemin préférentiel (inclusion perméable) est protégé durant les premiers mètres. Mais, plus le débit d'eau avance, plus l'oxygène est consommé (diffusion d'oxygène). À la sortie du système, tout l'oxygène est consommé, quelle que soit la largeur de l'inclusion. Certes, les dimensions de l'inclusion ont un effet, mais très local et limité. On observe le gradient d'oxygène quand on zoome sur les premiers mètres de la fosse. Cela signifie que l'oxygène se diffuse dans le système et que l'oxygène dissous à travers l'inclusion pourrait également contribuer à l'oxydation des résidus réactifs déposés dans les fosses.

Pour l'effet de la composition minéralogique des résidus, les simulations numériques à l'échelle d'une fosse ont montré que plus les résidus remblayés dans la fosse en présence d'inclusion sont réactifs, plus la consommation d'oxygène est rapide pendant les premiers mètres de la fosse remblayée. Cependant, il n'y a pas de différence très significative exploitable pour le choix des critères de rejet. Ceci dit, d'un point de vue géochimique, la composition minéralogique des résidus n'aura pas un grand impact sur la conception de la fosse remblayée avec des résidus réactifs en présence d'inclusion géochimiquement inerte.

Pour l'effet du gradient hydraulique, les simulations numériques à l'échelle d'une fosse ont montré que plus le gradient hydraulique appliqué est faible, plus l'oxygène qui pénètre dans la fosse a le temps de se diffuser et d'être consommé, et les concentrations d'oxygène dissous dans l'eau s'épuisent rapidement. Pour les gradients hydrauliques supérieurs à 1, on observe que l'oxygène n'est pas consommé aussi rapidement que les faibles gradients hydrauliques. Cette variation (gradient d'oxygène) n'est observée que pendant les premiers mètres de la fosse. Quel que soit le gradient hydraulique appliqué, une consommation complète d'oxygène est observée en sortie de fosse. Cela dit, ce paramètre n'a pas d'influence significative sur la conception, d'autant plus qu'il est dicté par le gradient régional.

Ces conclusions restent cependant spécifiques aux résidus testés (Laronde et Westwood) dans le cadre de ce projet et ne sont pas certainement représentatives ou directement utilisées et applicables à d'autres cas. Des analyses supplémentaires et une nouvelle calibration des simulations numériques au cas par cas sont donc fortement recommandées.

8.2 Principales recommandations

A l'issue de ce travail, certaines recommandations et pistes d'études complémentaires peuvent être proposées:

Réaliser des essais à plus grande échelle, dans un premier temps au niveau du laboratoire avec des colonnes (Par exemple : 1 m ou plus), dans un second temps, à l'échelle du terrain pour optimiser les paramètres de conception de l'inclusion (longueur, largeur, nature des matériaux) et connaître l'impact de leur variation sur le comportement géochimique des résidus réactifs en codisposition avec des matériaux inertes.

Choisir un matériau d'inclusion géochimiquement inerte par exemple un sable de silice pure, type (SILICOSIL) pour simplifier le milieu réactif et éviter toutes sortes de contamination. Tout en contrôlant la minéralogie et la granulométrie des particules constituantes.

Varier la granulométrie de l'inclusion au cours de la simulation pour comprendre de façon plus précise l'effet de la granulométrie sur le comportement géochimique des résidus réactifs en codisposition avec des matériaux inertes.

Il serait très utile de faire des simulations en testant plusieurs matériaux avec pouvoir tampon au sein de l'inclusion. La présence de phases neutralisantes est un moyen naturel qui pourra atténuer la génération de DMA (Jambor et Blowes., 1998 ; Lindsay, 2009) et améliorer la qualité chimique de l'eau qui va couler dans la fosse.

Proposer une équation empirique, basée sur de nouveaux résultats expérimentaux, pour quantifier le taux d'oxydation des rejets miniers en fonction de leurs compositions minéralogiques.

Utiliser des codes de calibration automatisée, comme le code PEST (Pabst, 2021), afin de faciliter la calibration des simulations qui impliquent un grand nombre de paramètres et ne pas sous-estimer certains aspects qui pourrait influencer la représentativité des simulations numériques (Demers et al, 2013, Pabst et al., 2017).

Utiliser d'autres techniques d'analyse des sulfates plus sensibles comme la chromatographie ionique serait recommandé afin de diminuer l'incertitude de l'analyse par spectrophotomètre (LaMotte 2000). Tout en s'assurant de la répétabilité de l'analyse (mesurer plusieurs fois le même échantillon et que celui-ci ne varie pas au-delà d'un seuil donné) et sa reproductibilité (mesurer le même échantillon par plusieurs opérateurs et celui-ci ne varie pas au-delà d'un seuil).

8.3 Autres recommandations

Pertinemment, dans les exploitations minières, la déposition des rejets miniers dans les fosses pouvait permettre d'améliorer leur stabilité géochimique en limitant les réactions d'oxydation, mais sous certaines conditions :

- (1) les échanges avec l'atmosphère doivent être contrôlés par la mise en place des recouvrements adaptés.
- (2) le contrôle de l'oxydation doit être assuré par le maintien d'un degré de saturation élevé dans les rejets.
- (3) les grands flux d'eau, favorisés par le roc hautement perméable, peuvent également apporter des quantités importantes d'oxygène dissous, qui peuvent oxyder les rejets remblayés et générer du DMA malgré l'enneigement.
- (4) des approches stratégiques d'élimination doivent être envisagées et planifiées dès le départ des opérations.

On s'attend à ce que les résultats de ce projet permettent de mieux comprendre les phénomènes mis en jeu et les risques associés à la génération du DMA, notamment, l'effet de l'oxygène, soit gazeux à travers le roc fracturé, soit dissous dans l'eau souterraine, sur les rejets déposés dans les fosses, surtout que certaines exploitations ont déjà planifié la déposition des rejets dans les fosses (Westwood-Doyon, Canadian Malartic, Lac Tio, Raglan).

RÉFÉRENCES

- Aachib, M., Aubertin, M., & Mbonimpa, M. (2002). Laboratory Measurements and Predictive Equations for Gas Diffusion Coefficient of Unsaturated Soils. In Proceedings of 55th Canadian Geotechnical Conference and 3rd joint IAH-CNC and CGS Conference, 163-172, (2002).
- Aachib, M., Mbonimpa, M., Aubertin, M. (2004). Measurement and prediction of the oxygen diffusion coefficient in the unsaturated media, with applications to soil covers. *Water, Air and Soil Pollution*, 156, 163-193.
- Akcil, A., & Koldas, S. (2006). Acid Mine Drainage (AMD): causes, treatment and case studies. *Journal of cleaner production*, 14(12-13), 1139-1145.
- Amar, H. (2020). Tri des stériles miniers comme nouvelle approche de gestion intégrée: contrôle du drainage minier et valorisation. Ecole Polytechnique, Montreal (Canada).
- Amos, R. T., D. W. Blowes, B. L. Bailey, D. C. Sego, L. Smith, and A. I. M. Ritchie. 2015. Waste-rock hydrogeology and geochemistry. *Applied Geochemistry* 57: 140–156.
- Aubertin, M., Chapuis, R. P., Bussière, B., & Aachib, M. (1993). Propriétés des résidus miniers utilisés comme matériau de recouvrement pour limiter le drainage minier acide (DMA). In *Geoconfine 93. Symposium international* (pp. 299-308).
- Aubertin, M., Ricard, J.-F., & Chapuis, R. P. (1995, January). Study of capillary properties of mine tailings: measurements and modeling [Paper]. 48th Canadian Geotechnical Conference, Vancouver.
- Aubertin, M., Aachib, M., Bussière, B., & Chapuis, R. P. (1996, January). Recouvrements multicouches avec effets de barrière capillaire pour contrôler le drainage minier acide: étude en laboratoire et in situ [Paper]. Symposium Int. "Exemples majeurs et récents en géotechnique de l'environnement", Paris.

- Aubertin, M., Aachib, M., Monzon, M., Joanes, A. M., Bussière, B., & Chapuis, R. P. (1997). Étude de laboratoire sur l'efficacité des barrières de recouvrement construites à partir de résidus miniers. Mine Environment Neutral Drainage (MEND) Report, 2.
- Aubertin, M. (1999). Étude sur les barrières sèches construites à partir de résidus miniers : rapport final. (Technical Report n° 1899).
- Aubertin, M., Li, L., & Simon, R. (2001, January). Evaluating the large scale strength of rock mass with the MSDPu criterion [Paper]. Rock mechanics in the national interest: 38th US rock mech. symposium (DC ROcks 2001).
- Aubertin, M., Mbonimpa, M., Jolette, D., Bussière, B., Chapuis, R. P., James, M., Riffon, O. (2002). Stabilité géotechnique des ouvrages de retenue pour les résidus miniers: problèmes persistants et méthodes de contrôle. In Défis & Perspectives: Symposium.
- Aubertin, M., Bussière, B., Bernier, L., Chapuis, R., Julien, M., Belem, T., Li, L. (2002). La gestion des rejets miniers dans un contexte de développement durable et de protection de l'environnement. Congrès annuel de la société canadienne de génie civil, Montréal, Québec, Canada, 5-8.
- Aubertin, M., Fala, O., Molson, J., Gamache-Rochette, A., Lahmira, B., Martin, Wilson, G. W. (2005, May). Évaluation du comportement hydrogéologique et géochimique des haldes à stériles. In Proceedings of the Symposium sur l'Environnement et les Mines, Rouyn-Noranda, CD-Rom, CIM.
- Aubertin, M., Fala, O., Molson, J., Chouteau, M., Anterrieu, O., Hernandez, M. A., Chapuis, R. P., Bussière, B., Lahmira, B. & Lefebvre, R. (2008). Caractérisation du comportement hydrogéologique et géochimique des haldes à stériles. Comptes-rendus du Symposium 2008 sur l'Environnement et les Mines. Rouyn-Noranda, Québec, Canada, CD-ROM.
- Aubertin, T. Pabst B. Bussière, M. James, M. Mbonimpa, M. Benzaazoua, A. Maqsoud (2015). Revue de meilleures pratiques de restauration des sites d'entreposage de rejets miniers générateurs de DMA. Département des génies civil, géologique et des mines, École Polytechnique de Montréal.

- Aubertin, M., Bussière, B., Pabst, T., James, M., & Mbonimpa, M. (2016). Review of the reclamation techniques for acid-generating mine wastes upon closure of disposal sites. In *Geo-Chicago 2016* (pp. 343-358).
- Alpers, C. N., Blowes, D. W., Nordstrom, D. K., & Jambor, J. L. (1994). Secondary minerals and acid mine-water chemistry. *Environmental Geochemistry. Mine Wastes*, ed. JL Jambor and DW Blowes, 247-270. Waterloo, Ontario: Mineralogical Society of Canada.
- Alpers, C. N., Nordstrom, D. K. (1999). Geochemical modeling of water-rock interactions in mining environments. *The environmental geochemistry of mineral deposits. Part A: processes, techniques, and health issues*, 6, 289-323.
- Al, T.A., Blowes, D.W., Jambor, J.L., 1994. The pore water geochemistry of the Cu–Zn mine tailings at Kidd Creek, near Timmins, Ontario, Canada. *International Land Reclamation Mine Drainage Conference and Third International Conference on the Abatement of Acidic Drainage*, U.S. Bureau of Mines Special Publication SP 06A-94 2, pp. 208–217.
- Andre, B. J. (2009). Generation of acid mine drainage: reactive transport models incorporating geochemical and microbial kinetics (Doctoral dissertation, Architectural Engineering).
- ASTM D854 (2005). *Standard Test Methods For Specific Gravity Of Soil Solids By Water Pycnometer*, ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM (2006). *Standard Test Method for Permeability of Granular Soils (Constant Head) (D2434)*, ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM (2006) *Standard Test Method for Leaching Solid Material in a Column Apparatus (D4874-95)*, ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM (2007a). *Standard Test Method for Measurement of Hydraulic Conductivity of Porous Material Using a Rigid-Wall, Compaction-Mold Permeameter (D5856)*, ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM (2007b). *Standard Test Method for Particle-Size Analysis of Soils (D422)*, ASTM International, West Conshohocken, PA.

- ASTM (2007c). Standard Test Method for Density, Relative Density (Specific Gravity), and Absorption of Coarse Aggregate (C127), ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM D1498 (2008). Standard Test Method for Oxidation-Reduction Potential of Water, , ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM D5744 (2013). Standard Test Method for Laboratory Weathering of Solid Materials Using a Humidity Cell, ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM D7928 (2017). Standard Test Method for Particle-Size Distribution (Gradation) of Fine-Grained Soils Using the Sedimentation (Hydrometer) Analysis, ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM C702/C702M-18. Standard Practice for Reducing Samples of Aggregate to Testing Size, ASTM International, West Conshohocken, PA.
- Averjanov, S.F. (1950). About permeability of subsurface soils in case of incomplete saturation. English Collection 7, 19–21.
- Awoh, A. S. (2012). Étude expérimentale du comportement géochimique de résidus miniers hautement sulfureux sous un recouvrement en eau. Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (Canada).
- Awoh, A. S., Mbonimpa, M., Bussière, B. (2013). Determination of the reaction rate coefficient of sulphide mine tailings deposited under water. *Journal of environmental management*, 128, 1023-1032.
- Ayres, B., L. Lantaigne and M. O’Kane 2005. Design and Construction of the Backfilled Pit Cover System at Whistle Mine, Canada: A Case Study. *Securing the Future: Skelleftea*. June 27 – July 1 2005.
- Ayres, B.K., L. Lantaigne, Q. Smith and M. O’Kane 2007. Closure Planning and Implementation at CVRD Inco’s Whistle Mine, Ontario, Canada. *Mine Closure*.

- Ayres, B.K. et al. 2012. Whistle Mine Backfilled Pit Dry Cover Case Study – Performance Based on Six Years of Field Monitoring. Presented at the 9th International Conference on Acid Rock Drainage, Ottawa, Canada, May 20-26, 2012.
- Azam, S., Wilson, G. W., Herasymuik, G., Nichol, C. & Barbour, L. S. (2007). Hydrogeological behavior 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.
- Banwart, S. A., Evans, K. A., & Croxford, S. (2002). Predicting mineral weathering rates at field scale for mine water risk assessment. Geological Society, London, Special Publications, 198(1), 137-157.
- Barbour, S. L. (1998). Nineteenth Canadian Geotechnical Colloquium: The soil-water characteristic curve: A historical perspective. *Canadian Geotechnical Journal*, 35, 873 - 894.
- Barbour, S. L., Hendry, M. J., Smith, J. L., Beckie, R. D. & Wilson, G. W. (2001). A research partnership program in the mining industry for waste rock hydrology. Workshop Notes (Unpublished). University of Saskatchewan.
- Basquet, R., Bourbiaux, B. J., & Cohen, C. E. (2005, January). Fracture flow property identification: an optimized implementation of discrete fracture network models. In SPE Middle East Oil and Gas Show and Conference. Society of Petroleum Engineers.
- Baker, B.J. and Banfield, J.F. (2003). Microbial communities in mine drainage. *FEMS Microbiology Ecology*, Volume 44, 2, p. 139-152.
- Bear, J. (1993). Modeling Flow and Contaminant Transport in Fractured Rocks. Sous la direction de Bear, J., Tsang, C.F. et Marsily, G. San Diego: Academic Press, Inc.
- Ben Abdelghani, F. (2009). Analyse numérique des écoulements et du transport de contaminants dans les rejets miniers entreposés dans les massifs rocheux fracturés (Doctoral dissertation, École Polytechnique de Montréal).
- Ben Abdelghani, F., M. Aubertin, R. Simon, and R. Therrien. 2015. Numerical simulations of water flow and contaminants transport near mining wastes disposed in a fracture rock mass. *International Journal of Mining Science and Technology* 25, no. 1: 37–45.

- Benlahcen, A. (2003). Étude des processus chimio-hydro-mécaniques dans un massif rocheux fracturé perturbé par une exploitation minière: exemple de la mine Bouchard-Hébert en Abitibi (Québec), Canada. Université du Québec à Chicoutimi.
- Belem, T., and M. Benzaazoua. 2008. Underground mine paste backfill technology: Applications and design methods. *Geotechnical and Geological Engineering* 26, no. 2: 147–174.
- Belfadhel, M. B. 2000. Méthodes de gestion et de déclasement des résidus miniers d'uranium au Canada. In *Proceedings of 53rd Canadian Geotechnical Conference*, 675–682.
- Belzile, N., Maki, Y. -W., Chen, D. and Goldsack, D. (1997). Inhibition of pyrite oxidation by surface treatment. *The Science of Total Environment*, 196: p. 177-196.
- Berkowitz, B. (2002). Characterizing flow and transport in fractured geological media: A review. *Advances in water resources*, 25(8), 861-884.
- Benzaazoua, M., Bussière, B., Dagenais, A. M. (2001). Comparison of kinetic tests for sulfide mine tailings. *Proceedings of tailings and mine waste '01*, Balkema, Fort Collins, 263-272.
- Benzaazoua, M., Belem, T., Bussière, B. (2002). Chemical factors that influence the performance of mine sulphidic paste backfill. *Cement and Concrete Research*, 32(7), 1133-1144.
- Benzaazoua, M., Bussière, B., Dagenais, A., Archambault, M. (2004). Kinetic tests comparison and interpretation for prediction of the Joutel tailings acid generation potential. *Environmental Geology*, 46(8), 1086-1101.
- Benzaazoua, M., Bussière, B., Demers, I., Aubertin, M., Fried, É., & Blier, A. (2008). Integrated mine tailings management by combining environmental desulphurization and cemented paste backfill: Application to mine Doyon, Quebec, Canada. *Minerals Engineering*, 21(4), 330-340.
- Blanchette, M.C., Davé, N.K., Kwong, Y.T.J., Tisch, B., 2001. Evaluation of Man-made Subaqueous Disposal Option as a Method of Controlling Oxidation of Sulfide Minerals: Column Studies, p. 112. MEND report 2.12.1e.

- Blowes et al., 1992 D.W Blowes, J.L Jambor, E.C Appleyard, E.J Reardon, J.A Cherry Temporal observation of the geochemistry and mineralogy of a sulfide-rich mine-tailings impoundment, Heath Steele Mines, New Brunswick Explore. Mining Geol., 1 (1992), pp. 252–264
- Blowes, D. W., Jambor, J., Alpers, C. N. (1994). The environmental geochemistry of sulfide mine-wastes (Vol. 22). Mineralogical Association of Canada.
- Blowes et al., 1995 D.W Blowes, T Al, L Lortie, W.D Gould, J.L Jambor Microbiological, chemical and mineralogical characterization of the Kidd Cree Mine Tailings Impoundment, Timmins area, Ontario Geomicrobiology. J., 13 (1995), pp. 13–31
- Blowes, D. W., Ptacek, C. J., Jambor, J., Weisener, C. G. (2003). The geochemistry of acid mine drainage. Treatise on geochemistry, 9, 612.
- Blowes, D. W., C. J. Ptacek, J. L. Jambor, et al. 2014. 11.5 - The geochemistry of acid mine drainage. In Treatise on geochemistry, 2nd ed., ed. K. Turekian and H. Holland, 131–190. Oxford: Elsevier.
- Boon, M. (2001). The mechanism of direct and indirect bacterial oxidation of sulphide minerals. Hydrometallurgy, 62(1), 67-70.
- Bouzahzah, H., Benzaazoua, M., Bussière, B. (2012). Modification and automation of the humidity cell test protocol to favor tailings reactivity. USB Proceedings of 9th ICARD, Ottawa, ON, Canada, paper, 89.
- Bouzahzah, H. (2013). Modification et amélioration des tests statiques et cinétiques pour une prédiction fiable du drainage minier acide (Doctoral dissertation, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue).
- Bouzahzah, H., Benzaazoua, M., Bussière, B., Plante, B. (2014). Prediction of acid mine drainage: importance of mineralogy and the test protocols for static and kinetic tests. Mine Water and the Environment, 33(1), 54-65.

- Bouzahzah, H., Benzaazoua, M., Bussière, B., Plante, B. (2015). ASTM normalized humidity cell kinetic test: protocol improvements for optimal sulfide tailings reactivity. *Mine Water and the Environment*, 34(3), 242-257.
- Bowell, R. J., Parshley, J. V. (2005). Control of pit-lake water chemistry by secondary minerals, Summer Camp pit, Getchell mine, Nevada. *Chemical Geology*, 215(1), 373-385.
- Brown A. D. and Jurinak J. J. (1989) Pyrite oxidation in aqueous mixtures. *J. Environ. Qual.* 18, 545–550.
- Bussière, B. (2007). Colloquium 2004: Hydro geotechnical properties of hard rock tailings from metal mines and emerging geo environmental disposal approaches. *Canadian Geotechnical Journal*, 44(9), 1019-1052.
- Bussière, B., Demers, I., Dawood, I., Plante, B., Aubertin, M., Peregoedova, A., Pepin, G., Lessard, G., Intissar, R., Benzaazoua, M., Molson, J., Chouteau, M., Zagury, G., Monzon, M. & Laflamme, D. (2011). Comportement géochimique et hydrogéologique des stériles de la mine Lac Tio. *Comptes-rendus du Symposium 2011 sur l'Environnement et les Mines*. Rouyn-Noranda, Québec, Canada.
- Bussière, B., Aubertin, M., Zagury, G. J., Potvin, R., & Benzaazoua, M. (2005, May). Principaux défis et pistes de solution pour la restauration des aires d'entreposage de rejets miniers abandonnées. In *Manuel sur CD-Rom Proc, Symp.*
- Campbell, G.S. (1974). A simple method for determining unsaturated conductivity from moisture retention data. *Soil Sci.*, 117, 311–314.
- Campbell, G.S. (1985). *Soil physics with BASIC*. Developments in soil science, 14.
- Cameco. Rabbit Lake Operations Annual Report 2008. Cameco. 2009.
- Cameco. Rabbit Lake Tailings North Pit Expansion Project- Project Description. June 2011.
- Castro, J. M., and J. N. Moore. (2000) Pit lakes: their characteristics and the potential for their remediation, *Environ. Geol.* 39, 1254-1260.

- Castro, J. M., Wielinga, B. W., Gannon, J. E., Moore, J. N. (1999). Stimulation of sulfate-reducing bacteria in lake water from a former open-pit mine through addition of organic wastes. *Water Environment Research*, 71(2), 218-223.
- Castendyk, D. N., Eary, L. E. (Eds.). (2009). *Mine pit lakes: characteristics, predictive modeling, and sustainability* (Vol. 3).
- Catalan, L.J. and G. Yin. Comparison of Calcite to Quicklime for Amending Partially Oxidized Sulfidic Mine Tailings before Flooding. *Environment, Science and Technology*. May 2010.
- C. D. McCullough (2008) Approaches to remediation of acid mine drainage water in pit lakes, *International Journal of Mining, Reclamation and Environment*, 22:2, 105-119.
- Chapuis, R.P. and Aubertin, M. (2003). On the use of Kozeny Carman Equation to predict the hydraulic conductivity of soils. *Can. Geotech. J.*, 40 (3): p.606-618.
- Chapuis, R.P. (2004). Predicting the Saturated Hydraulic Conductivity of Sand and Gravel Using Effective Diameter and Void Ratio. *Can. Geotech. J.*, 41(5), p. 787-795.
- Chapuis, R. P., Masse, I., Madinier, B., Aubertin, M. (2006, October). Essai de drainage en colonne pour obtenir les propriétés non saturées de matériaux grossiers. In *Sea to Sky Geotechnique—the 59 th Canadian Geotechnical Conference* (pp. 905-912).
- Charbonneau. (2014). *Analyse des pratiques de valorisation des rejets miniers*. Université de Sherbrooke. Rapport de Maîtrise.
- Crowder, J., Grabinsky, M. and Klein, K. (2002). Laboratory characterization of tailings paste for surface disposal. 55th Canadian Geotechnical Conference, Niagara Falls, Canada.
- Crundwell, F. K. (2003). How do bacteria interact with minerals? *Hydrometallurgy*, 71(1), 75-81.
- Crusius, J., Dunbar, D., McNee, J. J. (2002). Predictions of pit-lake water column properties using a coupled mixing and geochemical speciation model. *Transactions- society for mining metallurgy and exploration incorporated*, 312, 49-56.

- Dagenais, A. M. (2005). Contrôle du drainage minier acide basé sur les effets de barrières capillaires (Doctoral dissertation, Ph. D. Thesis, Mineral Engineering Department, École Polytechnique de Montréal, Qc).
- Daskalakis K. D. and Helz G. R. (1993). The solubility of sphalerite (ZnS) in sulfidic solutions at 25 8C and 1 atm pressure. *Géochimie. Cosmochim. Acta* 57, 4923–4931.
- Davis, A., Ashenberg, D. (1989). The aqueous geochemistry of the Berkeley pit, Butte, Montana, USA. *Applied Geochemistry*, 4(1), 23-36.
- Day, S. J. et R. J. Howell (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.
- De Dreuzy, J.-R., et al. (2001b), Hydraulic Properties of Two-Dimensional Random Fracture Networks following a Power Law Length Distribution 2. Permeability of Networks Based on Lognormal Distribution of Apertures, *Water Resour. Res.*, 37(8).
- Demers, I., Bussière, B., Benzaazoua, M., Mbonimpa, M., & Blier, A. (2008). Column test investigation on the performance of monolayer covers made of desulphurized tailings to prevent acid mine drainage. *Minerals Engineering*, 21(4), 317-329.
- Demers, I., Bussière, B., Aachib, M., Aubertin, M. (2011). Repeatability evaluation of instrumented column tests in cover efficiency evaluation for the prevention of acid mine drainage. *Water, Air, & Soil Pollution*, 219(1-4), 113-128.
- DeSisto, S. L., Jamieson, H. E., & Parsons, M. B. (2011). Influence of hardpan layers on arsenic mobility in historical gold mine tailings. *Applied Geochemistry*, 26(12), 2004-2018.
- Dobchuk, B., Nichol, C., Wilson, G. W., Aubertin, M. (2013). Evaluation of a single-layer desulphurized tailings cover. *Canadian Geotechnical Journal*, 50(7), 777-792.
- Dunbar, D., Pietersb, R. (2006). Modeling a Physical Mechanism for Removal of Trace Elements from Pit Lake Surface Waters. *Mine Water and the Environment*, 563-566.

- Elberling, B. Nicholson, R.V et David, D. (1993). Field evaluation of sulphide oxidation rates. *Nordic Hydrology*, 24:323-338.
- Elberling, B. Temperature and oxygen control on pyrite oxidation in frozen mine tailings B Elberling Cold Regions Science and Technology, 2005. Elsevier.
- Elghali, A., M. Benzaazoua, B. Bussière, and T. Genty. 2019c. Spatial mapping of acidity and geochemical properties of oxidized tailings within the former Eagle/Telbel mine site. *Minerals* 9, no. 3. <https://doi.org/10.3390/min9030180>
- Elghali, A., Benzaazoua, M., Bouzahzah, H., Bussière, B., & Villarraga-Gómez, H. (2018). Determination of the available acid-generating potential of waste rock, part I: Mineralogical approach. *Applied Geochemistry*, 99, 31-41.
- Ennaciri S. (2000). Impact de l'activité minière sur l'environnement. Mémoire de DESA. Université Mohammed V. École Mohammadia d'ingénieurs Rabat.
- Erguler, Z. A., and G. Kalyoncu Erguler. 2015. The effect of particle size on acid mine drainage generation: Kinetic column tests. *Minerals Engineering* 76: 154–167.
- Essayad, K., Pabst, T., Chapuis, R. P., & Aubertin, M. (2018). An experimental study of tailings migration through waste rock inclusions.
- Ethier, M. P. (2011). Évaluation du comportement géochimique en conditions normale et froides de différents stériles présents sur le site de la mine Raglan (Doctoral dissertation, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue).
- Evangelou, V.P., Zhang, Y.L. (1995). A review, pyrite-oxidation mechanisms and acid mine drainage prevention. *Critical Rev. Environ. Sci. Technol.*, 25, 141-199.
- Fala, O. (2002). Étude des écoulements non saturés dans les haldes à stériles à l'aide de simulations numériques. Mémoire de maîtrise (M.Sc.A. A), Génie Minéral, Dépt. CGM, École Polytechnique de Montréal, 295p.

- Fala, O. (2008). Analyses des conditions d'écoulement non saturés dans les haldes à stériles. Doctoral Thesis, Département de Génie Civil Géologique et des Mines, École Polytechnique de Montréal, QC.
- Fandrich, R., Gu, Y., Burrows, D., & Moeller, K. (2007). Modern SEM-based mineral liberation analysis. *International Journal of Mineral Processing*, 84(1-4), 310-320.
- Ferdosi, B., M. James, and M. Aubertin. 2015a. Investigation of the effect of waste rock inclusions configuration on the seismic response of a tailings impoundment. *Geotechnical and Geological Engineering* 33, no. 6: 1519–1537.
- Ferdosi, B., M. James, and M. Aubertin. 2015b. Effect of waste rock inclusions on the seismic stability of an upstream raised tailings impoundment: A numerical investigation. *Canadian Geotechnical Journal* 52, no. 12: 1930–1944.
- Ferroni, G. D., Leduc, L. G., Todd, M. (1986). Isolation and temperature characterization of psychrotrophic strains of *Thiobacillus ferrooxidans* from the environment of a uranium mine. *The Journal of General and Applied Microbiology*, 32(3), 169-175.
- Gale, J. E. 1982. The effects of fracture type (induced versus natural) on the stress. Fracture-closure, fracture-permeability relationships. *Proceedings 23rd U.S. Rock Mechanics Symposium*, Berkeley, California, 290-298.
- Gale, J. E. et Reardon, E. J. 1984. Effects of groundwater geochemistry on the permeability of grouted fractures. *Can. Geotech. J.*, 21: 8-20.
- Gale, J. E., Macleo, R. et LE Mesurrier, P. 1990. Site characterization and validation. Measurement of flowrate, solute velocities and aperture-variation in natural fractures as function of normal and shear stress, stage 3. Technical Report Stripa Project 90-11, SKB, Stockholm.
- Gamache-Rochette, A. (2004). Une étude de caractérisation en laboratoire et sur le terrain des écoulements de l'eau dans les roches stériles. Mémoire de maîtrise. Département des génies civil, géologique et des mines. École Polytechnique de Montréal, Canada.
- Gammons, C. H., Wood, S. A., Jonas, J. P., Madison, J. P. (2003). Geochemistry of the rare-earth

- elements and uranium in the acidic Berkeley Pit lake, Butte, Montana. *Chemical Geology*, 198(3), 269-288.
- Gammons, C., and T. Duaime. (2006) Long Term Changes in the Limnology and Geochemistry of the Berkeley Pit Lake, Butte, Montana, *Mine Water and the Environment* 25, 76-85.
- Gammons, C. H., Harris, L. N., Castro, J. M., Cott, P. A., Hanna, B. W. (2009). Creating Lakes from Open Pit Mines: Processes and Considerations, Emphasis on Northern Environments.
- González, R. M., Olias, M., Macias, F., Cánovas, C. R., & de Villarán, R. F. (2018). Hydrological characterization and prediction of flood levels of acidic pit lakes in the Tharsis mines, Iberian Pyrite Belt. *Journal of Hydrology*, 566, 807-817.
- Grabinsky, M.M., Theriault, J. and Welch, D. (2002). An overview of paste and thickened tailing disposed on surface. Symposium 2002. Rouyn-Noranda sur l'environnement et les mines. 3,4 et 5 Novembre 2002, p.533-541.
- Graupner, T., Kassahun, A., Rammlmair, D., Meima, J. A., Kock, D., Furche, M., ... & Melcher, F. (2007). Formation of sequences of cemented layers and hardpans within sulfide-bearing mine tailings (mine district Freiberg, Germany). *Applied Geochemistry*, 22(11), 2486-2508.
- Gunter, W. D., Perkins, E. H., Hutcheon, I. (2000). Aquifer disposal of acid gases: modelling of water-rock reactions for trapping of acid wastes. *Applied geochemistry*, 15(8), 1085-1095.
- Hansen, C. M. (2007). Hansen solubility parameters: a user's handbook. CRC press.
- Hard, B. C., Friedrich, S., Babel, W. (1997). Bioremediation of acid mine water using facultatively methylotrophic metal-tolerant sulfate-reducing bacteria. *Microbiological research*, 152(1), 65-73.
- Heidel, C., Tichomirowa, M. (2010). The role of dissolved molecular oxygen in abiotic pyrite oxidation under acid pH conditions—Experiments with 18 O-enriched molecular oxygen. *Applied Geochemistry*, 25(11), 1664-1675.

- Hernandez, M. A. (2007). Une étude expérimentale des propriétés hydriques des roches stériles et autres matériaux à granulométrie étalée. Mémoire de maîtrise. Département des génies civil, géologique et des mines. École Polytechnique de Montréal, Canada.
- Hillel, D. (1998). *Environmental Soil Physics: Fundamentals, Applications, and Environmental Considerations*. Academic Press.
- Holmes PR, Crundwell FK (2000) The kinetics of the oxidation of pyrite by ferric ions and dissolved oxygen: an electrochemical study. *Geochim Cosmochim Acta* 64:263–274
- Hulshof, A. H., Blowes, D. W., Gould, W. D. (2006). Evaluation of in situ layers for treatment of acid mine drainage: a field comparison. *Water research*, 40(9), 1816-1826.
- Jambor, 1987 Jambor, J.L., 1987. Character and depth of oxidation of reactive acid tailings at the Waite Amulet minesite, Noranda, Quebec. Energy, Mines and Resources, Can., CANMET Div. Rep. MSL 87-97 (IR).
- Jambor and Owens, 1993, Owens, D.R., 1993. Mineralogy of the tailings impoundment at the former Cu–Ni deposit of Nickel Rim Mines, eastern edge of the Sudbury Structure, Ontario. Energy, Mines and Resources, Can., CANMET Div. Rep. MSL 93-4 (CF).
- Jambor, J. L. (1994). Mineralogy of sulfide-rich tailings and their oxidation products. *The environmental geochemistry of sulfide mine-wastes*, 22, 59-102.
- Jambor, J.L. (2000). The relationship of mineralogy to acid- and neutralization-potential values in ARD. In *Environmental Mineralogy, Microbial Interactions, Anthropogenic Influences, Contaminated Land and Waste Management*. The Mineralogical Society Series, 9, 141-160.
- Jambor, J.L. (2003). Chapter 6, Mine-waste mineralogy and mineralogical perspectives of acid-base accounting. In *Environmental Aspects of Mine Wastes*. Edited by J.L. Jambor, D.W. Blowes, A.I.M. Ritchie.

- James, M., et Aubertin, M. (2009). The use of waste rock inclusions in tailings impoundments to improve geotechnical and environmental performance, *Tailings and Mine Waste 2009*, 233-245.
- James, M. and Aubertin, A. 2010. On the dynamic response of tailings and the stability of tailings impoundments for hard rock mines. *Geotechnical News*, 23, (3), 39–43.
- James, M. and Aubertin, A. 2012. The use of waste rock inclusions to improve the seismic stability of tailings impoundments, *Proceedings of the GeoCongress-2012, Okland*, 4166–4175.
- James, M., Aubertin, A. and Bussi re, B. 2013. On the use of waste rock inclusions to improve the performance of tailings impoundments, *Proceedings of the 18th International Conference Soil Mechanics and Geotechnical Engineering, Paris, France*, 735–738.
- Janzen, M. P., Nicholson, R. V., Scharer, J. M. (2000). Pyrrhotite reaction kinetics: reaction rates for oxidation by oxygen, ferric iron, and for nonoxidative dissolution. *Geochemical et Cosmochimica Acta*, 9(64), 1511-1522.
- Javadi, M. (2019). Reactive transport modeling of unsaturated hydrology and geochemistry of neutral and acid rock drainage in highly heterogeneous mine waste rock at the Antamina Mine, Peru (T). University of British Columbia.
- Johnson, D. B. (2003). Chemical and microbiological characteristics of mineral spoils and drainage waters at abandoned coal and metal mines. *Water, Air and Soil Pollution: Focus*, 3(1), 47-66.
- Jurjovec, C.J. Ptacek, D.W. Blowes. (2002) Acid neutralization mechanisms and metal release in mine tailings: a laboratory column experiment *Geochim. Cosmochim.*
- Kalonji, Alex Kabambi (2014).  tude du comportement hydrog ologique de couvertures avec effet de barri re capillaire faites enti rement de mat riaux miniers. M moire. Rouyn-Noranda, Universit  du Qu bec en Abitibi-T miscamingue.

- Kalonji-Kabambi, A., Demers, I., & Bussière, B. (2020). Reactive transport modeling of the geochemical behavior of highly reactive tailings in different environmental conditions. *Applied Geochemistry*, 122, 104761.
- Kleinmann, R. L. P., Crerar, D. A., Pacelli, R. R. (1981). Biogeochemistry of acid mine drainage and a method to control acid formation. *Min. Eng.(NY);(United States)*, 33(3).
- Kleinmann, R. L. P., Hedin, R. S., Nairn, R. W. (1998). Treatment of mine drainage by anoxic limestone drains and constructed wetlands. In *Acidic Mining Lakes* (pp. 303-319). Springer Berlin Heidelberg.
- Kogel, J. E., & Lewis, S. A. (2001). Baseline studies of the clay minerals society source clays: Chemical analysis by inductively coupled plasma-mass spectroscopy (ICP-MS). *Clays and Clay Minerals*, 49(5), 387-392.
- Kovacs, G. (1981). *Seepage hydraulics*. Elsevier Science Publishers, Amsterdam.
- Kozeny, J. (1953). *Hydraulics*. Elsevier Scientific Publication, Amsterdam.
- Kuang, J. L., Huang, L. N., Chen, L. X., Hua, Z. S., Li, S. J., Hu, M. & Shu, W. S. (2013). Contemporary environmental variation determines microbial diversity patterns in acid mine drainage. *The ISME journal*, 7(5), 1038-1050.
- Kumar, R. N., McCullough, C. D., Lund, M. A. (2010). Water resources in Australian mine pit lakes. *Mining Technology*, 118(3-4), 205-211.
- Kwong, Y.T.J. (1993). Prediction and prevention of acid rock drainage from a geological and mineralogical perspective. MEND Project 1.31.1, NRC, Ottawa, ON.
- Kwong, E.C.M., (1995). Abiotic and biotic pyrrhotite dissolution. MASc thesis. University of Waterloo, Waterloo, ON.
- Lahmira, B., R. Lefebvre, M. Aubertin, and B. Bussière. 2016. Effect of heterogeneity and anisotropy related to the construction method on transfer processes in waste rock piles. *Journal of Contaminant Hydrology* 184: 35–49.

- Lahmira, B., R. Lefebvre, M. Aubertin, and B. Bussière. 2017. Effect of material variability and compacted layers on transfer processes in heterogeneous waste rock piles. *Journal of Contaminant Hydrology* 204: 66–78.
- Lamontagne, A., Fortin, S., Poulin, R., Tasse, N., & Lefebvre, R. (2000, May). Layered co-mingling for the construction of waste rock piles as a method to mitigate acid mine drainage—laboratory investigations. In *Proceedings of the 5th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD 2000)*, Denver, Colo (pp. 21-24).
- Lapakko, K. (2002). Metal mine rock and waste characterization tools: an overview. *Mining, Minerals and Sustainable Development*, 67, 1-30.
- Leduc, L.G., and Ferroni, G.D. (1994). The chemo lithotrophic bacterium *Thiobacillus ferrooxidans*. *FEMS Microbial. Rev AA*: 103-120.
- Leduc, D., Leduc, L.G., and Ferroni, G.D. (2001). Quantification of bacterial populations indigenous to acidic drainage streams. *Water, Air, and Soil Pollution*, 135: 1-21.
- Lefebvre, R. (1994). Caractérisation et modélisation du drainage minier acide dans les haldes à stériles. Thèse PhD, Université Laval.
- Lefebvre, R., Hockley, D., Smolensky, J., & Gélinas, P. (2001). Multiphase transfer processes in waste rock piles producing acid mine drainage: 1: Conceptual model and system characterization. *Journal of Contaminant Hydrology*, 52(1), 137-164.
- Le Goc, R. (2009). Caractérisation et modélisation des écoulements dans les milieux fracturés (Doctoral dissertation, Université Rennes 1).
- Le Goc, R., & Darcel, C. (2013). A model of fracture nucleation, growth and arrest, and consequences for fracture density and scaling. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 118(4), 1393-1407.
- Lessard, G. (2011). Essais d'infiltration sur la halde à stériles de la mine Tio, Havre-St-Pierre. Rapport de maîtrise. Département des génies civil, géologique et des mines. École Polytechnique de Montréal, Canada.

- Lévesque, R. T. (2019). Consolidation Des résidus Miniers Dans Les Fosses En présence D'inclusions De Roches stériles (Doctoral dissertation, Ecole Polytechnique, Montreal (Canada)).
- Lévesque Michaud, M. (2016). Développement d'une méthode de prédiction cinétique du drainage neutre contaminé avec agent complexant: application au projet minier blackrock (Doctoral dissertation, École Polytechnique de Montréal).
- Levy, D.B., Custis, K.H., Casey, W.H., Rock, P.A., 1997. The aqueous geochemistry of the abandoned Spenceville copper pit, Nevada County, California. *J. Environ. Qual.* 26, 233–243.
- Lichtner, P. C. (1996). Continuum formulation of multicomponent-multiphase reactive transport. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 34(1), 1-81.
- Lindsay, M. B., Condon, P. D., Jambor, J. L., Lear, K. G., Blowes, D. W., Ptacek, C. J. (2009). Mineralogical, geochemical, and microbial investigation of a sulfide-rich tailings deposit characterized by neutral drainage. *Applied Geochemistry*, 24(12), 2212-2221.
- Lindsay, M. B., Mayer, K. U., Beckie, R. D., Norland, K. L., Warren, L. A., Southam, G. (2014). Acidic microenvironments in waste rock characterized by neutral drainage: Bacteria–mineral interactions at sulfide surfaces. *Minerals*, 4(1), 170-190.
- Lindsay, M. B., Moncur, M. C., Bain, J. G., Jambor, J. L., Ptacek, C. J., Blowes, D. W. (2015). Geochemical and mineralogical aspects of sulfide mine tailings. *Applied Geochemistry*, 57, 157-177.
- Lin Li, Ian Bergeron, Ahmad Ghahreman. The Robert M. Buchan Department of Mining Engineering, Queen's University, ON, Kingston, K7L 3N6, Canada. The effect of temperature on the kinetics of the ferric-ferrous redox couple on pyrite. June 2017.
- Lottermoser, B. G., & Ashley, P. M. (2006). Mobility and retention of trace elements in hardpan-cemented cassiterite tailings, north Queensland, Australia. *Environmental Geology*, 50(6), 835-846.

- Lottermoser BG (2010) Mine wastes: characterization, treatment and environmental impacts, 3rd. Springer, Berlin 400 pp
- Lottermoser, B. G. (2011). Recycling, reuse and rehabilitation of mine wastes. *Elements*, 7(6), 405-410.
- Lu, M. (2004). Pit lakes from sulphide ore mining, geochemical and limnological characterization before treatment, after liming and sewage sludge treatments: cases studies at Rävlidmyran and Udden, Sweden.
- MacQuarrie, K.T.B., Mayer, K.U., 2005. Reactive transport modeling in fractured rock: a state-of-the-science review. *Earth-Sci. Rev.* 72 (3–4), 189–227
- Maest, A.S., Kuipers, J.R, Travers, C.L. and Atkins, D.A. (2005). Predicting water quality at hard rock mines: Methods and models, uncertainties and state-of-the-art.
- Maest, A. S., & Nordstrom, D. K. (2017). A geochemical examination of humidity cell tests. *Applied Geochemistry*, 81, 109-131.
- Martin, A. J., C. Fraser, D. Dunbar and Mueller, S. (2015). Modelling of pit lake filling scenarios using a coupled physical and biogeochemical model. *Tailings and Mine Waste 2015*. October 26-28, 2015, Vancouver, B.C.
- Martin, V., B. Bussière, B. Plante, et al. 2017. Controlling water infiltration in waste rock piles: design, construction, and monitoring of a large-scale in-situ pilot test pile. *Proceedings of the Canadian Geotechnical Conference GeoOttawa*, ed. Canadian Geotechnical Society, 1–8. Ottawa, ON, Canada. Published by the Canadian Geotechnical Society, Ottawa, ON, Canada.
- Mayer, K.U., Benner, S.G., Blowes, D.W. (1999). The reactive transport model min3p - Application to acid mine drainage generation and treatment - Nickel Rim Mine site, Sudbury, Ontario. In *Proceedings of Sudbury'99 Conference on Mining and the Environment*, Sudbury, ON.
- Mayer, K.U. (2000). MIN3P V1.0 User Guide. University of Waterloo, Department of Earth Sciences, ON.

- Mayer, K.U., Frind, E.O., Blowes, D.W. (2002). Multicomponent reactive transport modeling in variably saturated porous media using a generalized formulation for kinetically controlled reactions. *Water Resour. Res.*, 38(9), 1174.
- Mbonimpa, M., Aubertin, M. (2002). Mouvement des gaz en milieu poreux partiellement saturés. Rapport EPM-RT-03-04, École Polytechnique de Montréal.
- Mbonimpa, M., Aubertin, M., Chapuis, R.P., Bussière, B. (2002). Practical pedotransfer functions for estimating the saturated hydraulic conductivity. *Geotechnical and Geological Engineering*, 20(3), 235-259.
- Mbonimpa, M., Aubertin, M., Aachib, M., Bussière, B. (2003). Diffusion and consumption of oxygen in unsaturated cover materials. *Canadian Geotechnical Journal*, 40(5), 916-932.
- McCullough, C., Hunt, D., & Evans, L. (2009). Sustainable development of open pit mines: creating beneficial end uses for pit lakes.
- McCullough, C. D., G. Marchand, and J. Unseld. 2013. Mine closure of pit lakes as terminal sinks: Best available practice when options are limited? *Mine Water and the Environment* 32: 302–313.
- McCullough, C. D., & Schultze, M. (2015, April). Riverine flow-through of mine pit lakes: improving both mine pit lake and river water quality values. In *Proceedings of the 10th International Conference on Acid Rock Drainage and IMWA Annual Conference*, Santiago, Chile (pp. 21-24).
- McCullough, C. D., & Vandenberg, J. (2020). Studying mine pit lake systems across multiple scales. *Mine Water and the Environment*, 39(2), 173-194.
- McCullough, C. D. (2008). Approaches to remediation of acid mine drainage water in pit lakes. *International Journal of Mining, Reclamation and Environment*, 22(2), 105-119.
- MDDELCC, 2014 Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques (MDDELCC), 2014, Lignes directrices relatives à la valorisation des résidus miniers, Québec, numéros ISBN 978-2-550-72712-5 ,17p.

- MEND, 1995. Review of in Pit Disposal Practices for the Prevention of Acid Drainage—Case Studies, MEND Report 2.36.1.
- MEND 2015. In-Pit Disposal of Reactive Mine Wastes: Approaches, Update and Case Study Results. Report 2.36.1b.
- MERN (2017). Plan de réaménagement et de restauration des sites miniers au Québec. Gouvernement du Québec Ministère de l'Énergie et des Ressources naturelles, M08-03-1710, ISBN.
- Molson, J.W., Aubertin, M., Bussière, B. and Joanes, A.M. (2004). Simulating acid mine drainage through mine wastes constructed with capillary barrier covers. 57th Canadian Geotechnical Conference.
- Molson, J. W., Fala, O., Aubertin, M., Bussière, B. (2005). Numerical simulations of pyrite oxidation and acid mine drainage in unsaturated waste rock piles. *Journal of Contaminant Hydrology*, 78(4), 343-371.
- Molson, J.W., Aubertin, M., Bussière, B. and Benzaazoua, M. (2007). Geochemical transport modelling of drainage from experimental mine tailings cells covered by capillary barriers. Submitted to *Applied Geochemistry*.
- Moncur, M.C., Ptacek, C.J., Blowes, D.W., Jambor, J.L., 2005. Release, transport and attenuation of metals from an old tailings impoundment. *Appl. Geochem.* 20, 639–659.
- Miller, G. C., Lyons, W. B., Davis, A. (1996). Peer Reviewed: Understanding the Water Quality of Pit Lakes. *Environmental science & technology*, 30(3), 118A-123A. Millington, R.J. (1959). Gas diffusion in porous media. *Science*, 130, 100–102.
- Mualem, Y. (1976a). A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water Resources Research*, 12, 513–522.
- Mualem, Y. (1976b). A catalogue of the hydraulic properties of unsaturated soils. Development of methods, tools and solutions, for unsaturated flow with application to watershed hydrology and other field. Research Project 442, Technion Israel Institute of Technology, Haifa, Israel.

- Mualem, Y. (1977). Extension of the similarity hypothesis used for modeling the soil water characteristics, *Water Resour. Res.* 773-780.
- Neculita, C. M., Zagury, G. J. (2008). Biological treatment of highly contaminated acid mine drainage in batch reactors: long-term treatment and reactive mixture characterization. *Journal of Hazardous Materials*, 157(2), 358-366.
- Neuman, S. P. (1973). Saturated-unsaturated seepage by finite elements. *J. Hydraulic. Div. Am. Soc. Civ. Eng.*, 99, 2233-2250.
- Nordstrom, D. K. In *Acid Sulfate Weathering*, Kittrick, J. A.; Fanning, D. S.; Hossner, L. R., Eds.; Soil Science Society of America: Madison, WI, 1982; Special Publication #10, pp. 37-56.
- Nordstrom, 1982 Nordstrom, D.K., 1982. Aqueous pyrite oxidation and the consequent formation of secondary minerals. *Acid Sulphate Weathering. Soil Sci. Soc. Am.*, pp. 37–56.
- Nordstrom, D. K., Southam, G. (1997). Geomicrobiology of sulfide mineral oxidation. *Reviews in mineralogy*, 35, 361-390.
- Nordstrom, D.K., Alpers, C.N. (1999). Geochemistry of acid mine waters. In the *Environmental Geochemistry of Mineral Deposits, Part A, Processes, Techniques, & Health Issues. Rev. Econ. Geol.*, 6A, 133-157.
- Nordstrom, D. K. (2000). Advances in the Hydrogeochemistry and microbiology of acid mine waters. *International Geology Review*, 42(6), 499-515.
- Nordstrom, D. K. (2011). Mine waters: acidic to circumneutral elements, 7(6), 393-398.
- Nicholson, R.V., Gillham, R.W. et Reardon, E.J. (1988). Pyrite oxidation in carbonate-buffered solution. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 52:1077-1085.
- Nicholson, RW Gillham, EJ Reardon. Pyrite RV Nicholson, RW Gillham, EJ Reardon - *Geochimica et Cosmochimica*, 1990 – Elsevier.

- Nicholson, R.V., Tibble, P.A. (1995). Review of the use of elevated water table as a method to control and reduce acidic drainage in tailings, report to SENES Consultants for project 31706, 35p.
- Olson, G.J. (1991). Rate of pyrite bioleaching by *Thiobacillus ferrooxidans* – Results of an interlaboratory comparison. *Applied and Environmental Microbiology*, 57:642-644.
- Ouangrawa, M., Aubertin, M., Molson, J. W., Bussière, B., Zagury, G. J. (2010). Preventing acid mine drainage with an elevated water table: Long-term column experiments and parameter analysis. *Water, Air, Soil Pollution*, 213(1-4), 437-458.
- Pabst, T. (2011). Étude expérimentale et numérique du comportement hydrogéochimique de recouvrements placés sur des résidus sulfureux partiellement oxydés (Doctoral dissertation, École Polytechnique de Montréal).
- Pabst, T., Aubertin, M., Bussière, B., Molson, J. (2014). Column tests to characterise the hydrogeochemical response of pre-oxidised acid-generating tailings with a monolayer cover. *Water, Air, Soil Pollution*, 225(2), 1841.
- Pabst, T., Molson, J., Aubertin, M., Bussière, B. (2017). Reactive transport modelling of the hydro-geochemical behaviour of partially oxidized acid-generating mine tailings with a monolayer cover. *Applied Geochemistry*, 78, 219-233.
- Parkhurst, D. L., Appelo, C. A. J. (1999). User's guide to PHREEQC (Version 2): A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations.
- Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J. (2013) Description of Input and Examples for PHREEQC Version 3—A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations. US Geological Survey Techniques and Methods, Book 6, Chapter A43, 497 p
- Park, J. H., M. Edraki, and T. Baumgartl. 2019. A practical testing approach to predict the geochemical hazards of in-pit coal mine tailings and rejets. *Catena* 148: 3–10.

- Peacey, V., Yanful, E. K. (2003). Metal mine tailings and sludge co-deposition in a tailings pond. *Water, Air, & Soil Pollution*, 145(1), 307-339.
- Pengyu, Y., Li, L. (2015). Investigation of the short-term stress distribution in stopes and drifts backfilled with cemented paste backfill. *International Journal of Mining Science and Technology*, 25(5), 721-728.
- Pétel, K. (2017). Évaluation en laboratoire de recouvrements spécifiquement adaptés au contrôle du drainage neutre contaminé (Doctoral dissertation, École Polytechnique de Montréal).
- Petrunic, B. M., Al, T. A., Weaver, L., Hall, D. (2009). Identification and characterization of secondary minerals formed in tungsten mine tailings using transmission electron microscopy. *Applied Geochemistry*, 24(12), 2222-2233.
- Plante, B. (2004). Comparaison des essais statiques et évaluation de l'effet de l'altération pour des rejets de concentrateur à faible potentiel de génération d'acide. Mémoire de Maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, Rouyn-Noranda, QC, 242p.
- Plante, B. (2010). Évaluation des principaux facteurs d'influence sur la prédiction du drainage neutre contaminé (Doctoral dissertation, Université du Québec à en Abitibi-Témiscamingue).
- Plante, B., Bussière, B., & Benzaazoua, M. (2012). Static tests response on 5 Canadian hard rock mine tailings with low net acid-generating potentials. *Journal of Geochemical Exploration*, 114, 57-69.
- Plante, B., Bussière, B., Benzaazoua, M. (2014). Lab to field scale effects on contaminated neutral drainage prediction from the Tio mine waste rocks. *Journal of Geochemical Exploration*, 137, 37-47.
- Poling, G., C. Pelletier, D. Muggli, M. Wen, J. Gerits, and K. Black. (2003) Field Studies of Semi-passive Biogeochemical Treatment of Acid Rock Drainage at the Island Copper Mine Pit Lake, In 6th International Conference on Acid Rock Drainage, Cairns, Australia, July 2003.
- Price, W. A. (2009). Prediction manual for drainage chemistry from sulphidic geologic materials. MEND report, 1(1), 579.

- Puhlovich 2011, M. Coghill Management of mine wastes using pit void backfilling methods – current issues and approaches. Australia Rio Tinto Technology and Innovation.
- Puigdomenech, I., Ambrosi, J.-P., Eisenlohr, L., Lartigue, J.-E., Banwart, S.A., Bateman, K., Milodowski, A.E., West, J.M., Griffault, L., Gustafsson, E., Hama, K., 2001a. O₂ depletion in granitic media - The REX project. AB. Report no.TR-01-05.
- Kumar, R. N., McCullough, C. D., & Lund, M. A. (2009). Water resources in Australian mine pit lakes. *Mining Technology*, 118(3-4), 205-211.
- Rabski, et Belfadhel, M. B. (2000). Canadian regulatory and technical requirements for uranium mine decommissioning Elliot Lake, Ontario experience. In *Uranium 2000: International symposium on the process metallurgy of uranium*.
- Raymond, K.E., Seigneur, N., Su, D., Poaty, B., Plante, B., Bussière, B., Mayer, K.U. (2020). Numerical Modeling of a Laboratory-Scale Waste Rock Pile Featuring an Engineered Cover System. *Minerals*, 10, 652. <https://doi.org/10.3390/min10080652>
- Regourd, M., & Hornain, H. (1975). Applications de la microscopie électronique à balayage. *Revue des matériaux de construction*, (693).
- Ritchie, A.I.M. (1994a). Chapter 5, The waste-rock environment. In *Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Wastes*. Edited by D.W. Blowes and J.L. Jambor.
- Ritchie, A.I.M. (1994b). Sulfide Oxydation mechanisms, controls and rates of oxygen transport. In *Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Waste*. Edited by J.L. Jambor and D.W. Blowes, Waterloo, ON.
- Rimstidt, J.D., Chermak, J.A. et Gagen, P.M. (1994). Rates of reaction of galena, sphalerite, chalcopyrite and arsenopyrite with Fe(III) in acidic solutions. Chap. 1 in *Environmental Geochemistry of Sulphide Oxidation*, Alpers, C.N. and Blowes, D.W. ACS Symposium Series 550, 108-122.

- Rimstidt, J. D., Vaughan, D. J. (2003). Pyrite oxidation: a state-of-the-art assessment of the reaction mechanism. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67(5), 873-880.
- Robertson 1989. Guide Technique préliminaire sur le drainage rocheux acide. Volume1.
- Rousseau, M., and T. Pabst. 2018. 3D numerical assessment of the permeable envelope concept for in-pit disposal of reactive mine wastes. In *Proceedings of 71st Canadian Geotechnical Conference GeoEdmonton2018*, Edmonton, Canada.
- Roy, V. (2019). Accélération de l'oxydation et passivation de sulfures dans des stériles miniers afin de réduire le potentiel de génération de drainage neutre contaminé (Doctoral dissertation, Polytechnique Montréal).
- Samad, M. A., Yanful, E. K. (2005). A design approach for selecting the optimum water cover depth for subaqueous disposal of sulfide mine tailings. *Canadian Geotechnical Journal*, 42(1), 207-228.
- Schultze, M., K.-H. Pokrandt, E. Scholz, and P. Jolas. 2011. Use of mine water for filling and remediation of pit lakes. In *Proceedings of 11th IMWA Congress*, Aachen, Germany, September 4–11.
- Shumate, K. S., Smith, E. E. (1970, May). The role of bacteria in pyrite oxidation kinetics. In *Third*
- Smits, A. J., McKeon, B. J., & Marusic, I. (2011). High–Reynolds number wall turbulence. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 43, 353-375.
- Sun, J., Wen, J., Wu, B., & Chen, B. (2020). Mechanism for the bio-oxidation and decomposition of pentlandite: Implication for nickel bioleaching at elevated pH. *Minerals*, 10(3), 289.
- Suzuki, I. (2001). Microbial leaching of metals from sulfide minerals. *Biotechnology Advances*. 19, p. 119-132.
- Stantec (2004). LTD, S. C. (2004). Priority assessment of metal leaching in neutral drainage. Draft report submitted to MEND Initiative, CANMET, Ref, 631-22996.

- Spiessl, S. M., MacQuarrie, K. T. B., Mayer, K. U. (2008). Identification of key parameters controlling dissolved oxygen migration and attenuation in fractured crystalline rocks. *Journal of contaminant hydrology*, 95(3), 141-153.
- Take W. A., Chappel, M. J., Brachman R. W. I. and Rowe, R. K. (2007). Quantifying geomembrane wrinkles using aerial photography and digital image processing, *Geosynthetics International*, 14(4), 219-227.
- Therrien, R., et Sudicky, A.E. (1996). Three-dimensional analysis of variably saturated flow and solute transport in discretely-fractured porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, 23, 1-44.
- Therrien, R., Sudicky, E.A. et McLaren, R.G., (2001). An Efficient Simulator for Three-dimensional, Saturated-Unsaturated Groundwater Flow and Density-dependant, Chain-Decay Solute Transport in Porous, Discretely-Fractured Porous or Dual-porosity Formations. McLaren Groundwater Simulations Group.
- Toussaint, R. (2016). Influences des caractéristiques physico-chimiques de résidus miniers sulfureux sur leur réactivité à l'oxygène (Doctoral dissertation, École Polytechnique de Montréal).
- Tran, A.B., S. Miller, D.J. Williams, P. Fines and G.W. Wilson 2003. Geochemical and Mineralogical Characterisation of Two Contrasting Waste Rock Dumps – The INAP Waste Rock Dump Characterisation Project. 6th ICARD, Cairns, Queensland. 12-18 July 2003.
- Van Genuchten, M. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Science Society of America*, 44, 892-898.
- Van Genuchten, M., Leij, F. Yates, S. (1991). The RETC code for quantifying the hydraulic functions of unsaturated soils. Cincinnati, Ohio: U.S. Environmental Protection Agency. EPA/600/2-91/065.

- Villain, L., Sundström, N., Perttu, N., Alakangas, L., Öhlander, B. (2014). Evaluation of the effectiveness of backfilling and sealing at an open-pit mine using ground penetrating radar and geoelectrical surveys, Kimheden, northern Sweden. *Environmental Earth Sciences*, 73(8), 4495-4509.
- 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. Mémoire de maîtrise en génie minéral, École Polytechnique de Montréal.
- Wang, J.S.Y. et Narasimhan, T.N. (1985). Hydrologic mechanisms governing fluid flow in a partially saturated, fractured, porous medium. *Water Resour. Res.*, 2(12), 1861-1874.
- Wang, Z.E., Yue, Q.Z., Tham, G.L., Tsui, Y. et Wang, T.H. (2002). A dual fracture model to simulate large-scale flow through fractured rocks. *Canadian Geotechnical Journal*, 39, 1302-1312.
- Wang, M., Chen, Y. F., Ma, G. W., Zhou, J. Q., & Zhou, C. B. (2016). Influence of surface roughness on nonlinear flow behaviors in 3D self-affine rough fractures: Lattice Boltzmann simulations. *Advances in water resources*, 96, 373-388.
- Wetzel, 2001. D.B. Wetzel. *Limnology* (3rd ed.), Lake and river ecosystems, Academic Press, San Diego, California (2001).
- Wickland, B.E. (2006). Volume change and permeability of mixtures of waste rock and fine tailings. PhD. University of British Columbia (Canada), 351 p.
- Wickland, B. E., Wilson, G. W., Wijewickreme, D. (2010). Hydraulic conductivity and consolidation response of mixtures of mine waste rock and tailings. *Canadian Geotechnical Journal*, 47(4), 472-485.
- Wilson, D., Amos, R. T., Blowes, D. W., Langman, J. B., Smith, L., & Sego, D. C. (2018). Diavik Waste Rock Project: Scale-up of a reactive transport model for temperature and sulfide-content dependent geochemical evolution of waste rock. *Applied Geochemistry*, 96, 177-190.

- Wolf, D.C, Dao T.H., Scott, H.D., and Lavy, T.L. (1989) – Influence of sterilization methods on selected soil microbiological, physical, and chemical properties. *J. Environ Qual.*, 18, p.39-44
- Yanful, E. K. (1993). Oxygen diffusion through soil covers on sulphidic mine tailings. *Journal of Geotechnical Engineering*, 119(8), 1207-1228.
- Yanful, E.K., Mousavi, S.M., Yang, M. (2003). Modeling and measurement of evaporation in moisture-retaining soil covers. *Advances in Environmental Research*, 7, 783-801.
- Yanful, E.K., Mousavi, S.M., De Souza, L.P. (2006). A numerical study of soil cover performance. *Journal of Environmental Management*, 81, 72-92.
- Yun Liu., Zhi Dang., Ping Xiao Wu., Jing Lu .2010. Influence of ferric iron on the electrochemical behavior of pyrite. School of Environmental Science and Engineering, Higher Education Mega Center, South China University of Technology, Guangzhou 510006, China.
- Zagury, G. J., Kulnieks, V. I., Neculita, C. M. (2006). Characterization and reactivity assessment of organic substrates for sulphate-reducing bacteria in acid mine drainage treatment. *Chemosphere*, 64(6), 944-954.
- Zagury, G.J., Colombano, S.M., Narasiah, K.S., et Ballivy, G. (1997). Neutralization of acid mine tailings by addition of alkaline sludges from pulp and paper industry, *Environmental Technology*, 18, p.959-973
- Zeng, S., Li, J., Schumann, R., & Smart, R. (2013). Effect of pH and dissolved silicate on the formation of surface passivation layers for reducing pyrite oxidation. *Computational Water, Energy, and Environmental Engineering*, 2(02), 50.

ANNEXES

ANNEXE A GRANULOMÉTRIE ET CLASSIFICATION DES RÉSIDUS MINIERS

Généralement, les analyses granulométriques servent à la classification des matériaux. La classification la plus utilisée pour les résidus miniers est le système de classification des sols unifiée (« Unified Soil Classification System », USCS, ASTM D 2487, 2000) (Holtz et Kovacs, 1981). Ces derniers sont souvent classifiés comme des silts de faible plasticité, ML, ou des silts/sables silteux, SM-ML (James, 2009). Une valeur élevée (≥ 6) du coefficient d'uniformité CU ($= D_{60}/D_{10}$) signifie que le D 10 et le D 60 diffèrent considérablement et que la granulométrie du matériau est étalée. Les différents CU des résidus homogénéisés provenant des mines en roche dure analysés par Aubertin et al. (1996) variaient entre 8 et 18, Vick (1990) a également trouvé des plages de valeurs similaires. Concernant la synthèse de la littérature Bussière (2007) sur les caractéristiques de deux types de résidus miniers en roches dures : ceux qui ont été pris avant déposition sur le site et ceux pris après déposition. Pour la première catégorie, les résidus ont les caractéristiques suivantes : un D10 variant entre 0.001 et 0.004 mm, un D60 entre 0.01 et 0.05 mm, un CU entre 8 et 18. Pour la deuxième catégorie, le D10 de treize matériaux décrits dans la littérature varie entre 0.0009 mm et 0.006 mm ; le D60 varie entre 0.01 mm et 0.08 mm, le CU varie entre 10 et 30.

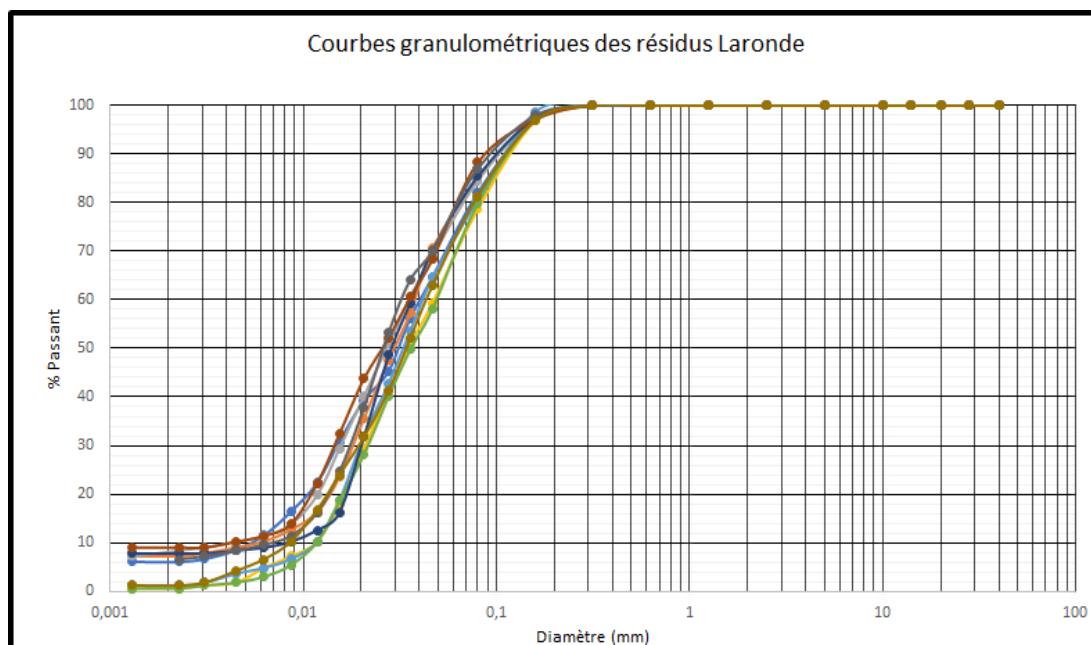


Figure A 1 Courbes granulométriques des résidus Laronde avant les tests cinétiques

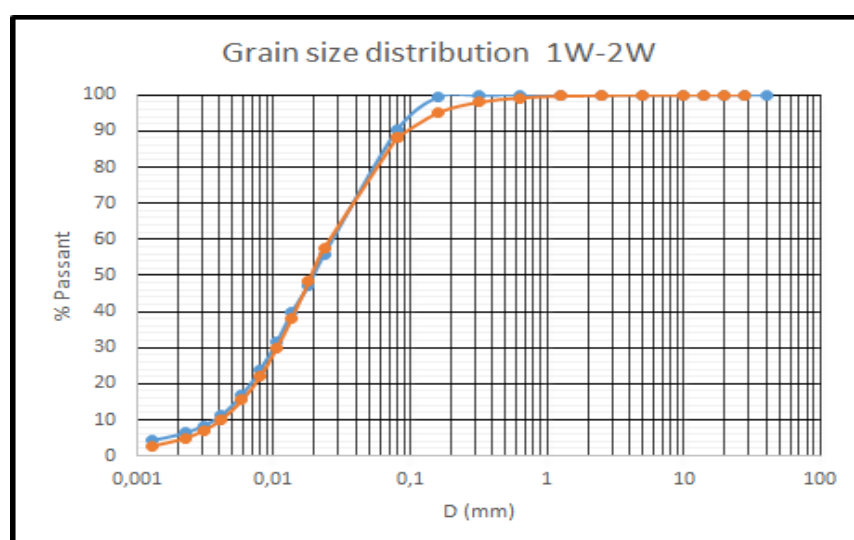


Figure A 2 Courbes granulométriques des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 1W et 2W)

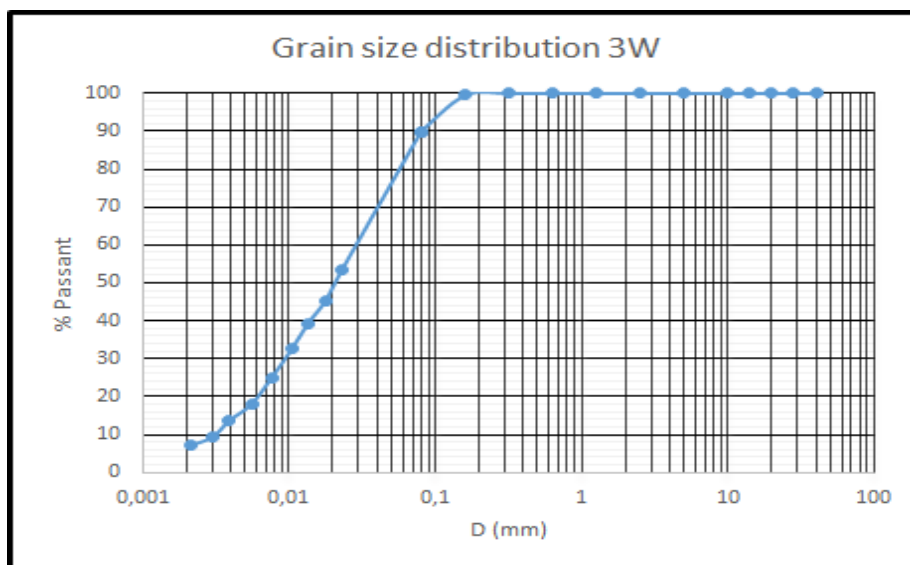


Figure A 3 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 3W)

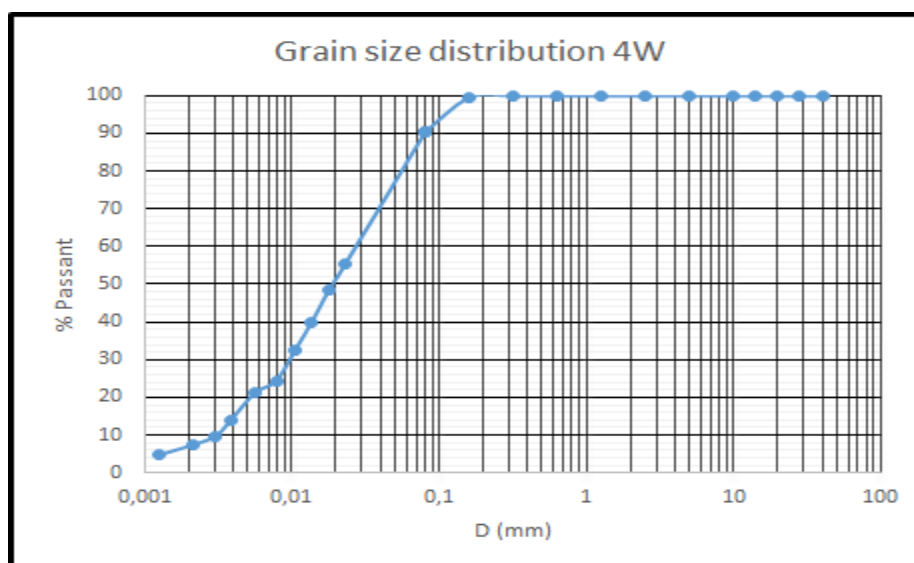


Figure A 4 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 4W)

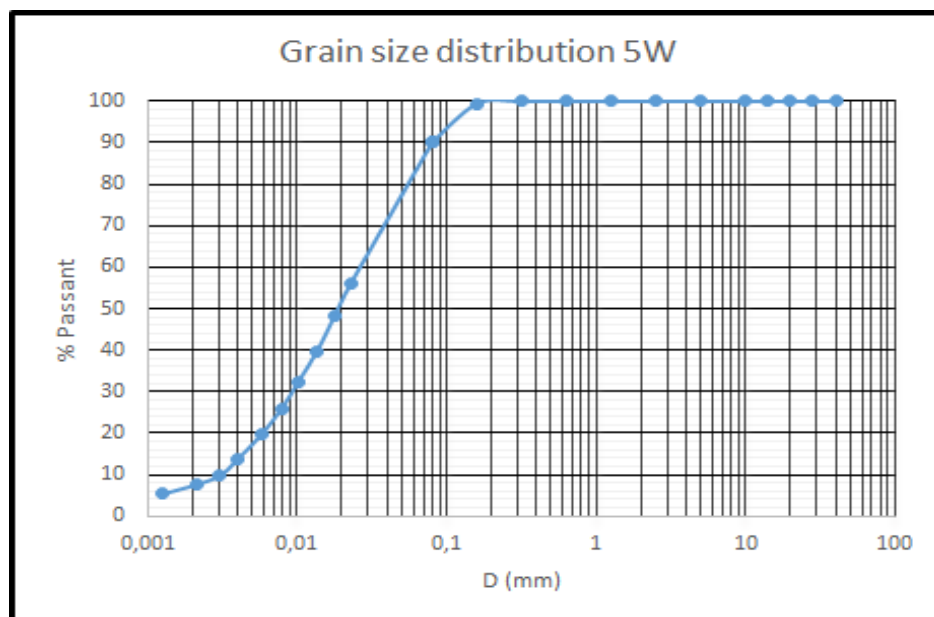


Figure A 5 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 5W)

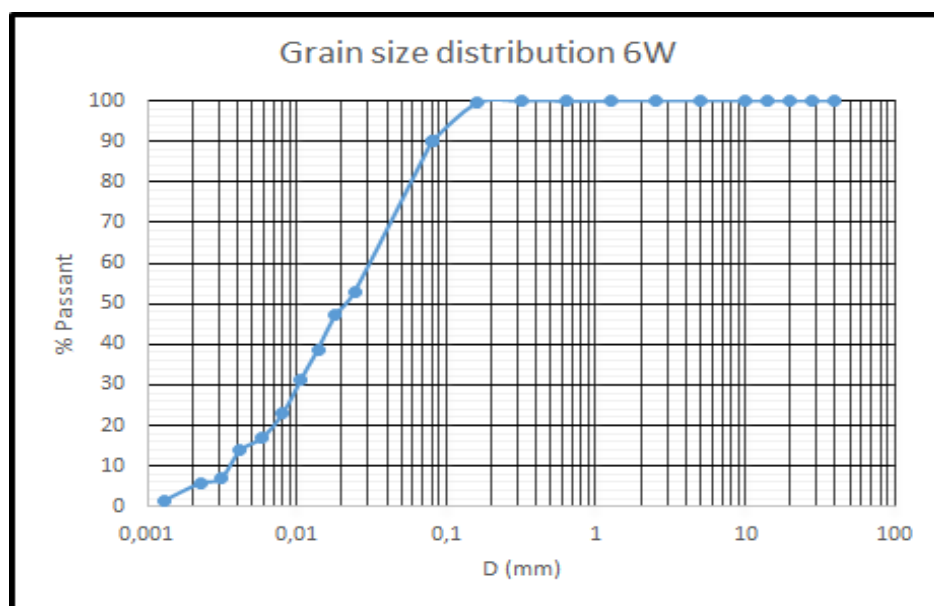


Figure A 6 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 6W)

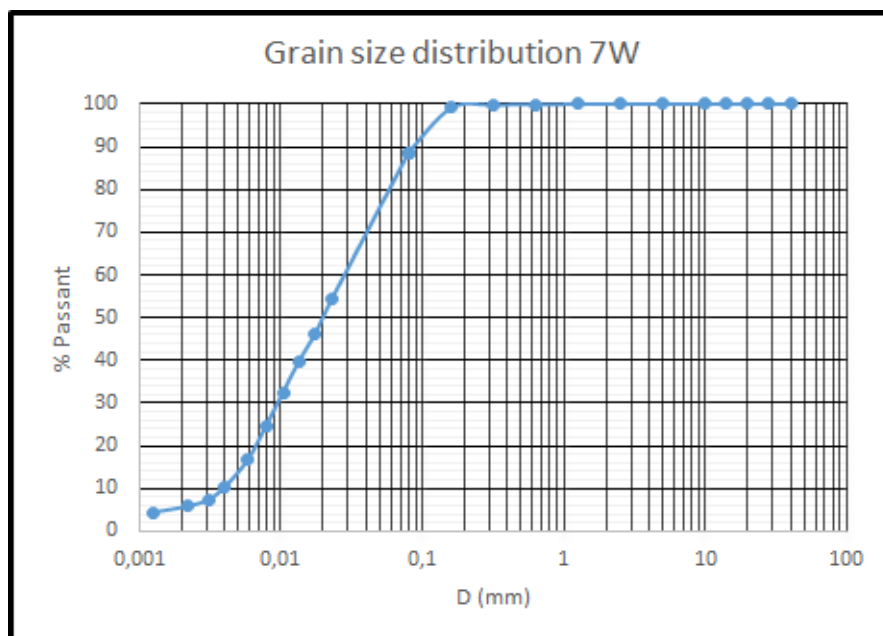


Figure A 7 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 7W)

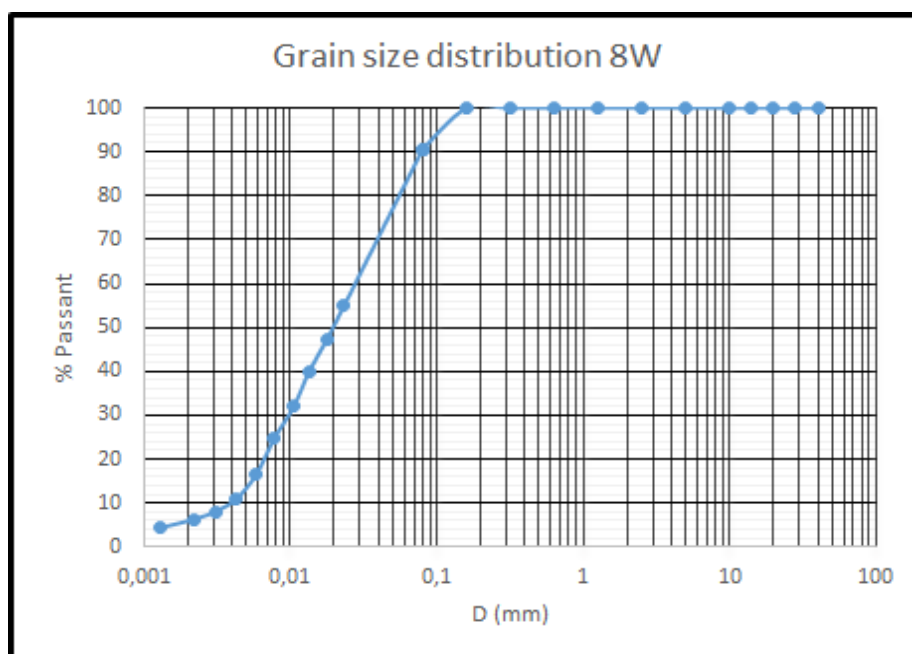


Figure A 8 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 8W)

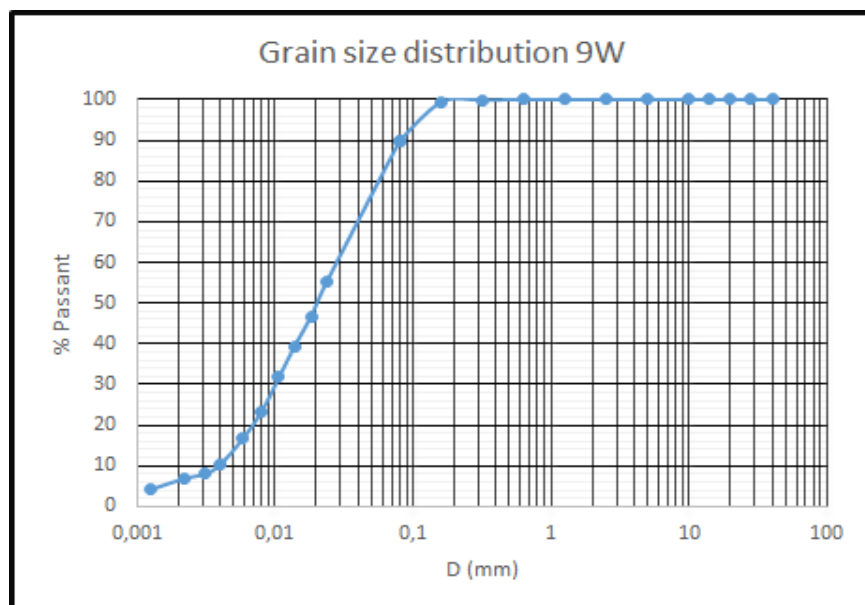


Figure A 9 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 9W)

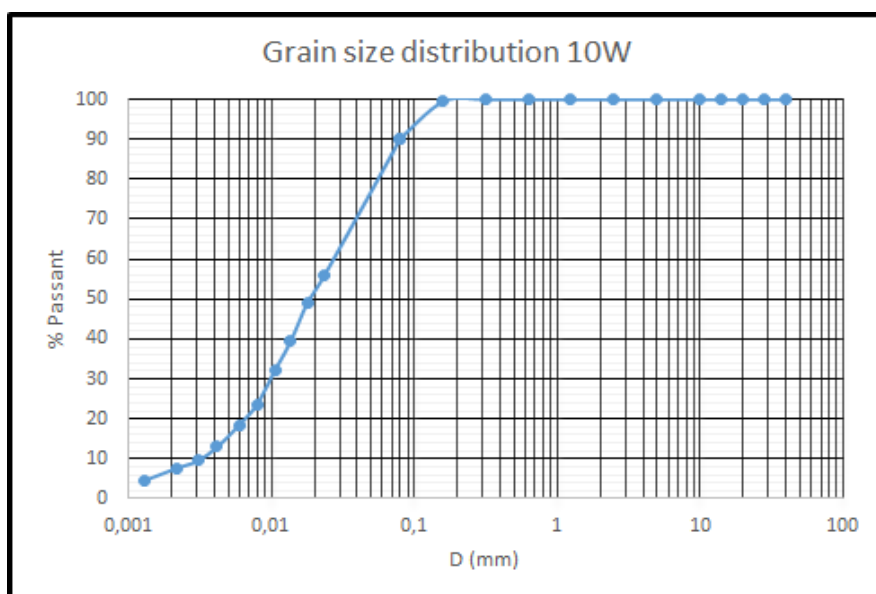


Figure A 10 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 10W)

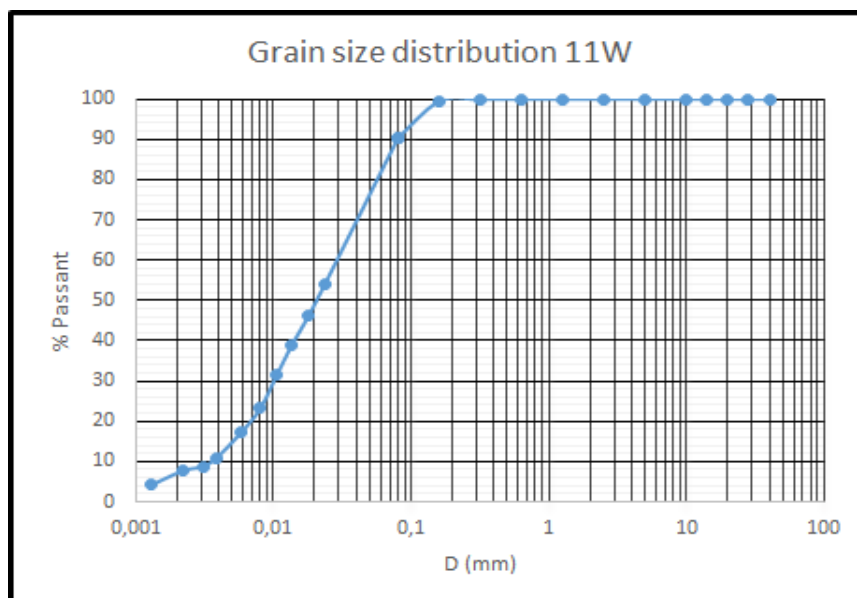


Figure A 11 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 11W)

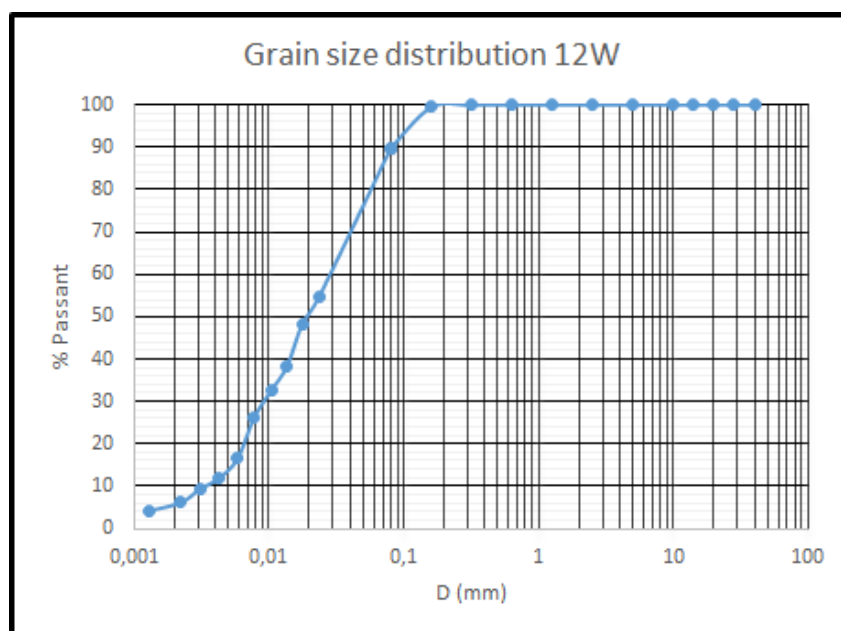


Figure A 12 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 12W)

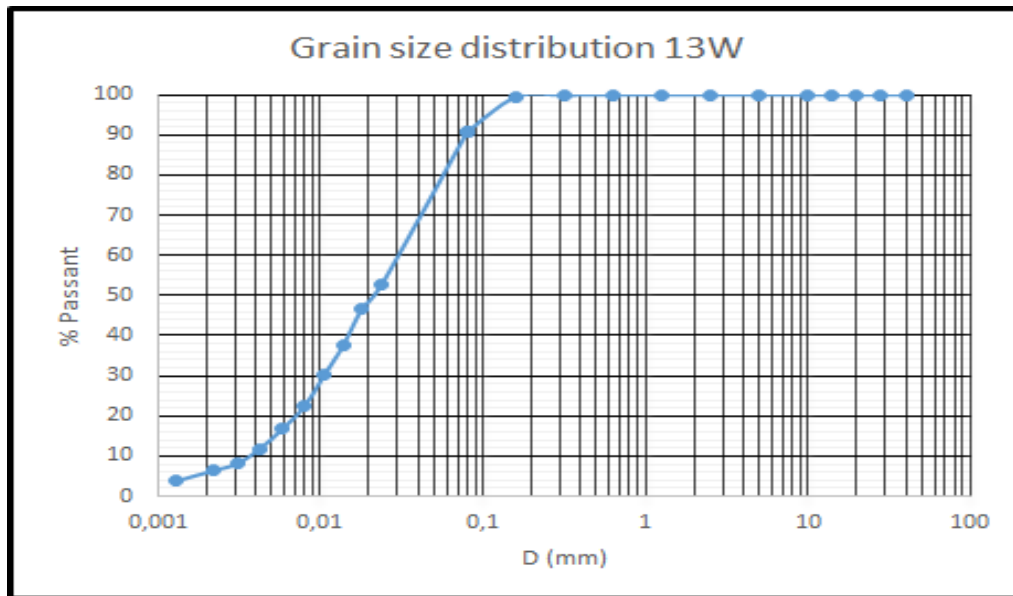


Figure A 13 Courbe granulométrique des résidus Westwood avant les tests cinétiques
(Échantillon 13W)

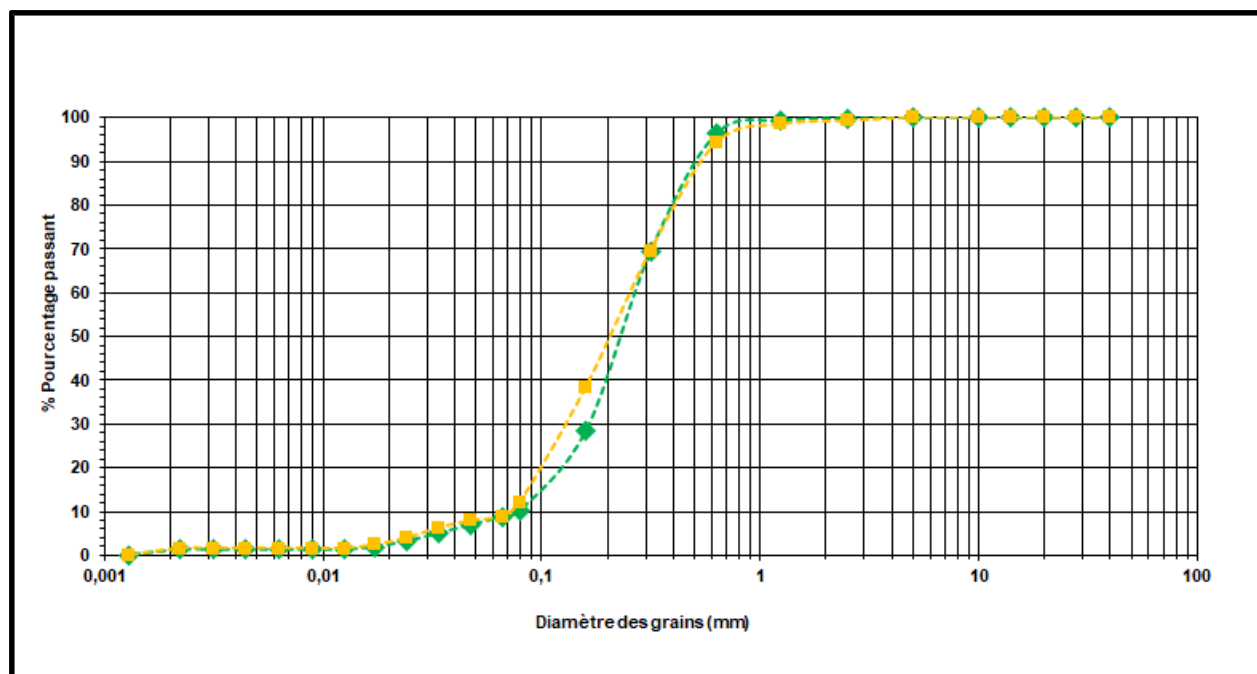


Figure A 14 Courbes granulométriques du résidu synthétique avant tests cinétiques.

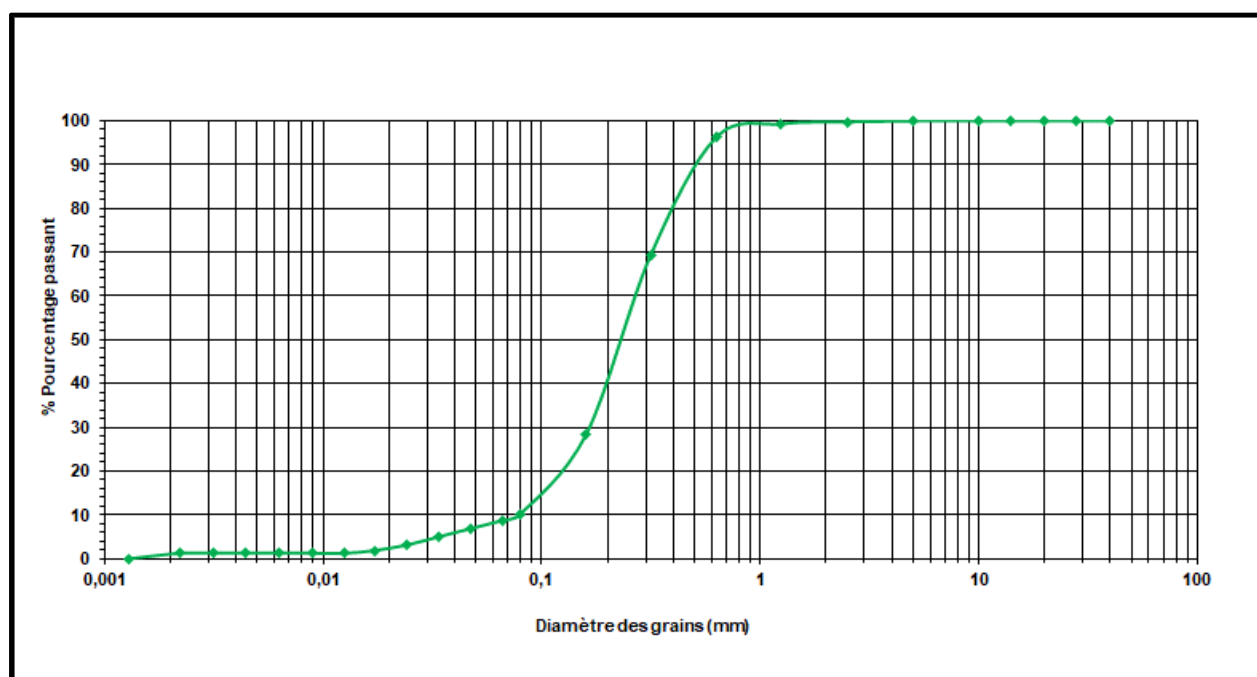


Figure A 15 Courbe granulométrique du résidu synthétique avant tests cinétiques (duplicata).

ANNEXE B CONDUCTIVITÉ HYDRAULIQUE

La conductivité hydraulique saturée k_{sat} a été mesurée avant et après les essais en cellule par des essais au perméamètre à paroi rigide. Les normes ASTM D 2434 et ASTM D 5856 ont été utilisées pour réaliser les essais à charges constantes et variables respectivement. Les mesures au laboratoire ont été comparées avec une valeur de k_{sat} prédite au moyen des modèles de Kozeny-Carman (Chapuis et al., 2003) et de Kozeny-Carman modifiée (Aubertin et al., 1996; Mbonimpa et al., 2002)

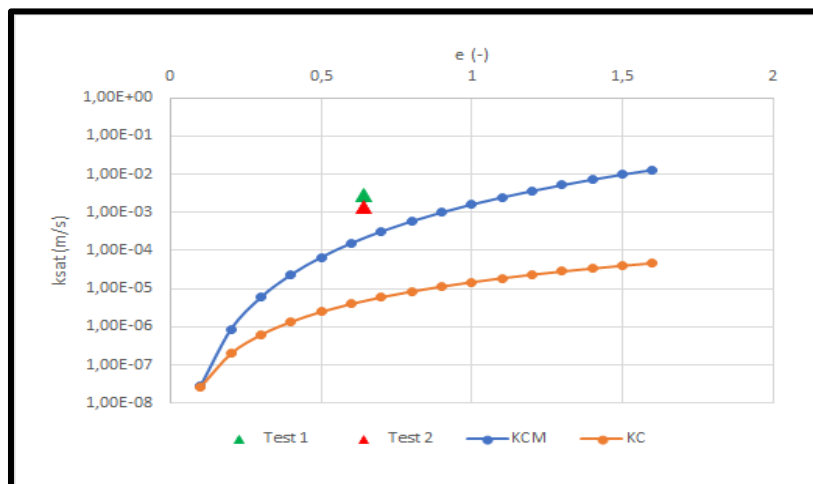


Figure B 1 La conductivité hydraulique saturée k_{sat} après démontage des essais cinétiques pour l'échantillon synthétique.

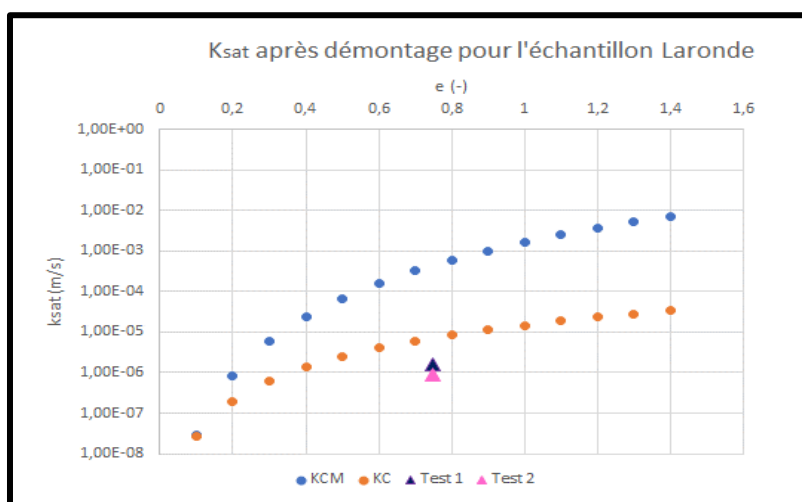


Figure B 2 La conductivité hydraulique saturée k_{sat} après démontage des essais cinétiques pour l'échantillon Laronde.

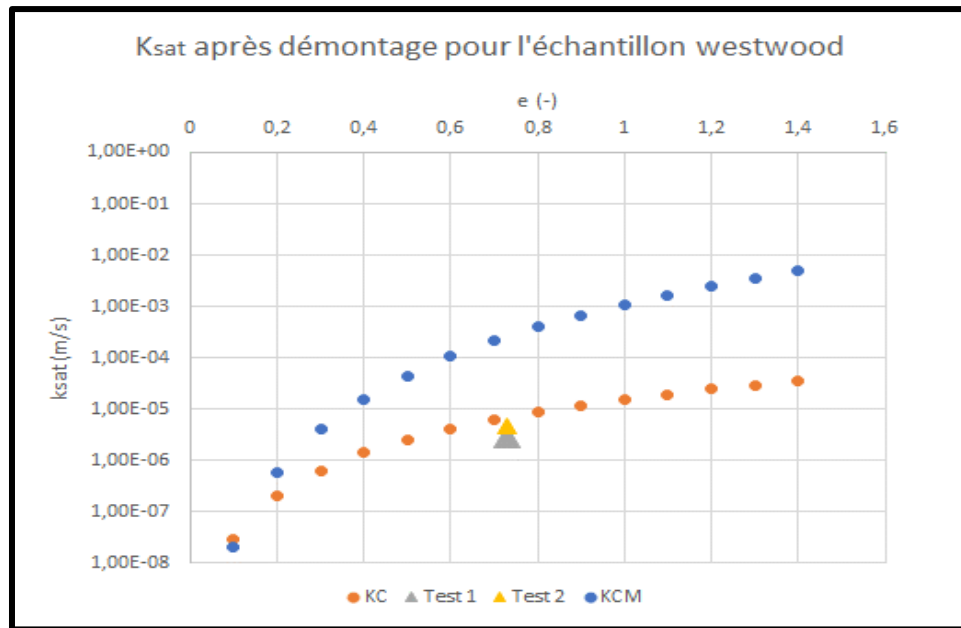


Figure B 3 La conductivité hydraulique saturée k_{sat} après démontage des essais cinétiques pour l'échantillon Westwood.

ANNEXE C DENSITÉ RELATIVE

La densité relative des grains a été mesurée par pycnomètre à eau (ASTM D854-14, 2014) avant le montage des cellules. Au démontage, quelques échantillons ont été caractérisés afin d'évaluer si des modifications de densités relatives auront pu se produire au cours des essais cinétiques. Cette mesure a rendu possible l'estimation de la valeur de C_p , teneur en pyrite des résidus sulfureux à partir de la valeur de la densité relative des grains D_r . La teneur en pyrite C_p et la densité relative des grains solides D_r représenteraient de bons indicateurs pour statuer sur l'évolution des caractéristiques géochimiques (minéralogiques) des résidus soumis aux essais d'oxydation (Toussaint, 2016).

Pycnomètre no	Bottle no	14	21	11
Masse pycnomètre + eau + sol g	Mass bottle + water + soil g	723,67	721,74	713,47
Température ° C	Température ° C	26,4	26,4	27,0
Masse pycnomètre + eau g	Mass bottle + water g	677,57	673,24	664,58
No tare	Evaporating dish no g			
Masse de la tare + sol sec g	Mass dish + dry soil g	396,31	397,28	678,97
Masse de la tare g	Mass dish g	328,10	325,61	607,44
Masse du sol sec g	Mass dry soil) g	68,21	71,67	71,53
Masse volumique de l'eau @ 20° C	Solid relative density	0,99675	0,99675	0,99662
Masse volumique de l'eau @ 20° C	Specific grav. Of water @20°C	0,99823	0,99823	0,99823
Densité relative	Solid relative density	3,085	3,093	3,159
Densité relative corrigé @ 20°C)	Specific gravity of soil @ 20°C)	3,080	3,089	3,154
	min		3,080	
	max		3,154	
Moyenne	Average	3,027		

Figure C 1 Densité relative du résidu Laronde avant le test cinétique

Pycnomètre no	Bottle no	14	21	11
Masse pycnomètre + eau + sol g	Mass bottle + water + soil g	724,67	727,74	713,47
Température ° C	Température ° C	26,4	26,4	27,0
Masse pycnomètre + eau g	Mass bottle + water g	677,57	673,24	664,58
No tare	Evaporating dish no g			
Masse de la tare + sol sec g	Mass dish + dry soil g	396,31	397,28	678,97
Masse de la tare g	Mass dish g	328,10	325,61	607,44
Masse du sol sec g	Mass dry soil) g	78,00	78,00	78,00
Masse volumique de l'eau @ 20° C	Solid relative density	0,99675	0,99675	0,99662
Masse volumique de l'eau @ 20° C	Specific grav. Of water @20°C	0,99823	0,99823	0,99823
Densité relative	Solid relative density	2,524	3,319	2,679
Densité relative corrigé @ 20°C)	Specific gravity of soil @ 20°C)	2,521	3,314	2,675
	min		2,521	
	max		3,314	
Moyenne	Average	2,824		

Figure C 2 Densité relative du résidu Laronde avant le test cinétique (duplicata).

Pycnomètre no	Bottle no	14	21	11
Masse pycnomètre + eau + sol g	Mass bottle + water + soil g	729,67	728,74	717,47
Température ° C	Température ° C	26,4	26,4	27,0
Masse pycnomètre + eau g	Mass bottle + water g	677,57	673,24	664,58
No tare	Evaporating dish no			
Masse de la tare + sol sec g	Mass dish + dry soil g	396,31	397,28	678,97
Masse de la tare g	Mass dish g	328,10	325,61	607,44
Masse du sol sec g	Mass dry soil g	80,00	80,00	80,00
Masse volumique de l'eau @ 20° C	Solid relative density	0,99675	0,99675	0,99662
Masse volumique de l'eau @ 20° C	Specific grav. Of water @20°C	0,99823	0,99823	0,99823
Densité relative	Solid relative density	2,867	3,265	2,951
Densité relative corrigé @ 20°C)	Specific gravity of soil @ 20°C)	2,863	3,260	2,946
	min		2,863	
	max		3,260	
Moyenne	Average	2,964		

Figure C 3 Densité relative du résidu Laronde avant le test cinétique (duplicata).

Pycnomètre no	Bottle no	14	21	11
Masse pycnomètre + eau + sol g	Mass bottle + water + soil g	723,67	721,74	713,47
Température ° C	Température ° C	26,4	26,4	27,0
Masse pycnomètre + eau g	Mass bottle + water g	677,57	673,24	664,58
No tare	Evaporating dish no			
Masse de la tare + sol sec g	Mass dish + dry soil g	396,31	397,28	678,97
Masse de la tare g	Mass dish g	328,10	325,61	607,44
Masse du sol sec g	Mass dry soil g	68,21	70,25	71,53
Masse volumique de l'eau @ 20° C	Solid relative density	0,99675	0,99675	0,99662
Masse volumique de l'eau @ 20° C	Specific grav. Of water @20°C	0,99823	0,99823	0,99823
Densité relative	Solid relative density	3,085	3,230	3,159
Densité relative corrigé @ 20°C)	Specific gravity of soil @ 20°C)	3,080	3,225	3,154
	min		3,080	
	max		3,225	
Moyenne	Average	3,061		

Figure C 4 Densité relative du résidu Laronde avant le test cinétique (duplicata).

Specific Gravity									
Sample information:		Résidu Westwood							
Date:		15 février 2018							
Operator:		Roseline Lévesque							

	11w			9w			Calibration Formula		
Pycnometer no	3	N14	17	21	N14	6	$M_{\text{pycnometer} + \text{water}} = a \cdot T + b$		
$M_{\text{pycnometer} + \text{water} + \text{soil}}$ (g)	742.19	736.33	733.12	730.3	734.29	737.97	Pycnometer	a	b
Température (°C)	25.5	24.5	24	26.8	25.2	25.6	11	-0.1107	667.59
$V_{\text{pycnometer}}$ (mL)	499.35	499.80	499.55	499.75	499.78	493.18	N14	-0.1432	680.81
$M_{\text{pycnometer}}$ (g)	185.88	178.94	173.64	175.08	178.94	183.5	21	-0.0741	675.11
$M_{\text{pycnometer} + \text{water}}$ (g)	683.7	677.3	671.8	673.12412	677.20136	681.49			
No Tare	G-1	D5	T2	63	V14	8			
$M_{\text{Tare} + \text{dry soil}}$ (g)	254.96	271.96	252.42	403.2	452.8	523			
M_{Tare} (g)	164.73	179.87	157.02	315.2	364.5	435.5			
$M_{\text{dry soil}}$ (g)	90.23	92.09	95.4	88	88.3	87.5			

Density of water	0.997	0.997	0.997	0.997	0.997	0.997			
Factor k	0.999	0.999	0.999	0.998	0.999	0.999			

Specific gravity	2.84	2.79	2.80	2.85	2.83	2.82			
specific gravity @20C	2.84	2.78	2.80	2.85	2.83	2.82			
Average	2.81			2.83					

$M_{\text{pycnometer} + \text{water} + \text{soil}}$
 $V_{\text{pycnometer}}$
 $M_{\text{pycnometer}}$
 $M_{\text{pycnometer} + \text{water}}$

Mass of pycnometer filled with soil and water
Volume of pycnometer
Mass of pycnometer calibrated
Mass of pycnometer filled with water calibrated

$M_{\text{Tare} + \text{dry soil}}$
 M_{Tare}
 $M_{\text{dry soil}}$
T

Mass of container and dry soil
Mass of container
Mass of dry soil
Temperature



Figure C 5 Densité relative du résidu Westwood (échantillon 11Wet 9W) avant les tests cinétiques.

	cellule 7 (somet)			cellule 7 (milieu)			cellule 7 (base)			Calibration Formula		
Pycnometer no	1	2	3	1	2	3	1	2	3	$M_{\text{pycnometer} + \text{water}} = a \cdot T + b$		
$M_{\text{pycnometer} + \text{water} + \text{soil}}$ (g)	717,59	725,9	725,88	714,88	725,01	726,1	714,88	725,01	726,1	Pycnometer	a	b
Température (°C)	23,8	24,3	24	25,9	25,7	25,9	25,8	25,6	25,8	1	-0,1225	662,57
$V_{\text{pycnometer}}$ (mL)										2	-0,1243	670,05
$M_{\text{pycnometer}}$ (g)										3	-0,1219	670,18
$M_{\text{pycnometer} + \text{water}}$ (g)	659,7	667,0	667,3	659,4	666,9	667,0	659,4	666,9	667,0			
No Tare	8	bol 007	rc23	23	64	66	23	64	66			
$M_{\text{Tare} + \text{dry soil}}$ (g)	524,13	415,62	394,4	413,35	407,47	419,04	413,2	407,45	419,14			
M_{Tare} (g)	435,75	325,66	304,83	328,53	318,19	328,62	328,53	318,19	328,62			
$M_{\text{dry soil}}$ (g)	88,38	89,96	89,57	84,82	89,28	90,42	84,67	89,26	90,52			

Density of water	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997			
Factor k	0,999	0,999	0,999	0,999	0,999	0,999	0,999	0,999	0,999			

	cellule 7 (somet 11)			cellule 7 (milieu 007)			cellule 7 (base)		
Specific gravity	2,90	2,89	2,89	2,89	2,87	2,88	2,90	2,87	2,88
specific gravity @20C	2,90	2,89	2,89	2,89	2,86	2,88	2,90	2,87	2,87
Average	2,89			2,88			2,88		

Figure C 6 Densité relative du résidu Westwood après tests cinétiques (W1).

	cellule 6 (somet)			cellule 6 (milieu)			cellule 6 (base)			Calibration Formula		
Pycnometer no	1	2	3	1	2	3	1	2	3	$M_{\text{pycnometer} + \text{water}} = a T + b$		
$M_{\text{pycnometer} + \text{water} + \text{soil}}$ (g)	705,69	712,75	710,46	716,98	722,03	725,1	715,98	722,03	725,1	Pycnometer	a	b
Température (C)	26,7	26,5	26,5	24,2	24,1	23,8	24,2	24,1	23,8			
$V_{\text{pycnometer}}$ (mL)										1	-0,1225	662,57
$M_{\text{pycnometer}}$ (g)										2	-0,1243	670,05
$M_{\text{pycnometer} + \text{water}}$ (g)	659,6	666,8	666,9	659,6055	667,0544	667,2788	659,6055	667,0544	667,2788	3	-0,1219	670,18
No Tare	66	8	rc23	23	64	v14	23	64	v14			
$M_{\text{tare} + \text{dry soil}}$ (g)	399,2	505,6	371,4	416,3	402,5	453	416,3	402,5	453			
M_{tare} (g)	328,5	435,5	304,7	328,5	318	364,5	328,6	318,2	364,6			
$M_{\text{dry soil}}$ (g)	70,7	70,1	66,7	87,8	84,5	88,5	87,7	84,3	88,4			

Density of water	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997	0,997			
Factor k	0,998	0,998	0,998	0,999	0,999	0,999	0,999	0,999	0,999			

	cellule 6 (somet 64)			cellule 6 (milieu B2)			cellule 6 (base)		
Specific gravity	2,87	2,91	2,88	2,89	2,86	2,88	2,80	2,87	2,89
specific gravity @20C	2,87	2,90	2,87	2,88	2,86	2,88	2,80	2,87	2,89
Average	2,88			2,88			2,85		

Figure C 7 Densité relative du résidu Westwood après tests cinétiques (W2).

Démontage cellule 1

	Démontage cellule 1: sommet		
Specific gravity	3,21	3,15	3,16
specific gravity @20C	3,20	3,15	3,16
Average	3,17		
	Démontage cellule 1: Milieu		
Specific gravity	3,14	3,15	3,16
specific gravity @20C	3,14	3,14	3,15
Average	3,14		
	Démontage cellule 1: Base		
Specific gravity	3,21	3,15	3,16
specific gravity @20C	3,20	3,15	3,16
Average	3,17		

Démontage cellule 2

	Démontage Cellule2 : Sommet		
Specific gravity	3,15	3,16	3,18
specific gravity @20C	3,15	3,15	3,17
Average	3,16		
	Démontage Cellule2 : Base		
Specific gravity	3,12	3,16	3,17
specific gravity @20C	3,12	3,16	3,16
Average	3,15		
	Démontage Cellule2 : Milieu		
Specific gravity	3,16	3,19	3,18
specific gravity @20C	3,16	3,19	3,17
Average	3,17		

Figure C 8 Densité relative du résidu Laronde après tests cinétiques (L1 et L2).

Densité relative des grains			
Provenance de l'échantillon:	Résidu synthétique après démontage des cellules		
Date:	01-mar-19		
Réalisé par :	Khawla (Stagiaire)		
	<i>Base</i>	<i>Milieu</i>	<i>Sommet</i>
Numéro pycnomètre	3	2	1
Masse pycnomètre + eau + sol (g)	727,37	726,73	719,40
Température (°C)	26,2	25,9	26,1
Masse pycnomètre + eau (g)	666,85	666,69	659,46
Numéro tare	65	14	64
Masse de la tare + sol sec (g)	365,29	361,19	410,92
Masse de la tare (g)	275,00	271,58	321,75
Masse du sol sec (g)	90,29	89,61	89,17
Coefficient de température (K)	0,9985	0,99858	0,99853
Masse volumique de l'eau	1,0000		1,00000
Masse volumique de l'eau @ 20°C	0,99821	0,99821	0,99821
Densité relative	3,033	3,031	3,050
Densité relative corrigé @ 20°C	3,029	3,026	3,046
Pycnomètre utilisé:	1	1	1
Moyenne (densité relative corrigé):	3,034		
	max: 3,046	min: 3,026	écart: 0,019

Figure C 9 Densité relative du résidu Synthétique après les tests cinétiques en milieu acide (S1).

Densité relative des grains			
Provenance de l'échantillon:	Résidu westwood après démontage des cellules		
Date:	01-mar-19		
Réalisé par :	Khawla (Stagiaire)		
	<i>Sommet</i>	<i>Milieu</i>	<i>Base</i>
Numéro pycnomètre	1	2	3
Masse pycnomètre + eau + sol (g)	712,2	716,78	716,87
Température (°C)	18,4	27,6	27,2
Masse pycnomètre + eau (g)	660,17	666,50	666,7439823
Numéro tare			
Masse de la tare + sol sec (g)	411,07	351,05	247,59
Masse de la tare (g)	327,21	271,56	168,01
Masse du sol sec (g)	83,86	79,49	79,58
Coefficient de température (K)	1,000	0,99816	1,00
Masse volumique de l'eau	1,000	1,00000	1,00
Masse volumique de l'eau @ 20°C	0,99821	0,99821	1,00
Densité relative	2,635	2,721	2,70
Densité relative corrigé @ 20°C	2,636	2,716	2,70
Pycnomètre utilisé:	1	1	1
Moyenne (densité relative corrigé):	2,683		
	max: 2,716	min: 2,636	écart: 0,080

Figure C 10 Densité relative du résidu Westwood après les tests cinétiques en milieu acide (W4).

ANNEXE D ANALYSES PAR MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)

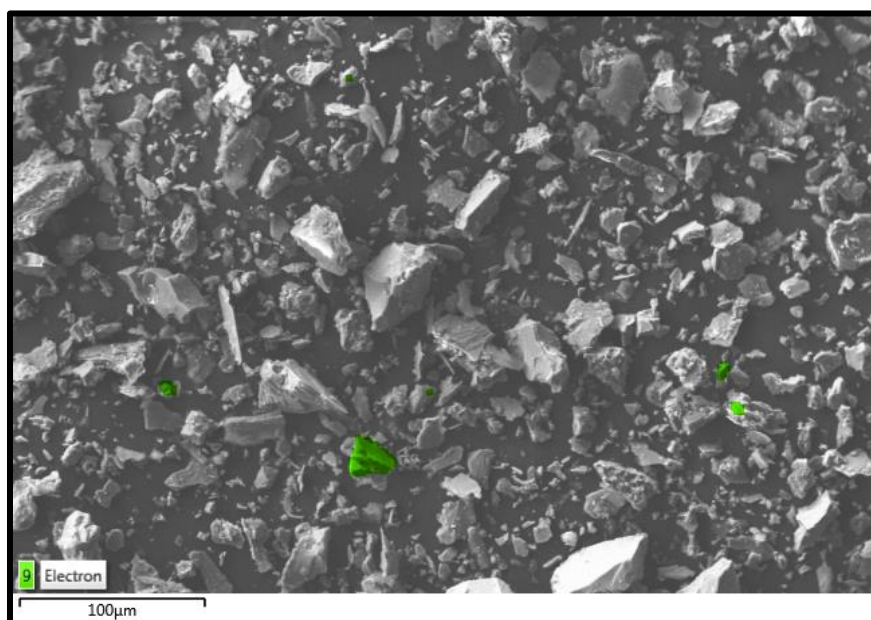


Figure D 1 Analyse complémentaire par MEB du résidu Westwood avant les tests cinétiques.

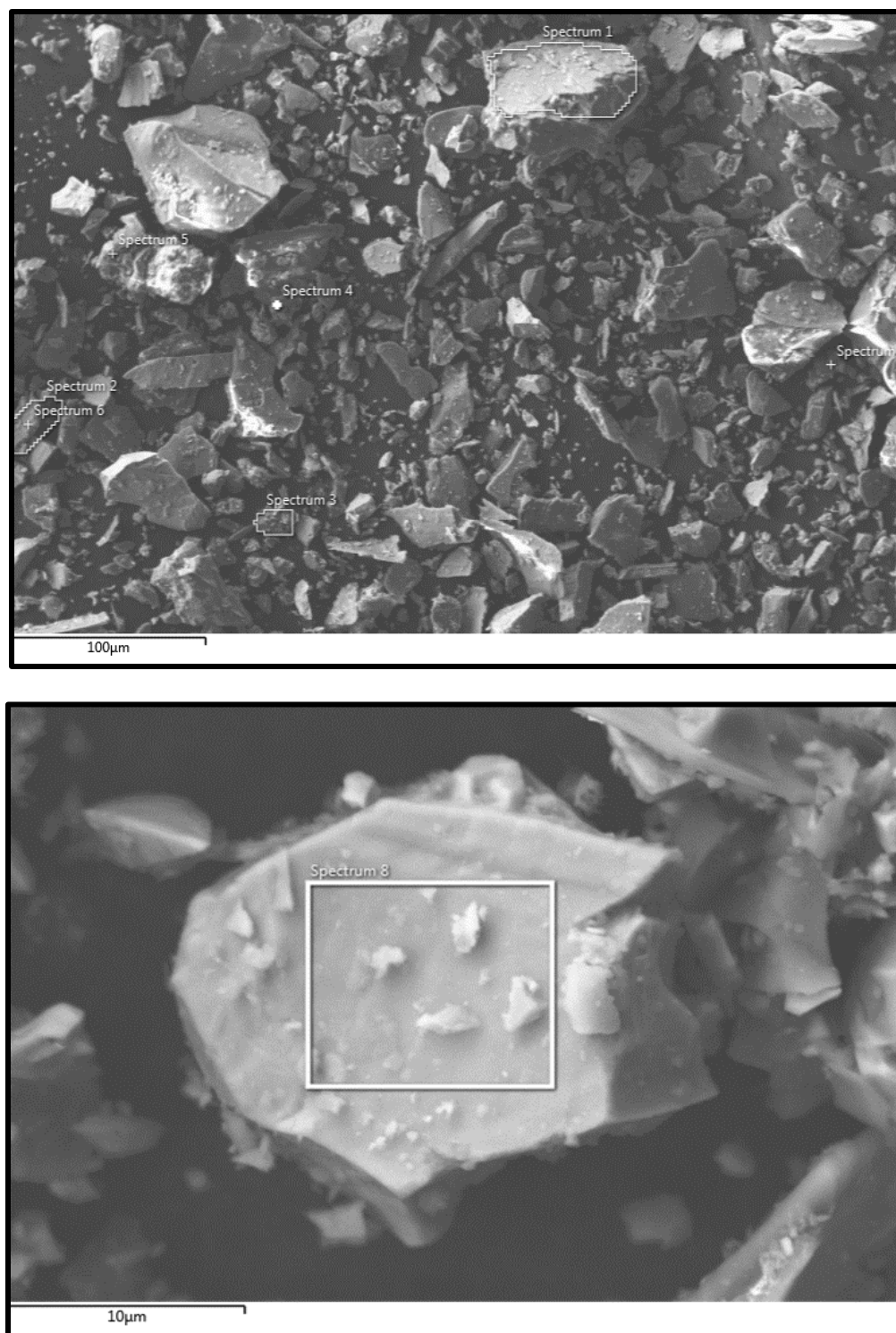


Figure D 2 Analyse complémentaire par MEB du résidu Laronde avant test cinétique.

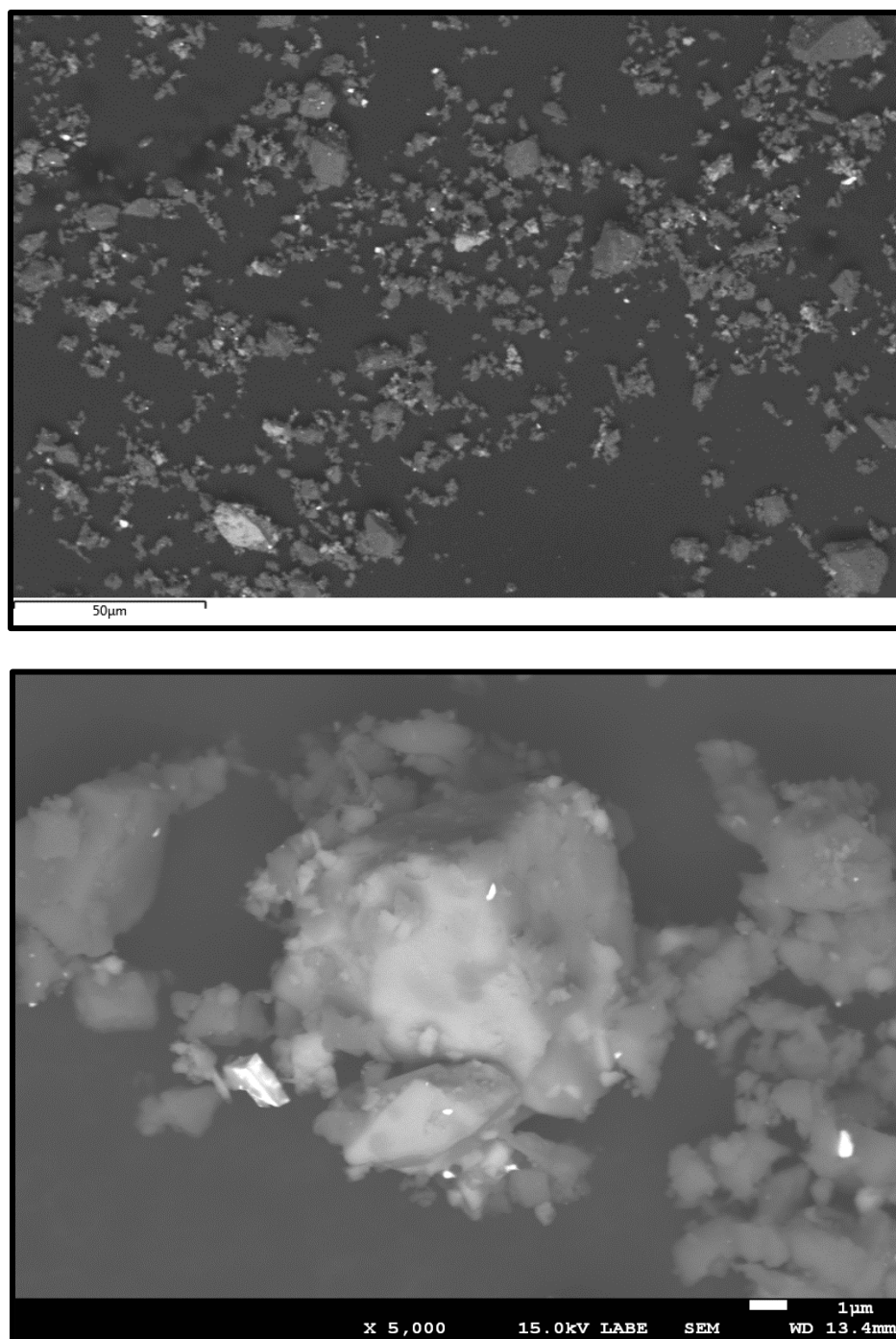


Figure D 3 Analyse complémentaires par MEB du résidu synthétique avant test cinétique.

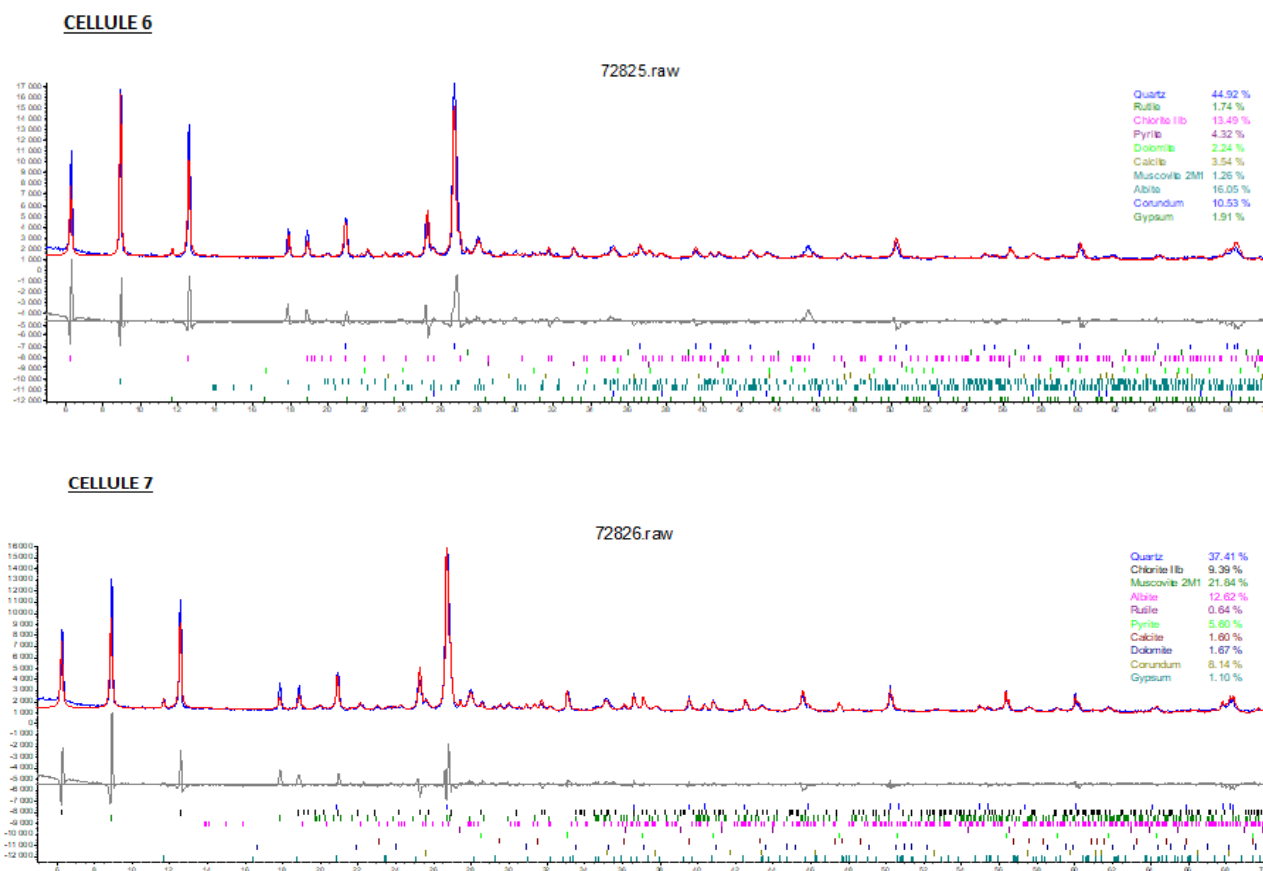


Figure D 4 Analyse complémentaires par DRX du résidu Westwood avant test cinétique.

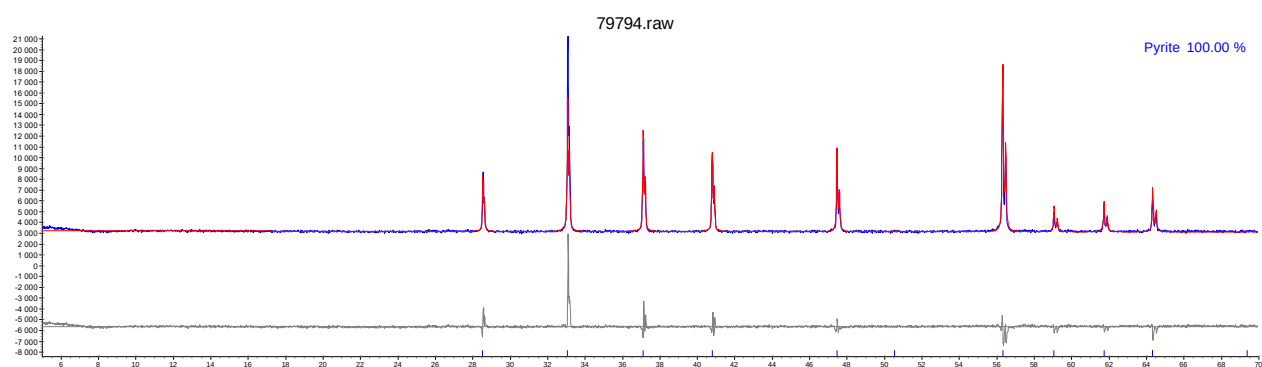
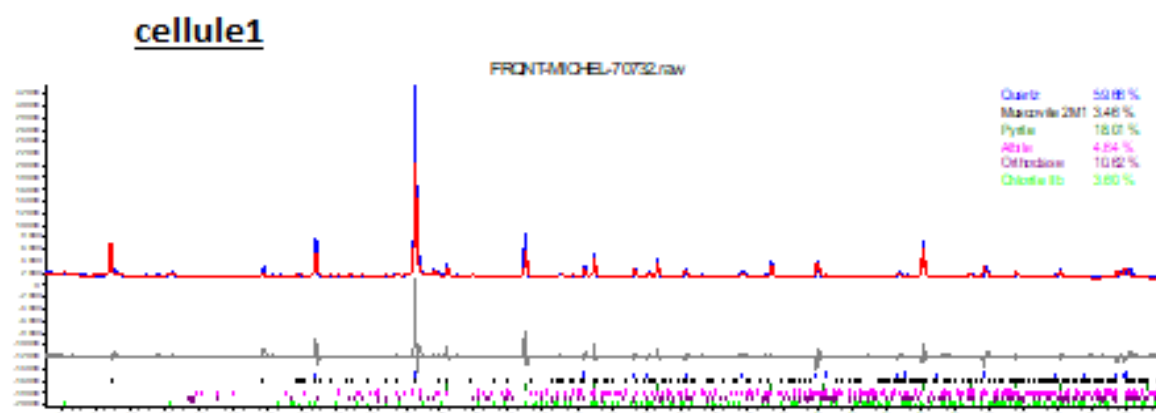
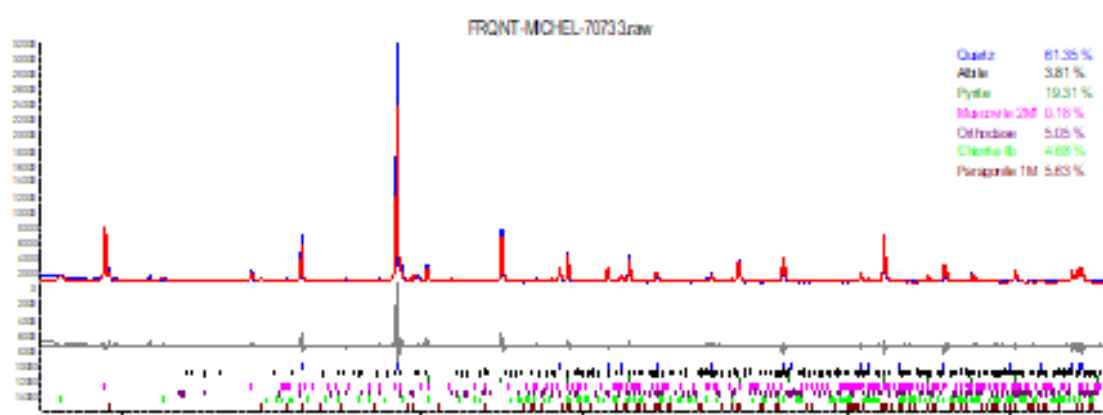


Figure D 5 Analyse complémentaires par DRX du résidu synthétique avant test cinétique



Cellule 2



cellule3

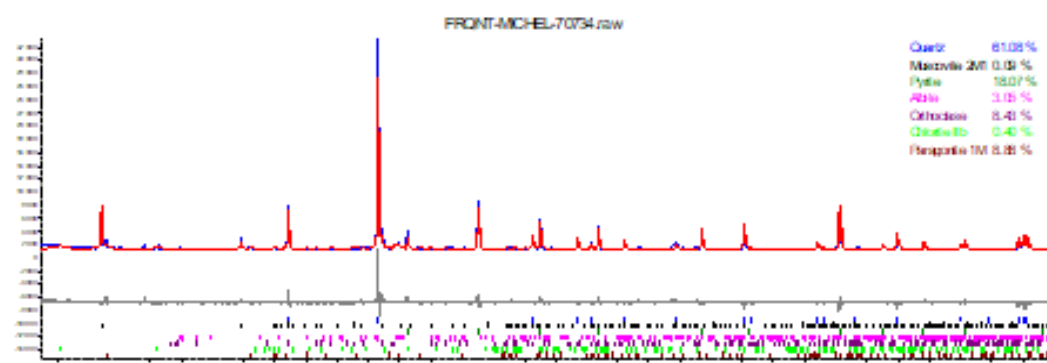


Figure D 6 Analyse complémentaires par DRX du résidu Laronde avant test cinétique.

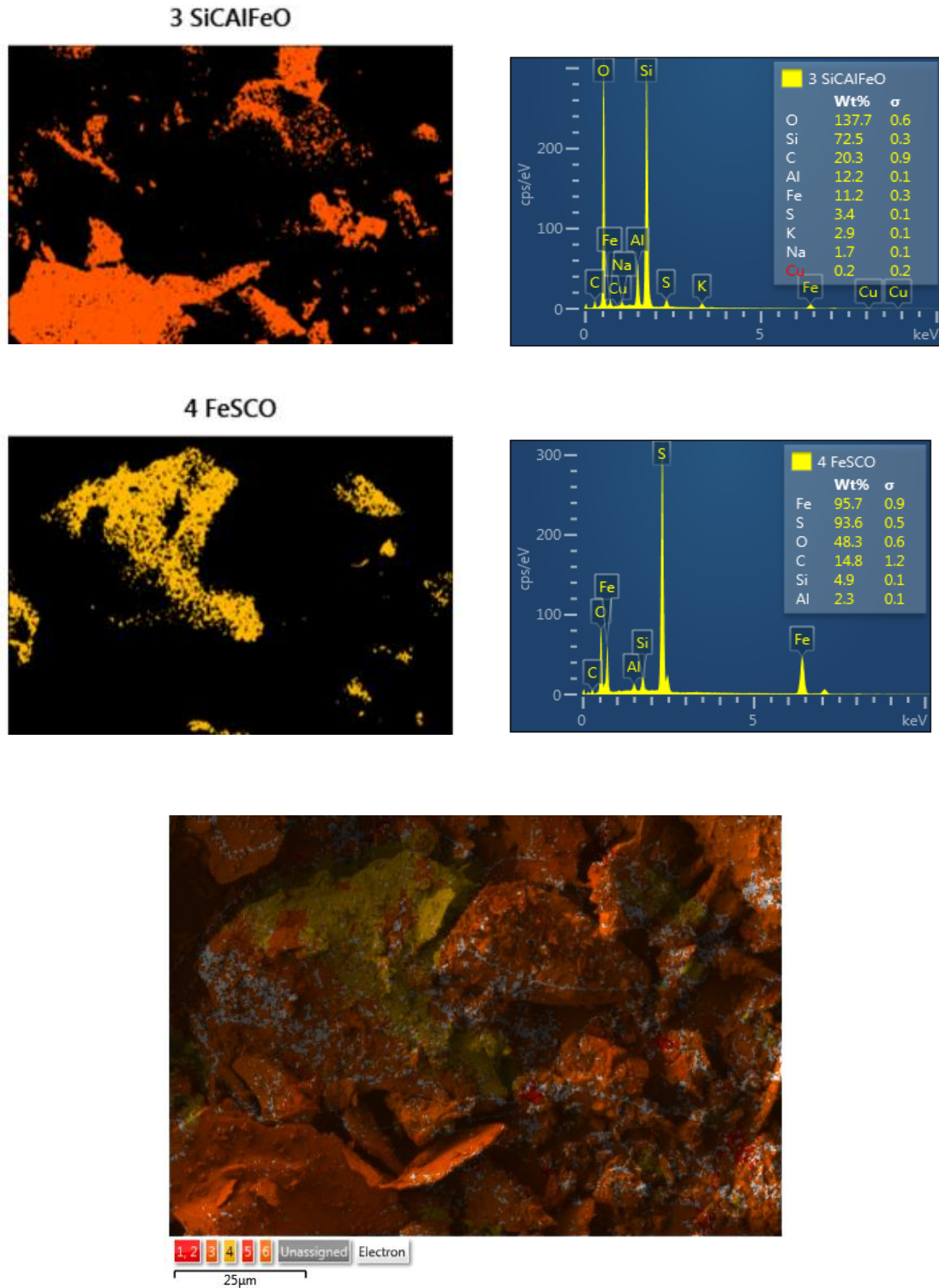


Figure D.7 :

Figure D 7 Analyse complémentaires par MEB +EDX du résidu Laronde après test cinétique.

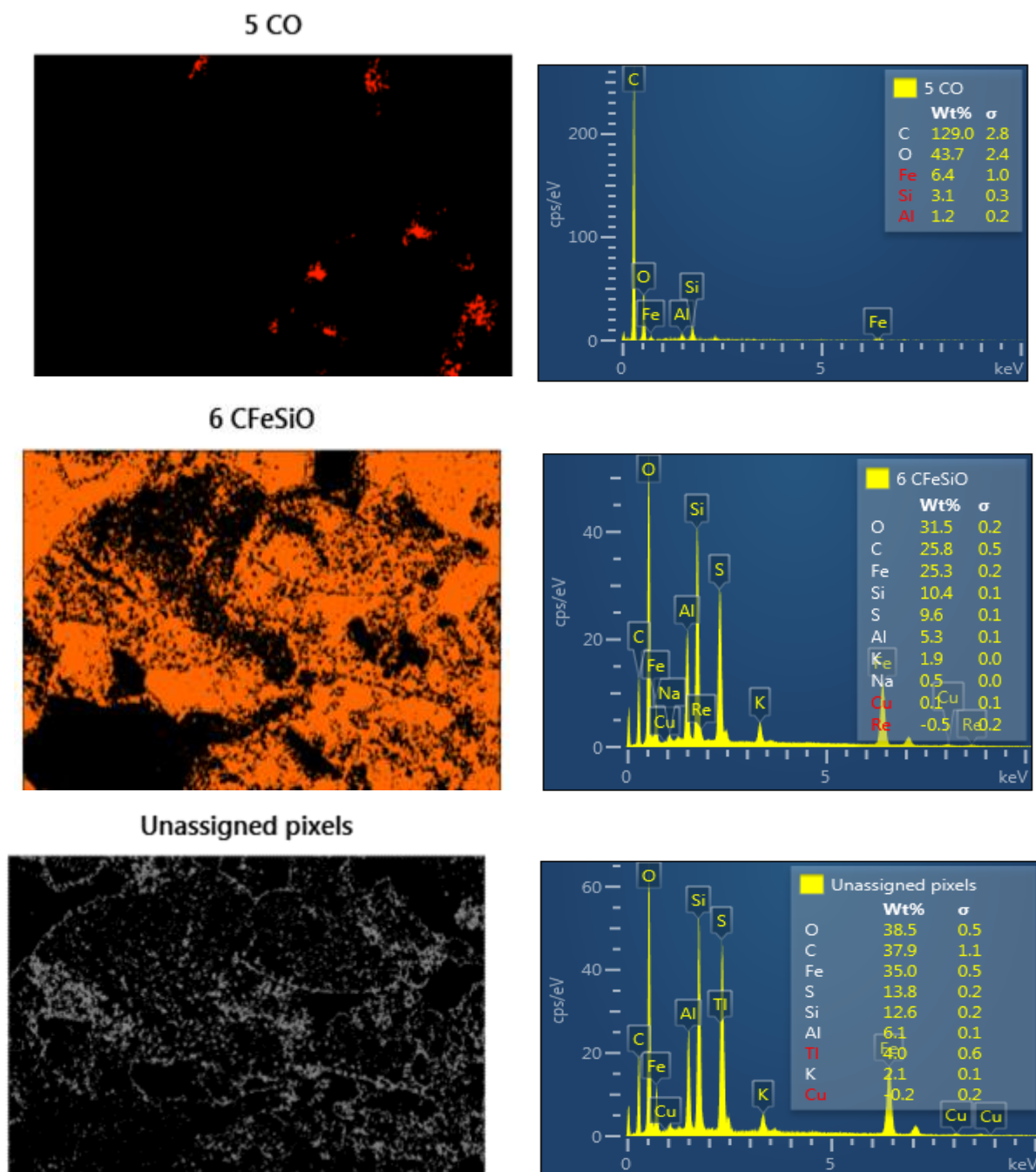


Figure D 8 Analyse complémentaires par MEB +EDX du résidu Laronde après test cinétique.

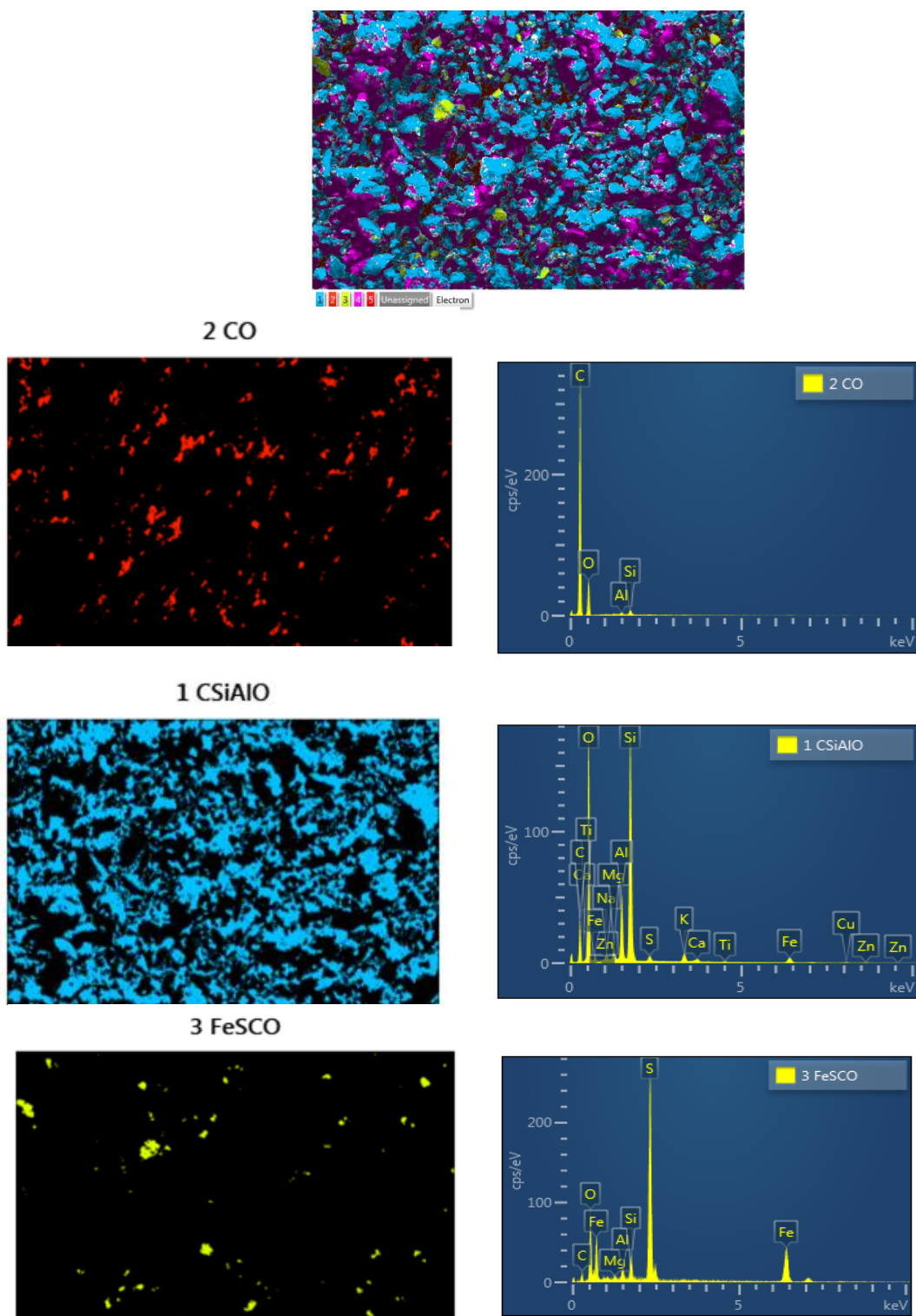


Figure D 9 Analyse complémentaires par MEB +EDX du résidu Westwood après test cinétique.

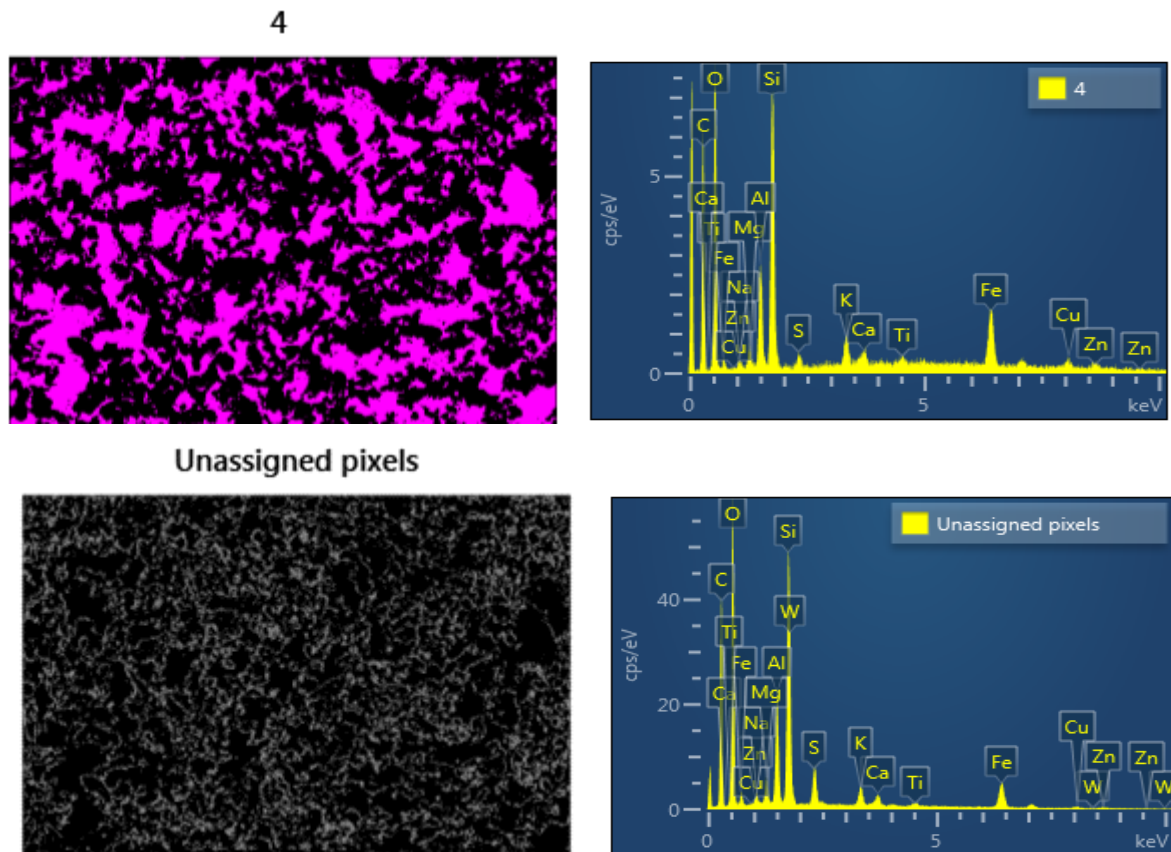


Figure D 10 Analyse complémentaires par MEB +EDX du résidu Westwood après test cinétique (Suite).

ANNEXE E : PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS POUR ANALYSE PAR DRX

La préparation des échantillons pour analyse par diffraction aux rayons X est une étape importante dans l'analyse de la structure cristalline des matériaux. La méthode utilisée dans cette étude est la technique du chargement par l'arrière qui consiste à réaliser les étapes suivantes :

Broyage : Dans un premier lieu, l'échantillon doit être réduit en poudre fine. Dans la présente étude, le broyage a été réalisé à l'aide du broyeur à mortier (Figure E.1).



Figure E 1 Broyeur à mortier.

- (1) : L'anneau du porte- échantillon est fixé sur le socle de préparation;
- (2) : La cavité est rempli par l'échantillon broyé;
- (3) : la poudre est pressée par le bloc;
- (4) : Présence d'un surplus au bord;
- (5) : Élimination du surplus avec une lame rasoir;
- (6) : Surplus enlevé;
- (7) : Fixation de la face arrière du porte échantillon sur l'anneau du porte échantillon;
- (8) : L'échantillon est prêt pour l'utilisation.

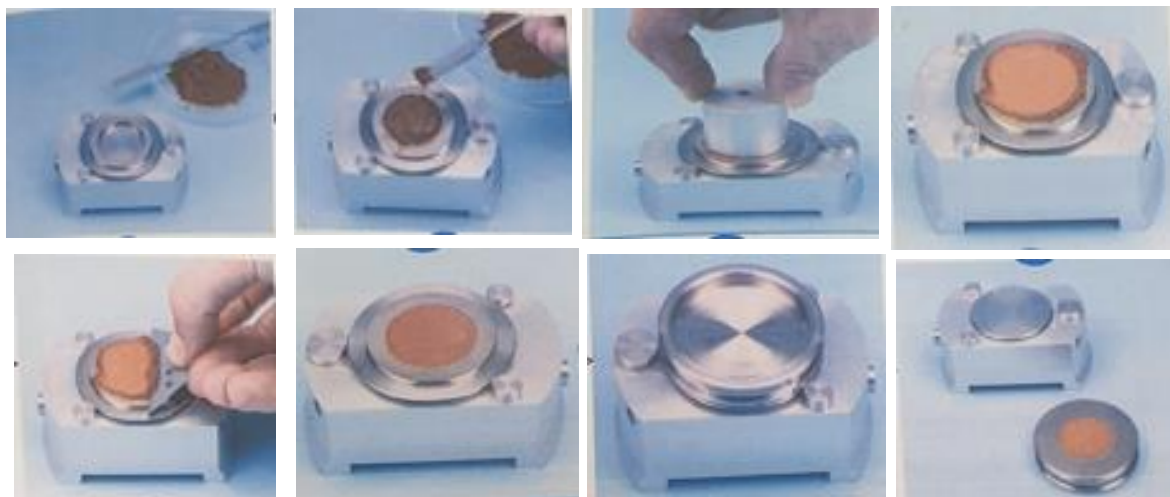
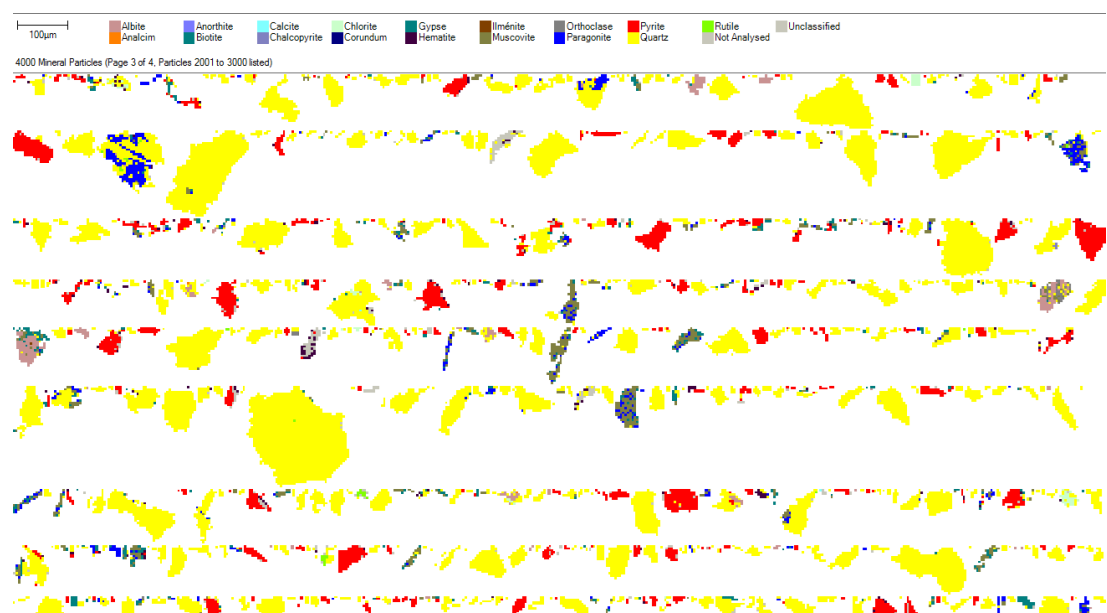
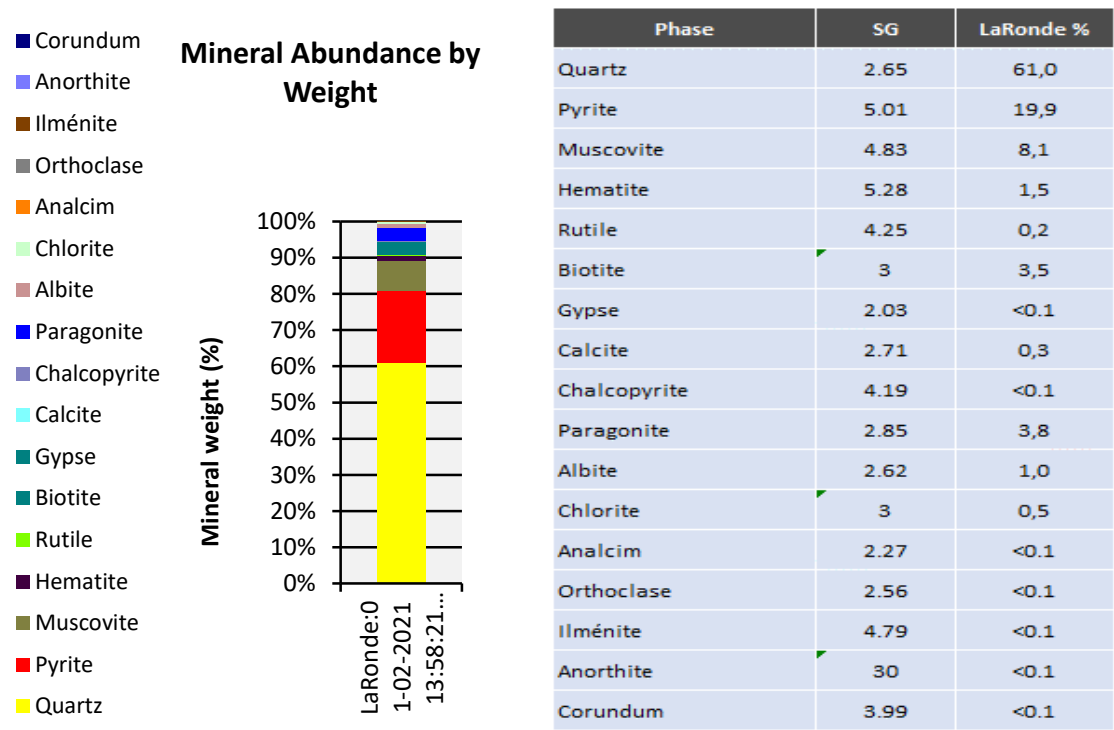
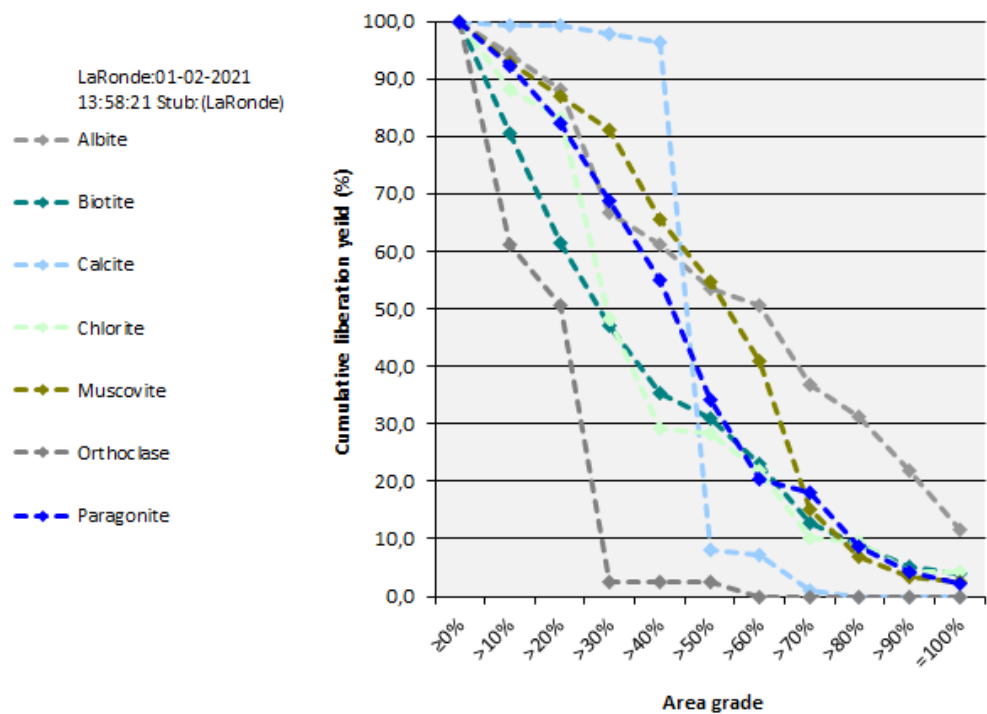


Figure E 2 Préparation des échantillons pour analyse par DRX.

ANNEXE F : ANALYSES DES ECHANTILLONS PAR MICROSCOPE
ELECTRONIQUE A BALAYAGE AUTOMATISE

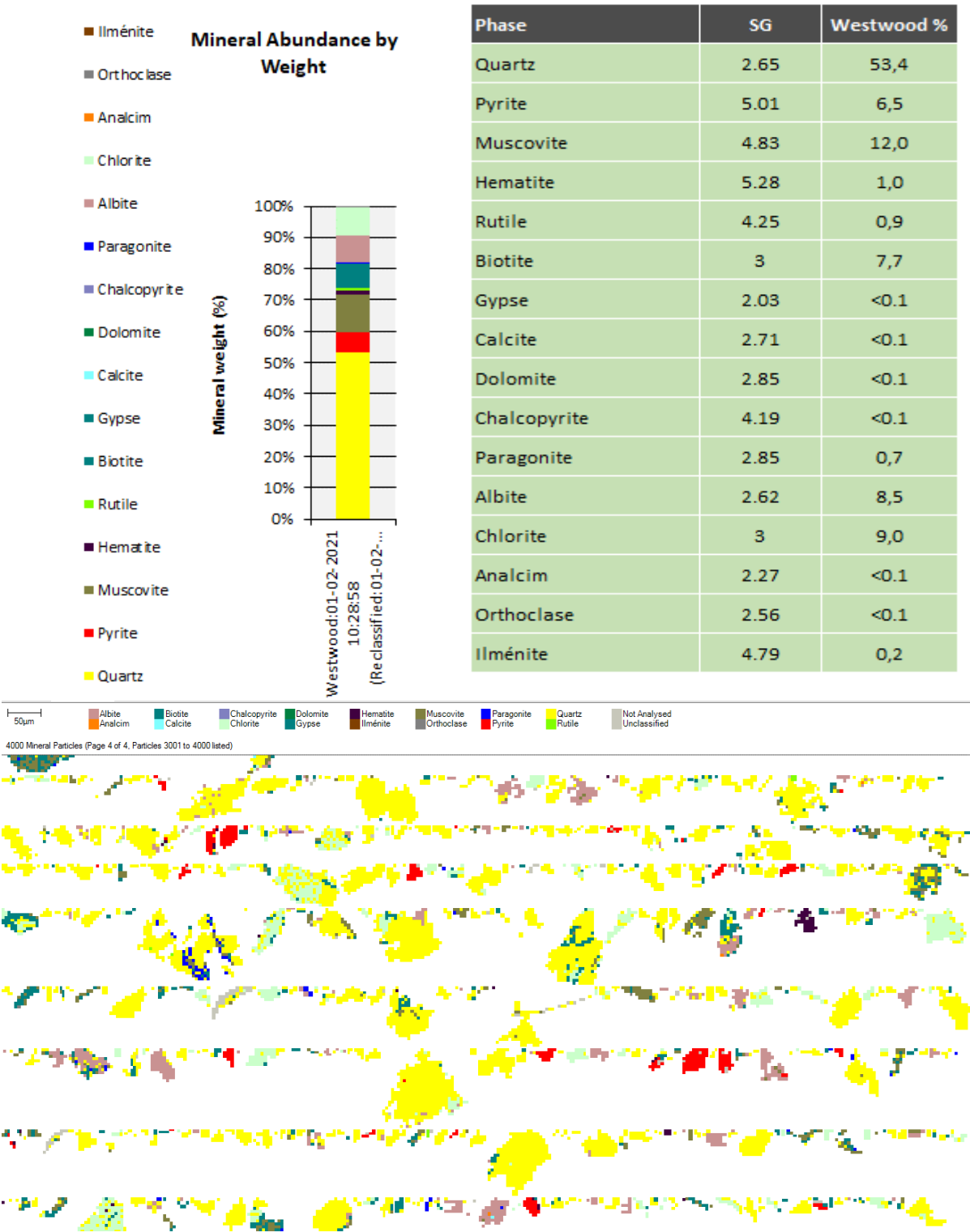


Cumulative Liberation Yield



Area Grade	SG	≥0%	>10%	>20%	>30%	>40%	>50%	>60%	>70%	>80%	>90%	=100%
LaRonde												
Albite	2.62	100,0	94,2	88,2	66,8	61,0	53,5	50,6	36,8	31,2	21,9	11,5
Biotite	3	100,0	80,5	61,4	47,1	35,4	30,9	23,0	12,7	9,1	5,3	3,9
Calcite	2.71	100,0	99,3	99,3	97,9	96,5	8,2	7,1	1,1	--	--	--
Chlorite	3	100,0	88,2	83,1	48,2	29,2	28,3	21,7	10,1	9,4	4,2	4,2
Muscovite	4.83	100,0	92,8	86,9	81,0	65,5	54,6	40,9	15,1	6,9	3,4	2,4
Orthoclase	2.56	100,0	61,0	50,6	2,6	2,6	2,6	--	--	--	--	--
Paragonite	2.85	100,0	92,3	82,4	68,7	55,1	34,3	20,4	18,0	8,7	4,2	2,1

Figure F 1Cartographie minérale des grains analysés pour l'échantillon Laronde et degrés de libération des différentes phases minéralogiques.



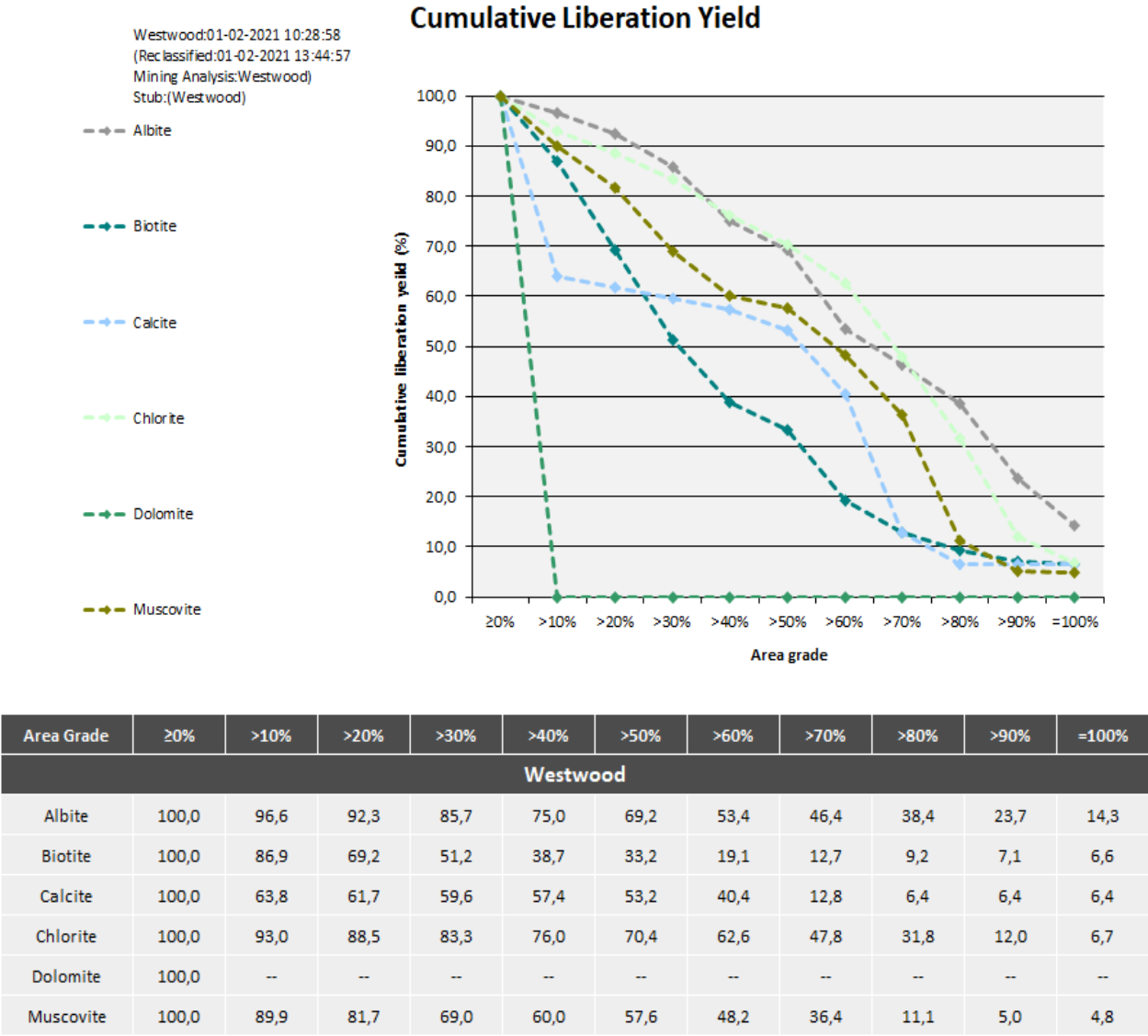


Figure F 2 Cartographie minérale des grains analysés pour l'échantillon Westwood et degrés de libération des différentes phases minéralogiques.

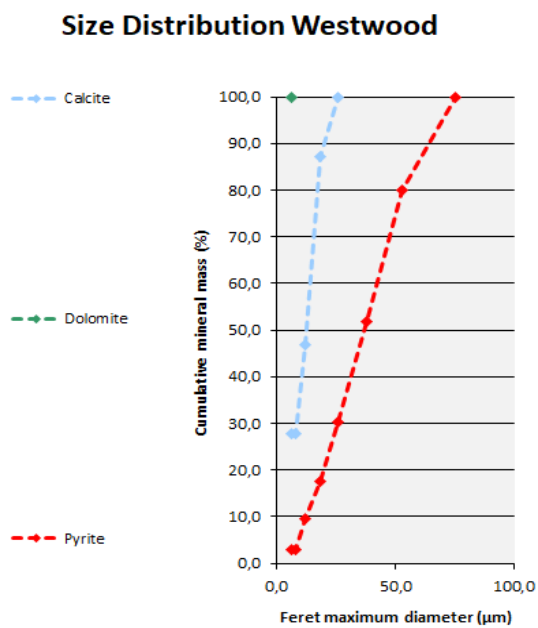
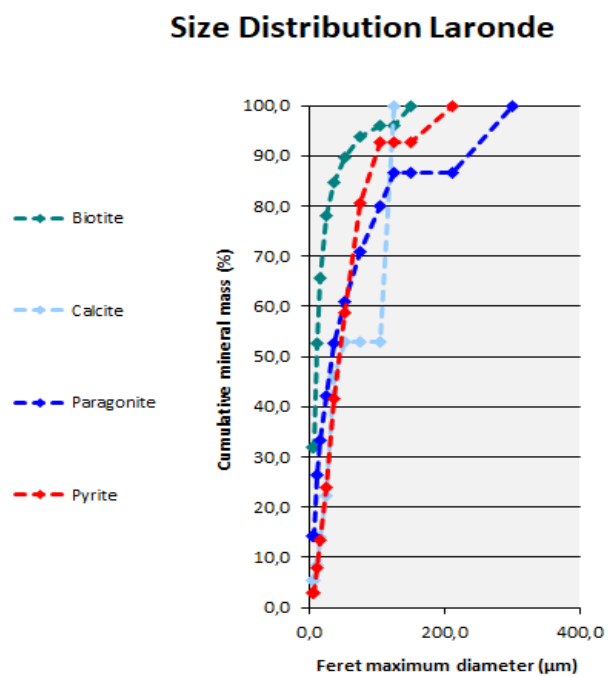


Figure F 3 Distribution par taille pour les deux échantillons, Laronde et Westwood.

ANNEXE G : ANALYSES DES CYANURES DURANT LES ESSAIS CINÉTIQUES

PARAMÈTRES CONVENTIONNELS (SOLIDE)

ID Maxxam					FG5998		
Date d'échantillonnage					2018/05/07		
# Bordereau					175025-01-01		
	Unités	A	B	C	LA RONDE SOLIDE	LDR	Lot CQ
% HUMIDITÉ	%	-	-	-	33	N/A	N/A
CONVENTIONNELS							
Cyanures Totaux	mg/kg	2	50	500	2.9	0.50	1896506
LDR = Limite de détection rapportée Lot CQ = Lot contrôle qualité N/A = Non Applicable							

PARAMÈTRES CONVENTIONNELS (EAU)

ID Maxxam		FG5994	FG5995	FG5996	FG5997		
Date d'échantillonnage		2018/05/07	2018/05/07	2018/05/07	2018/05/07		
# Bordereau		175025-01-01	175025-01-01	175025-01-01	175025-01-01		
	Unités	CELLULE1 DEBUT	CELLULE1 FIN	CELLULE3 DEBUT	CELLULE7 DEBUT	LDR	Lot CQ
CONVENTIONNELS							
Cyanures Totaux	mg/L	0.0060	<0.0030	0.022	<0.0030	0.0030	1896612
LDR = Limite de détection rapportée Lot CQ = Lot contrôle qualité							

Figure G 1 Analyse des cyanures durant les essais cinétique (Westwood-Laronde)

ANNEXE H : PHOTOS DU MONTAGE ET DÉMONTAGE DES DIFFÉRENTS ESSAIS CINÉTIQUES

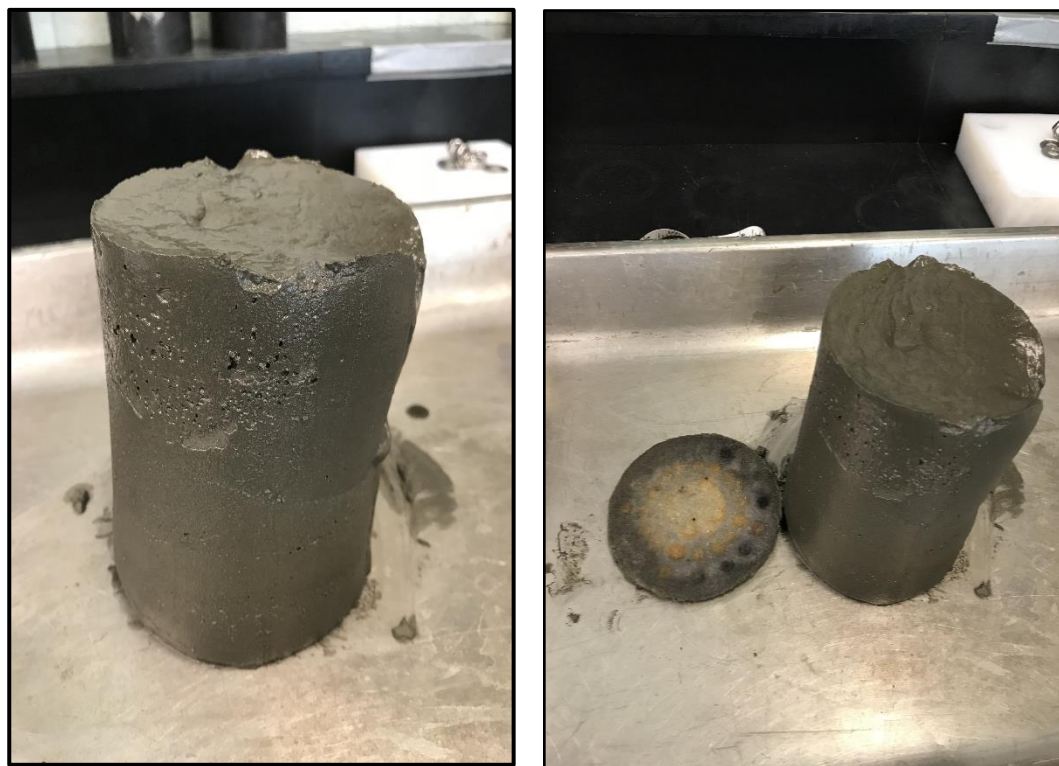


Figure H 1 Démontage des cellules après essais cinétiques en milieu saturé à pH neutre



Figure H 2 Démontage des cellules après essais cinétiques en milieu saturé à pH acide.



Figure H 3 Essais cinétiques en milieu saturé avec instrumentation des cellules.

ANNEXE I : DÉTERMINATION DE LA MASSE VOLUMIQUE SÈCHE, INDICE DES VIDES ET POROSITÉ

La masse volumique sèche (ρ_d), l'indice des vides (e) et la porosité (n) sont évalués pour chaque tranche des matériaux testés au montage des cellules et des colonnes expérimentales. On calcule, la masse volumique ρ_d et l'indice des vides e , en utilisant les données de montage ou démontage des cellules et des colonnes, selon les équations suivantes:

$$\rho_d = \frac{M_s}{V_T} \quad (90)$$

$$\rho_d = D_r (1-n) \rho_w \frac{D_r \rho_w}{1+e} \quad (91)$$

$$\gamma_d = g \rho_d \quad (92)$$

$$\rho_s = \frac{M_s}{V_s} = \rho_w D_r \quad (93)$$

$$V_s = \frac{M_s}{\rho_s} = \frac{M_s}{D_r \rho_w} \quad (94)$$

$$n(\%) = \left(\frac{e}{1+e} \right) \times 100 = \left(\frac{V_e}{V_t} \right) \times 100 = \left(\frac{V_t - V_s}{V_t} \right) \times 100 = \left(1 - \frac{\rho_d}{\rho_s} \right) \times 100 \quad (95)$$

$$e = \frac{V_v}{V_s} = \frac{V_t - V_s}{V_s} = \frac{D_r \rho_w}{\rho_d} - 1 \quad (96)$$

M_s : masse des grains solides [M].

V_T : volume total de l'échantillon [L3].

D_r : densité relative des grains [-].

n : porosité [-].

e : indice des vides [-].

g : accélération gravitationnelle [L/T²].

V_s : volume des grains solides [L3].

V_v : volume des vides [L3].

ρ_d : masse volumique sèche [M/L3].

ρ_s : masse volumique des grains solides [M/L3].

ρ_w : masse volumique de l'eau [M/L3].

ANNEXE J : ÉVALUATION QUALITATIVE DE L'ACTIVITÉ BACTÉRIENNE DANS LES RÉSIDUS MINIER.

L'objectif visé dans cette étude expérimentale est l'évaluation qualitative de l'activité de microorganismes présents dans les résidus miniers sulfureux. Il s'agira de suivre l'influence de l'activité des bactéries sur la production d'acide dans l'oxydation des sulfures. Les populations bactériennes impliquées sont :

- les bactéries ferro-oxydantes acidophiles;
- les bactéries sulfo-oxydantes acidophiles;
- les bactéries sulfo-oxydantes neutrophiles.

Cette méthode d'évaluation comprend les principales phases suivantes (1) Incubation sur agitateur rotatif pendant 3 à 4 semaines à $23 \pm 2^\circ\text{C}$. (2) Suivi du pH et du POR parallèlement pour des résidus non stérilisés et pour des résidus stérilisés utilisés comme témoins. (3) Comparaison des résultats de résidus non stérilisés par rapport aux résidus stérilisés dans les mêmes conditions de milieu.

Il y a six types d'échantillons à l'étude. Ce sont des résidus qui proviennent des mines Laronde et Westwood de la province du Québec en Abitibi-Témiscamingue. Il s'agit de :

1. Résidus Westwood à l'instant t_0 (1 échantillon non stérilisé et 1 échantillon stérilisé).
2. Résidus Westwood après démantèlement des essais cinétiques à pH neutre (1 échantillon non stérilisé et 1 échantillon stérilisé).
3. Résidus Westwood après démantèlement des essais cinétiques à pH acide (1 échantillon non stérilisé et 1 échantillon stérilisé).
4. Résidus Laronde à l'instant t_0 (1 échantillon non stérilisé et 1 échantillon stérilisé).
5. Résidus Laronde après démantèlement des essais cinétiques à pH neutre (1 échantillon non stérilisé et 1 échantillon stérilisé).
6. Résidus Laronde après démantèlement des essais cinétiques à pH acide (1 échantillon non stérilisé et 1 échantillon stérilisé).

Stérilisation des milieux et du matériel

Tout le matériel utilisé a été stérilisé, soit à l'autoclave pendant au moins 30 minutes à 121°C, essentiellement la verrerie (Erlenmeyer, béchers, spatules, entonnoirs) et l'eau ou soit avec de l'éthanol à 70 %. Pendant la prise des mesures, les électrodes ont été stérilisées avec la solution d'éthanol. Avec la pissette contenant l'éthanol 70%, vaporiser les électrodes et laisser agir pendant au moins 1 minute; rincer ensuite à l'eau déionisée.

La stérilisation des résidus a été réalisée directement dans l'ermenmeyer contenant environ 2,25 g de résidus avec l'ajout de 1,125 mg de chlorure de mercure (HgCl_2) (Wolf et al.1989). L'ajout du réactif a été réalisé sous la hotte chimique.

Préparation des solutions

- Préparation de la solution 1

Dans une fiole jaugée de 1000 ml, 3 g de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ et 10 g de $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ont été mis dans une fiole jaugée de 1000 ml puis compléter avec de l'eau déionisée stérilisée ce qui correspond à 0,3 % (p/v) de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ et 1 % (p/v) de $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$. Une fois préparée, la solution 1 doit être utilisée immédiatement sinon il y a précipitation du fer au contact de la lumière et de l'air.

- Préparation de la solution 2

Dans une fiole jaugée de 1000 ml, 3 g de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ et ajouté à l'eau déionisée stérilisée ce qui correspond à 0,3 % (p/v) de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$.

- Préparation de la solution 3

Dans une fiole jaugée de 2000 ml, 0,8 g de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ et 6 g de KH_2PO_4 sont ajoutés à l'eau déionisée stérilisée ce qui correspond à 0,3 % (p/v) de KH_2PO_4 , 0,4g/l de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$.

- Préparation de la solution d'éthanol à 70 %

Dans un ballon jaugé de 250 ml, un volume de 184,2 ml d'éthanol à 95 % et ajouter à l'eau déionisée.

Calcul

$$(250 \text{ ml} \cdot 70\%) / 95\% = 184,2 \text{ ml}$$

- Préparation de la solution NaOH 2N

Une masse de 20 g de NaOH est mise dans un ballon jaugé de 250 ml contenant déjà de l'eau déionisée stérilisée puis ajuster. Les produits chimiques qui ont été utilisés sont présentés dans le tableau suivant :

Tableau J.1 : Les réactifs utilisés dans la caractérisation microbiologique

FeSO ₄ .7H ₂ O Sulfate de fer heptahydraté (Fisher Scientific I146-500) ACS
(NH ₄) ₂ SO ₄ Sulfate d'ammonium (Fisher Scientific A702-500) ACS
KH ₂ PO ₄ potassium hydrophosphate (Fisher Scientific P285-500) ACS
Soufre élémentaire (Zirkonium MK840004) ACS
Eau déionisée
Eau distillée
Eau déionisée stérilisée (autoclavée)
Eau distillée stérilisée (autoclavée)
NaOH (Zirkonium 5-3700) ACS
H ₂ SO ₄ 0,5N (VWR VVV3233-13) ACS
Éthanol (95 %) (VWR EM EX0285-3) ACS
HgCl ₂ Chlorure de mercure (Anachemia 56166-140) ACS
Sel dessicant

Isolement et observation des souches bactériennes

Les ferrooxidantes acidophiles

Le milieu 9 K a été utilisé comme milieu de culture spécifique, ce dernier offre aux bactéries du fer ferreux comme unique source d'énergie. Il a été conçu principalement pour la croissance des bactéries ferrooxidantes acidophiles. Sa composition est la suivante :

Solution A:

- (NH₄)₂SO₄..... 3.0g.
- KCL 0.1g.
- K₂HPO₄.....0.5g.
- MgSO₄, 7H₂O.....0.5g.
- Ca (NO₃)₂.....0.015g.

Solution B: 22g de FeSO₄, 7H₂O dans 150 ml d'eau à pH 2.5 (ajuster avec H₂SO₄).

Solution C : 5g d'agent gélifiant dans 250 ml d'eau déminéralisée.

Les solutions A et C sont autoclavées à 110°C 20min .la solution C est stérilisé par filtration. Un litre de milieu est obtenu par mélange des solutions A, B et C à 50°C. La gélose est immédiatement coulée dans les boîtes de pétrie.



Figure J 1 Préparation des milieux de cultures et écoulement des géloses.

Les sulphooxidantes acidophiles

Dans cette étude, le soufre élémentaire a été ajouté au milieu de culture.

Le Milieu S (Postgate, 1996) :

- Soufre ou $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 10g/5g.
- $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 2 à 4g.
- KH_2PO_4 2g.
- MgSO_4 0.5g.
- CaCl_2 0.25g.
- $\text{FeSO}_4, 7\text{H}_2\text{O}$ 0.01g.
- Na_2HCO_3 1g.
- Eau distillée 1000ml.

Les sels sont autoclavés à 110 °C pendant 20 minutes. Le soufre est autoclavé à 100°C pendant 1 heure, trois fois à 24 heures d'intervalle.

Durant l'ensemencement des milieux solides : l'inoculum, constitué d'environ 0.1 à 0.5 ml d'une culture d'enrichissement, est étalé sur le milieu solide qui contient la gélose nutritif à l'aide d'une

pipette pasteur. la dispersion progressive de la goutte de suspension bactérienne, avec la pipette à la surface de la gélose, devrait conduire à l'obtention de colonies individuelles.



Figure J 2 Les colonies individuelles des bactéries ferroxidantes acidophiles et sulphooxidantes acidophiles du résidu Westwood après essai cinétique à pH acide.

Une métallisation des échantillons avec métalliseur pendant une durée de 2 minutes sous vide avec le métalliseur EMITECH K500.



Figure J 3 Préparation des échantillons pour observation MEB (Métalliseur EMITECH K500).

Concernant les caractéristiques morphologiques. Les colonies ont été observées à 20 KV sur un microscope électronique à balayage JEOL JSM-6360 LV.

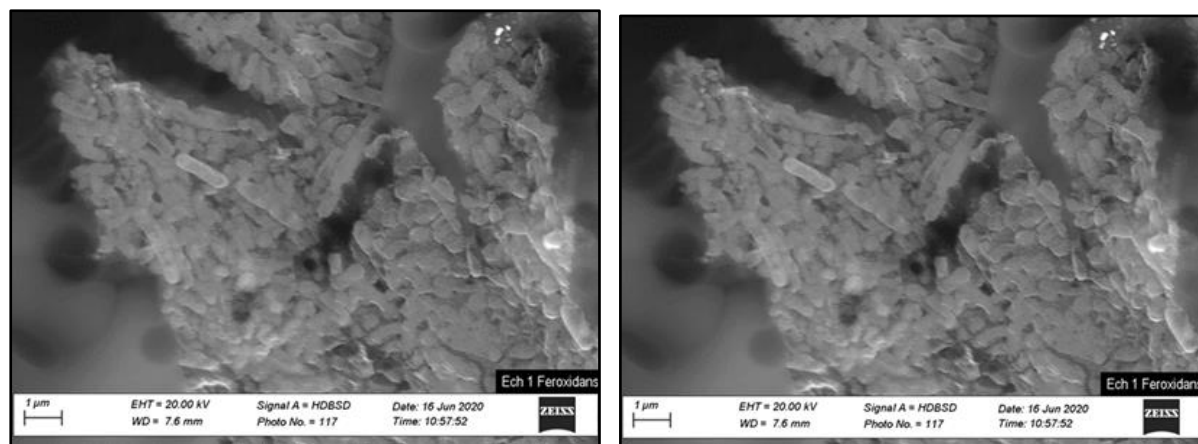


Figure J 4 Observation des colonies des bactéries ferroxydantes acidophiles des résidus Laronde avant les essais cinétiques via le microscope électronique à balayage MEB.

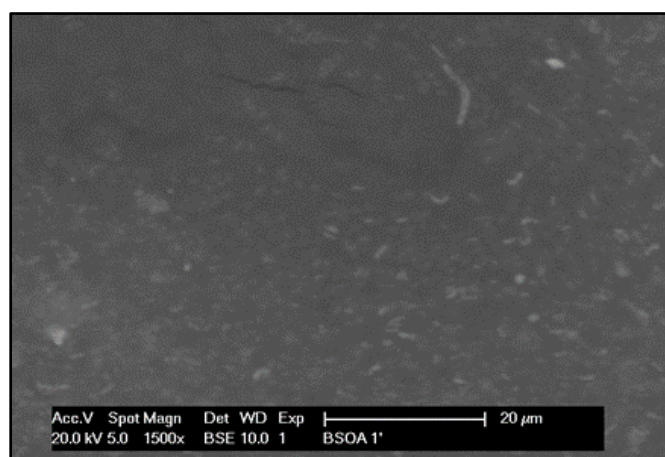


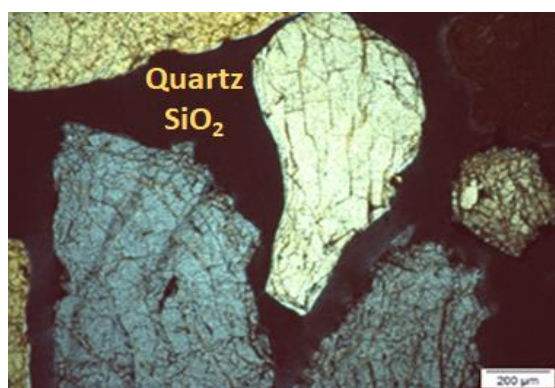
Figure J 5 Observation des colonies des bactéries sulfoxydantes acidophiles des résidus Westwood avant les essais cinétiques via le microscope électronique à balayage MEB.



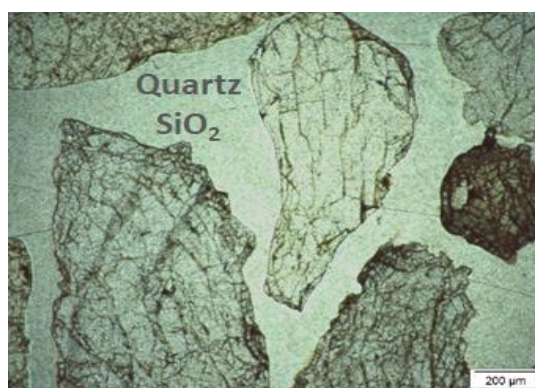
Figure J 6 Observation des milieux de cultures des bactéries ferroxydantes acidophiles et des bactéries sulfoxydantes acidophiles pour le résidu Laronde après les essais cinétiques.

ANNEXE K: LA CARACTÉRISATION PÉTROGRAPHIQUE ET MINÉRALOGIQUE DU SABLE

La caractérisation pétrographique du sable (géochimiquement inerte) utilisé comme inclusion montre une composition 100% minéralogique de nature siliceuse non contaminée. La phase correspondante est représentée par des grains de quartz aux contours parfaits. Afin de montrer la limite parfaite des grains de quartz, les images ont été prises en deux modes: mode lumière polarisée (LP), mode lumière naturelle (LN).



Polarized light



Natural light

URSTM Unité de recherche et de service en technologie minérale
 Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT)
 445, boul. de l'Université, Rouyn-Noranda, Québec, J9X 5E4
 tél. 819.762.0971 poste 2378-2569 | fax 819.797.6672 | uqat.ca

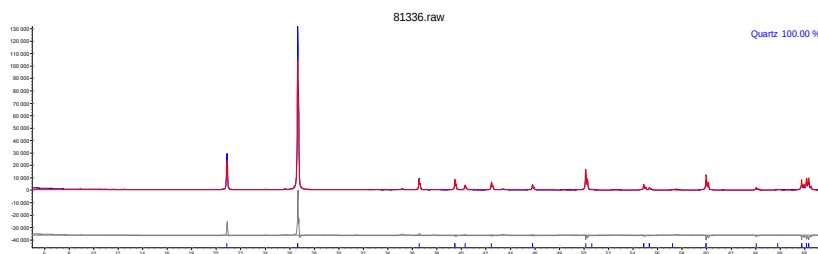


Figure K 1 Analyse complémentaire par DRX du sable utilisé dans les tests cinétiques avec codisposition.

ANNEXE L: IMAGES PAR MEB AUTOMATISE DES RESIDUS LARONDE ET WESTWOOD

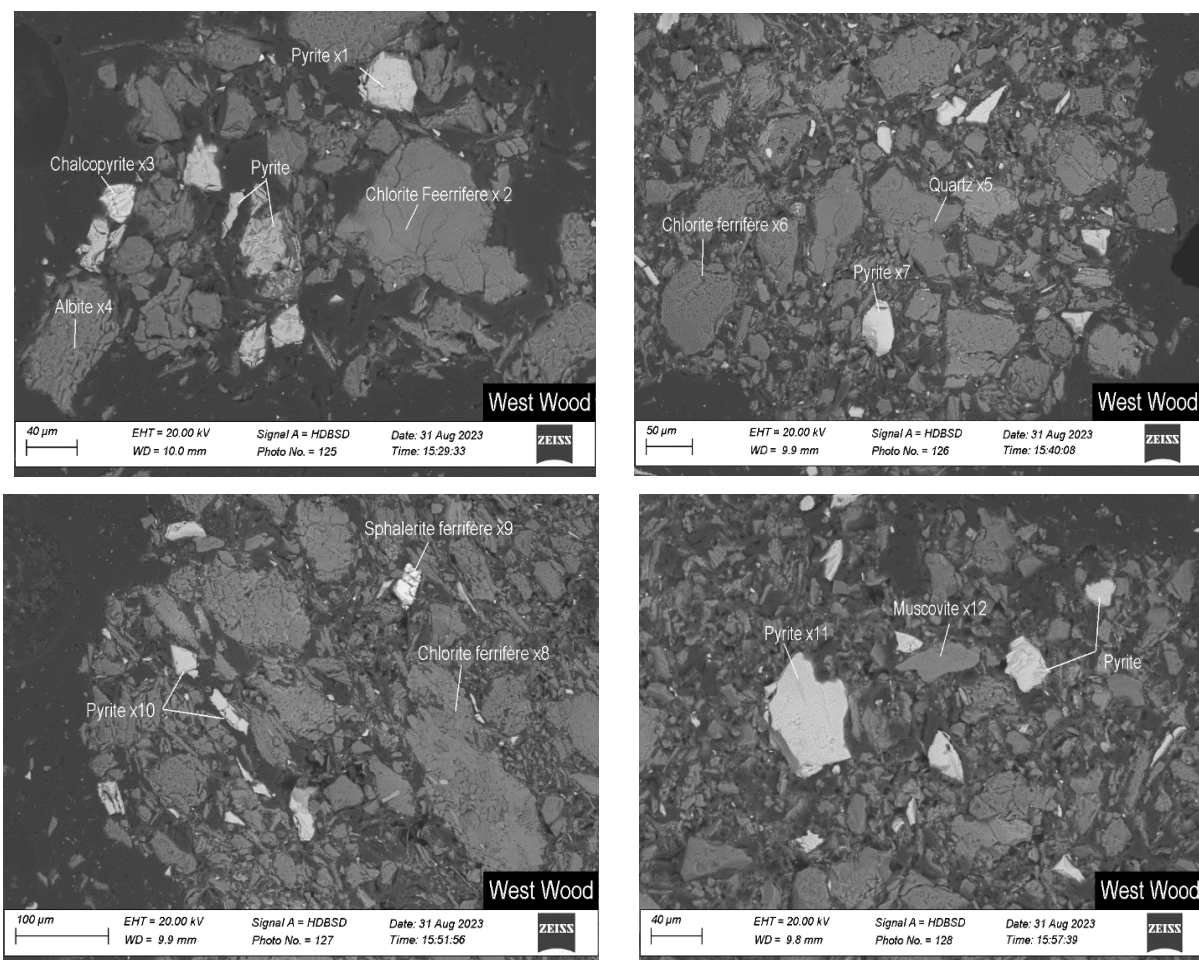


Figure L 1 Analyse complémentaires par MEB automatisé du résidu Westwood.

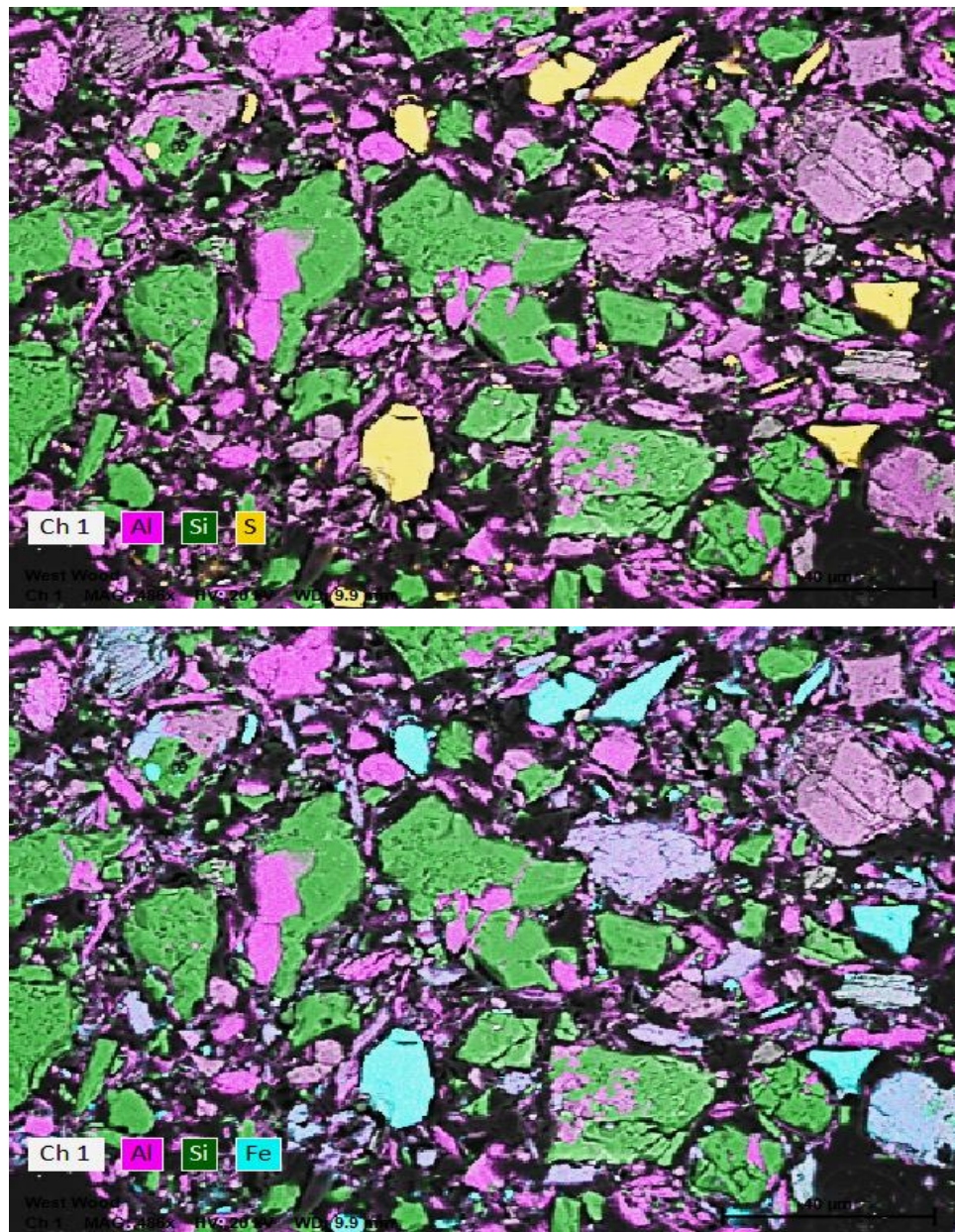


Figure L 2 Cartographie élémentaire du résidu Westwood. L'élément Si réfère aux silicates, Al correspond aux minéraux aluminosilicates, le fer correspond à la pyrite, le soufre représente les sulfures (pyrite+ Chalcopyrite+ Sphalérite).

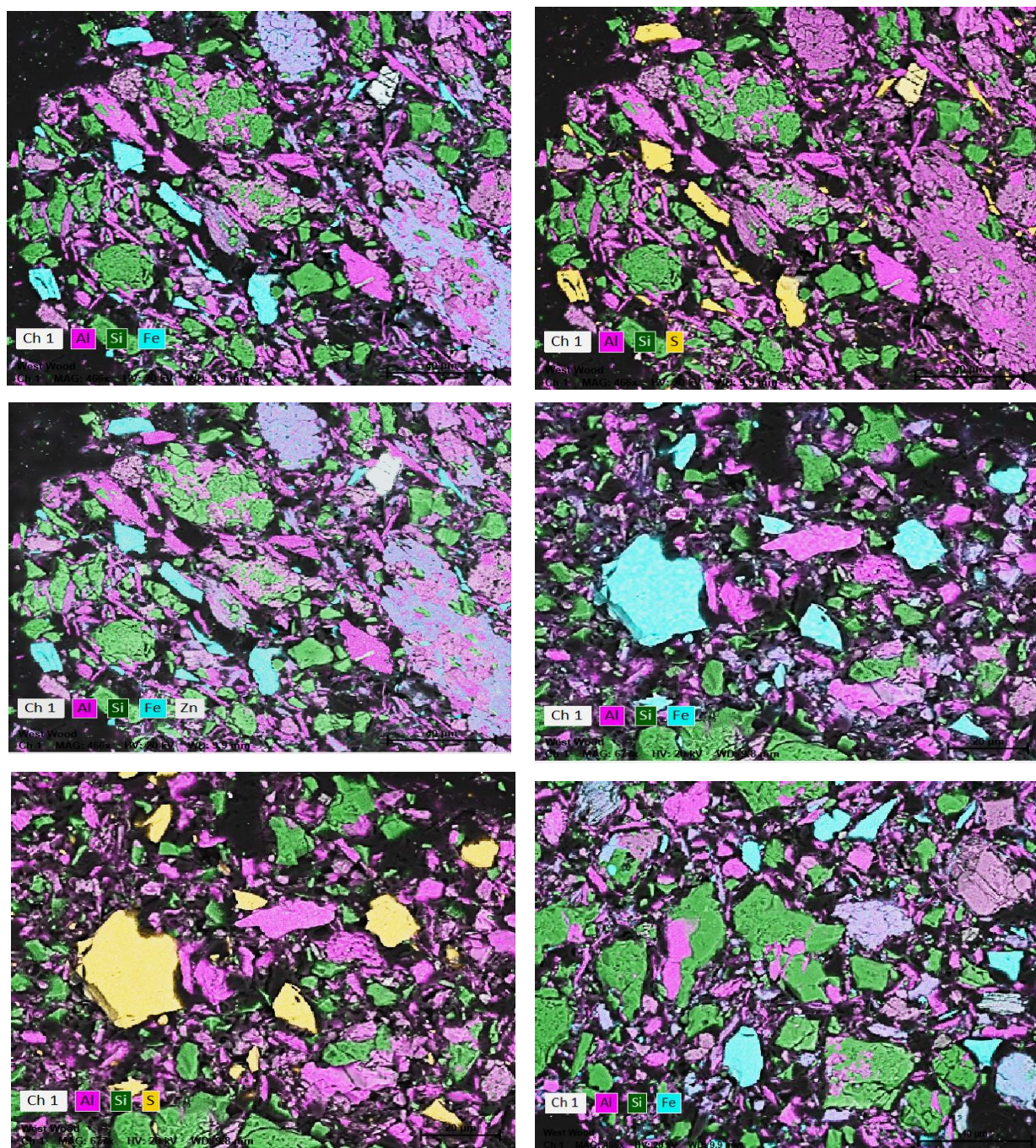


Figure L 3 Cartographie élémentaire du résidu Westwood. L'élément Si réfère aux silicates, Al correspond aux minéraux aluminosilicates, le fer correspond à la pyrite, le soufre représente les sulfures (pyrite).

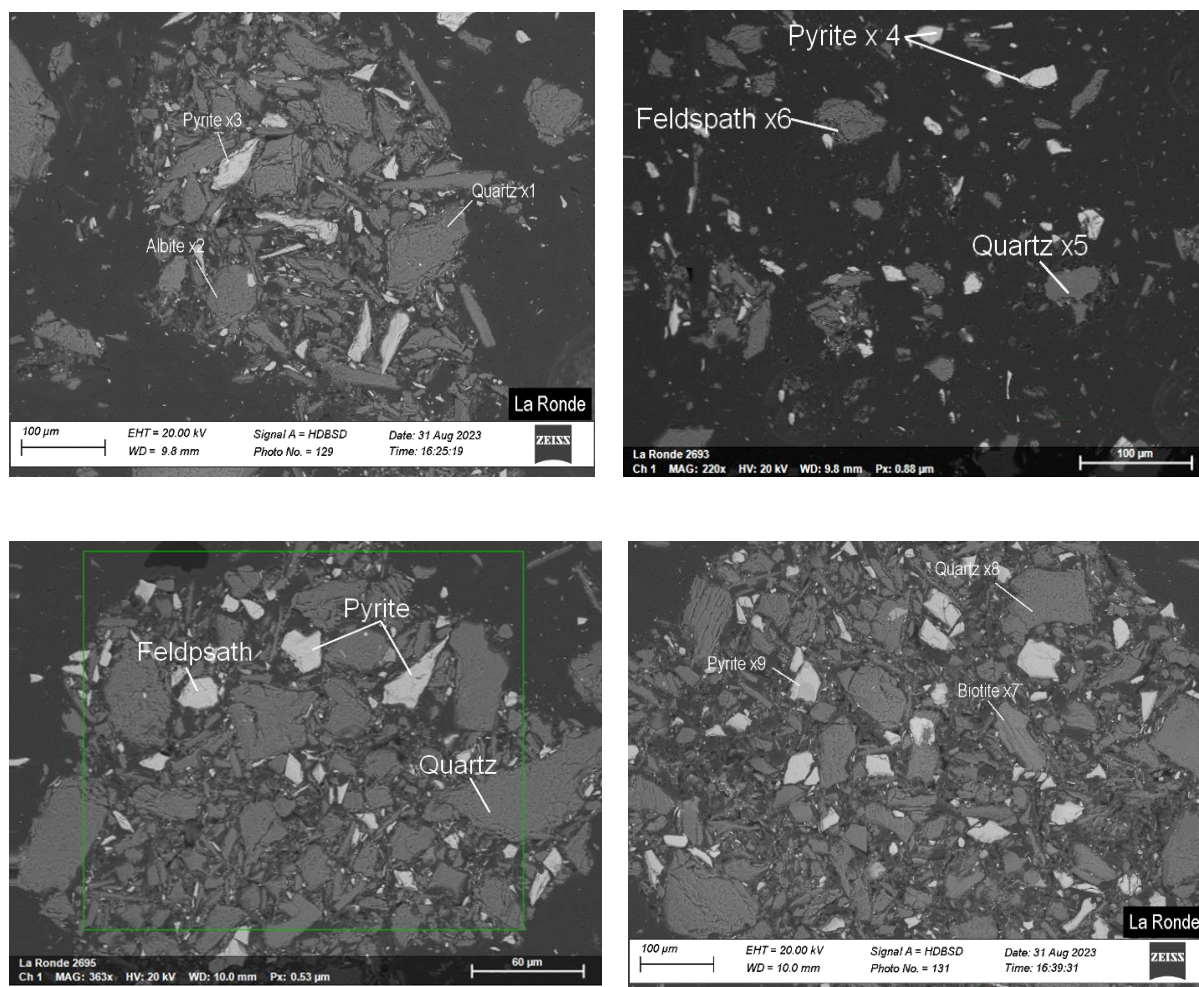


Figure L 4 Analyse complémentaires par MEB automatisé du résidu Laronde.

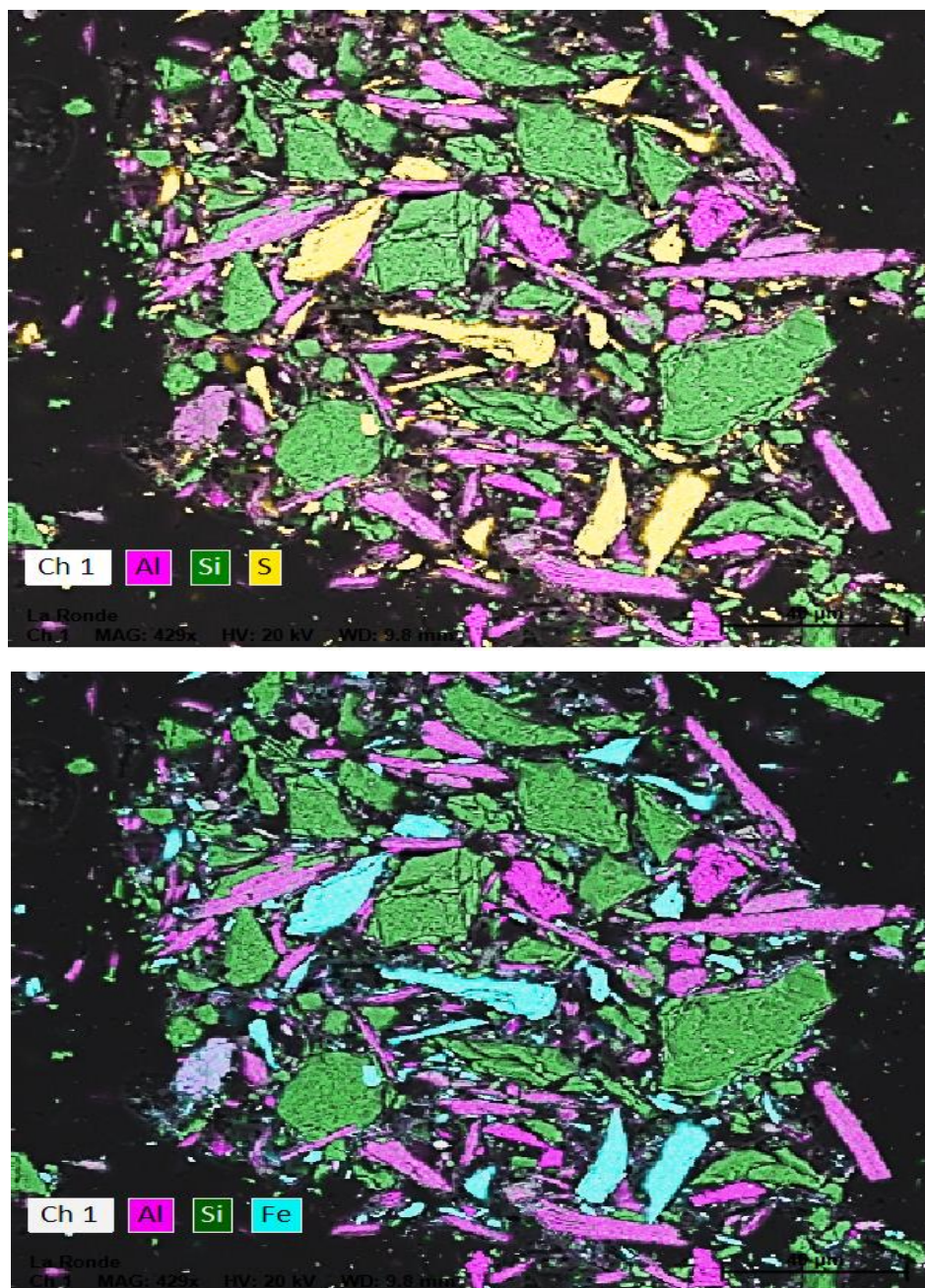


Figure L 5 Cartographie élémentaire du résidu Laronde. L'élément Si réfère aux silicates, Al correspond aux minéraux aluminosilicates, le Mg correspond à la biotite, le fer correspond à la pyrite, le soufre représente les sulfures (pyrite).

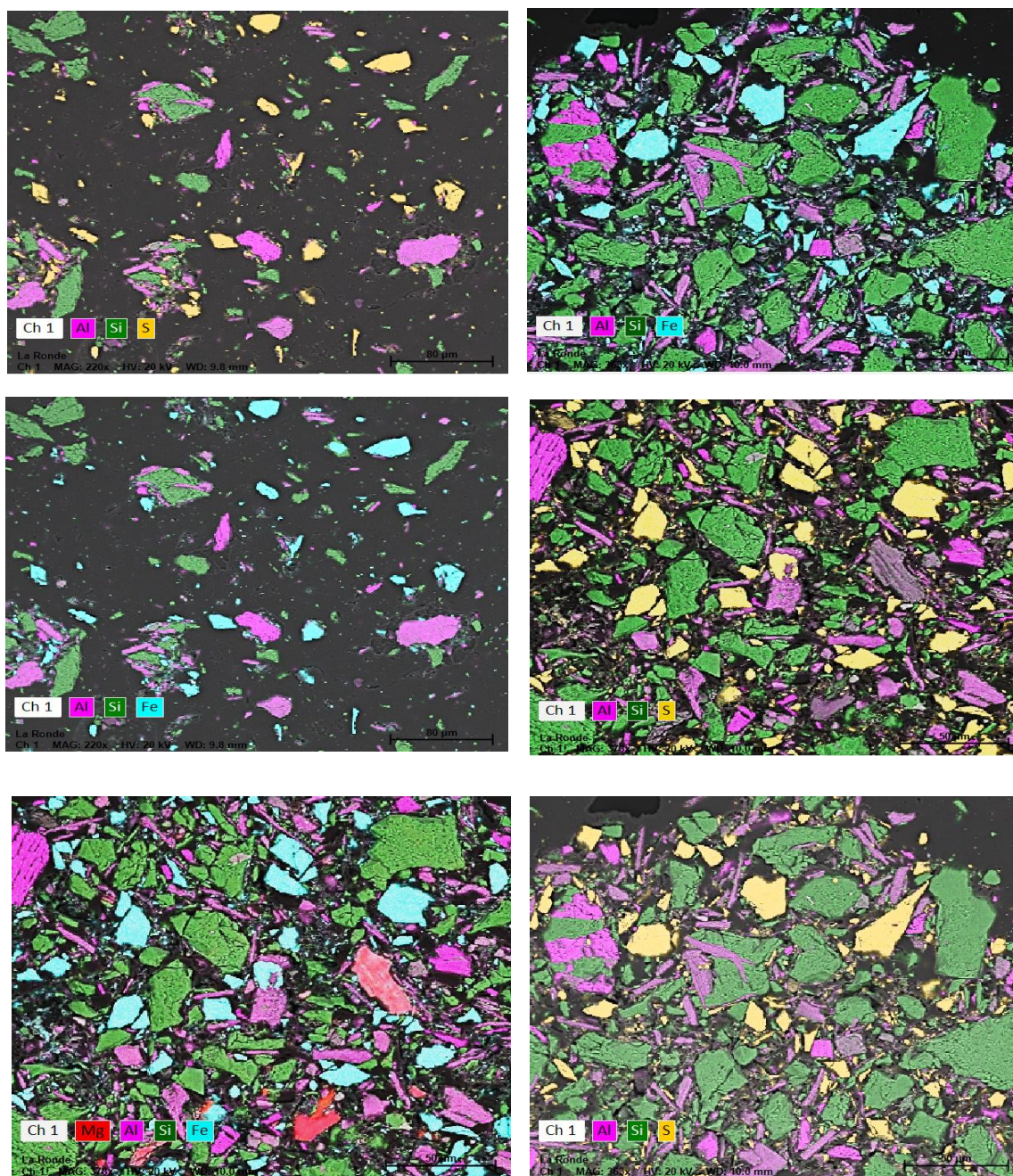


Figure L 6 Cartographie élémentaire du résidu Laronde. L'élément Si réfère aux silicates, Al correspond aux minéraux aluminosilicates, le Mg correspond à la biotite, le fer correspond à la pyrite, le soufre représente les sulfures (pyrite).

ANNEXE M CALCUL DES DEBITS VOLUMIQUES

$$Q_{\text{Sable}} = i * K_{\text{sable}} * \frac{\pi d^2}{4}$$

$$Q_{\text{résidus}} = i * K_{\text{résidus}} * \frac{\pi}{4} (D^2 - d^2)$$

Avec:

- D= 15 cm (Diamètre de la colonne)
- d= 5 cm (Diamètre du sable)
- i= 0,1
- Ksat Laronde = 4×10^{-06}
- Ksat sable= $1,4 \times 10^{-02}$

$$Q_{\text{Sable}} = i * K_{\text{sable}} * \frac{\pi d^2}{4} = 0,1 * \frac{25 * \pi}{4} * 1,4 \times 10^{-02}$$

$$Q_{\text{résidus}} = i * K_{\text{résidus}} * \frac{\pi}{4} (D^2 - d^2) = 0,1 * \frac{200 * \pi}{4} * 4 \times 10^{-06}$$

$$\frac{Q_{\text{Sable}}}{Q_{\text{résidus}}} = \frac{25 * 1,4 \times 10^{-02}}{200 * 4 \times 10^{-06}} = \frac{0,35}{0,0004} = 875 \text{ fois}$$

Le débit volumique qui traverse le sable est 875 fois supérieur au débit volumique qui traverse les tailings.

ANNEXE N LES ELEMENTS CHIMIQUES RETENUS ET CEUX EXCLUTS PAR MIN3P POUR LA COLONNE LARONDE

'components'

18

: number of components

'o2(aq)'

'fe+2'

'so4-2'

'h4sio4'

'k+1'

'al+3'

'fe+3'

'co3-2'

'hs-1'

'na+1'

'mg+2'

'cl-1'

'h+1'

'ca+2'

'cu+2'

'mn+2'

'mn+3'

'h2o'

'secondary aqueous species'

9

;number of secondary aqueous species

'feso4aq'

'oh-'

'aloh+2'

'also4+'

'caso4aq'

'caco3aq'

'hco3-'

'h3sio4-'

'cuso4aq'

'excluded minerals'

148

;number of excluded minerals

'aloh3(a)'

'alohso4'

'al4(oh)10so4'

'alumk'

'alunite'

'anhydrite'

'aragonite'

'artinite'

'boehmite'

'brucite'

'chalcedony'

'chrysotile'

'clinoenstite'

'cristobalite'

'diaspore'

'diopside'

'dolomite'

'epsomite'

'sepiolite(c)'

'ferrihydrite'

'fe3(oh)8'

'feoh)2.7cl.3'
'fesppt'
'fe2(so4)3'
'forsterite'
'gibbsite(c)'
'al2o3'
'goethite'
'greenalite'
'greigite'
'gypsum'
'halite'
'hematite'
'huntite'
'hydrmagnesit'
'jarositena'
'jarositek'
'jarositeh'
'kidd-jaros'
'mackinawite'
'magadiite'
'maghemite'
'magnesite'
'magnetite'
'melanterite'
'mirabilite'
'natron'
'nesquehonite'
'phlogopite'
'pyrite'

'sepiolite(a)'
'siderite(d)'
'siderite(c)'
'sio2(a,gl)'
'sio2(a,pt)'
'talc'
'thenardite'
'thermonatr'
'tremolite'
'pyrolusite'
'birnessite'
'nsutite'
'bixbyite'
'hausmannite'
'pyrocroite'
'manganite'
'rhodochrosit'
'mncl2,4h2o'
'mnsgreen'
'mnso4'
'mn2(so4)3'
'a-cryptomeln'
'todorokite'
'rancieite'
'covellite'
'melanothalli'
'cuco3'
'cu(oh)2'
'atacamite'

'antlerite'
'brochantite'
'langite'
'tenorite'
'cuocuso4'
'cuso4'
'chalcanthite'
'diopase'
'cupricferit'
'chalcopryrite'
'analcime'
'halloysite'
'kaolinite'
'leonhardite'
'lowalbite'
'analbite'
'annite'
'anorthite'
'pyrophyllite'
'laumontite'
'wairakite'
'malachite'
'azurite'
'sulfur'
'lime'
'portlandite'
'wustite'
'periclase'
'hercynite'

'spinel'
'mag-ferrite'
'wollastonite'
'p-wollstanit'
'ca-olivine'
'larnite'
'ca3sio5'
'monticellite'
'akerminite'
'merwinite'
'kalsilite'
'leucite'
'microcline'
'hsanidine'
'nepheline'
'gehlenite'
'lepidocrocit'
'na-nontronit'
'k-nontronite'
'ca-nontronit'
'mg-nontronit'
'montmorillon'
'k-feldspar-d'
'covellit-so4'
'pyrite-sc'
'pyrrhot-sc'
'pyrrhot-par'
'fe(oh)2(s)'
'jarositek-1'

'jurbanite'

'gypsum_iso'

'mackinaw_iso'

'albite-ph'

'albite-ph-d'

'aragonite-ch'

'calcite-ch'

'kaolinite-ph'

'magnesite-ch'

'pyrite-par'

'pyrrhot-par'

'redox couples'

2

'fe+2' 'fe+3'

'so4-2' 'hs-1'

'done'