PolyPublie
Polytechnique Montréal

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL
UNIVERSITÉ D'INGÉNIERIE

Titre: Title:	Étude expérimentale et numérique du comportement hydro-géochimique de recouvrements placés sur des résidus sulfureux partiellement oxydés
Auteur: Author:	Thomas Pabst
Date:	2011
Type:	Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis
Référence: Citation:	Pabst, T. (2011). Étude expérimentale et numérique du comportement hydro-géochimique de recouvrements placés sur des résidus sulfureux partiellement oxydés [Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. https://publications.polymtl.ca/673/

Document en libre accès dans PolyPublie
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: PolyPublie URL:	https://publications.polymtl.ca/673/
Directeurs de recherche: Advisors:	Michel Aubertin, Bruno Bussière, & John W. Molson
Programme: Program:	Génie minéral

Ce fichier a été téléchargé à partir de PolyPublie, le dépôt institutionnel de Polytechnique Montréal
This file has been downloaded from PolyPublie, the institutional repository of Polytechnique Montréal

https://publications.polymtl.ca

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET NUMÉRIQUE DU COMPORTEMENT HYDRO-GÉOCHIMIQUE DE RECOUVREMENTS PLACÉS SUR DES RÉSIDUS SULFUREUX PARTIELLEMENT OXYDÉS

THOMAS PABST

DÉPARTEMENT DES GÉNIES CIVIL, GÉOLOGIQUE ET DES MINES

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRESENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION

DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIAE DOCTOR (Ph.D.)

(GÉNIE MINÉRAL)

SEPTEMBRE 2011

© Thomas Pabst, 2011.

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée:

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET NUMÉRIQUE DU COMPORTEMENT HYDRO-GÉOCHIMIQUE DE RECOUVREMENTS PLACÉS SUR DES RÉSIDUS SULFUREUX PARTIELLEMENT OXYDÉS

présentée par : PABST Thomas

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae Doctor

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

Mme MILLETTE Louise, Ph.D., présidente

M. AUBERTIN Michel, Ph.D., membre et directeur de recherche

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

M. MOLSON John, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. ZAGURY Gérald, Ph.D., membre

M. VÉZINA Serge, Ph.D., membre

REMERCIEMENTS

Nous tenons tout d'abord à remercier ici les partenaires de la Chaire Industrielle CRSNG Polytechnique-UQAT en Environnement et gestion des rejets miniers. En particulier, nous savons gré à Daniel Adam, Denis Caron et Normand Martineau de BHP-Billiton-Les Mines Selbaie, ainsi qu'à la mine Goldex (Agnico-Eagle), de leur collaboration.

Merci également à Uli Mayer, pour avoir mis à notre disposition le code Min3P ; merci aussi aux personnels du support technique de GeoSlope Inc. (en particulier Curtis Kelln), pour leur aide sur le logiciel Vadose/W.

Nous sommes extrêmement reconnaissants envers les personnels techniques de l'Ecole Polytechnique et de l'URSTM-UQAT pour leurs contributions à ce projet : Nicolas Pépin, Noura El Harrak, Manon Leduc, Etienne Bélanger et Antonio Gatien à l'EPM, et Mathieu Villeneuve, Alain Perreault et Yvan Poirier à l'URSTM-UQAT.

Nous tenons aussi à remercier de façon toute particulière Nil Gaudet (URSTM-UQAT).

Merci également à nos secrétaires, Louise Labbé (URSTM-UQAT), Lyne Lavoie, Dominique Pépin, Julie Dallaire et Henriette Alelamaka (EPM).

Enfin, nous aimerions remercier ceux qui ont participé de près ou de loin à ce projet, et en particulier Lilian Saavedra, Vincent Martin et Richard Toussaint, ainsi que tous les étudiants et collaborateurs de la Chaire.

A titre personnel, je souhaite également faire part de toute ma reconnaissance et gratitude à mon directeur de recherche, Michel Aubertin, ainsi qu'à mes co-directeurs, Bruno Bussière et John Molson.

RÉSUMÉ

Les résidus miniers produits par le concentrateur sont généralement entreposés dans des parcs à résidus, en surface. Les minéraux sulfureux qu'ils contiennent parfois (pyrite, pyrrhotite, arsénopyrite, etc.) peuvent réagir avec l'oxygène de l'air et l'eau pour former du drainage minier acide (DMA), caractérisé par un pH faible, une conductivité électrique élevée, et d'importantes concentrations en sulfates et en métaux lourds. Les méthodes de restauration applicables à la fermeture des sites visent à limiter l'accès de l'eau ou de l'oxygène aux résidus réactifs. En climat humide, on peut limiter le mouvement de l'oxygène vers les résidus avec des couvertures en eau, des couvertures à effets de barrière capillaire (CEBC) ou encore en utilisant la méthode de la nappe surélevée. Chacune de ces techniques nécessite une étude particulière pour être adaptée et optimisée pour le site étudié.

Les travaux de restauration devraient être bien planifiés avant la fermeture du site et mis en place dès la fin des opérations ou rapidement après. Les parcs à résidus longtemps exposés aux intempéries sont souvent déjà partiellement oxydés lorsque les travaux de restauration débutent. Dès lors, le choix de la méthode de recouvrement nécessite de prendre en compte le passif de contamination, en particulier lorsque le pH de l'eau interstitielle est suffisamment bas pour permettre aux ions ferriques en solution d'oxyder de façon indirecte les minéraux sulfureux.

La présente étude se concentre sur l'évaluation de techniques de restauration appliquées à deux parcs à résidus miniers partiellement oxydés. Pour le site Manitou, près de Val d'Or, la méthode de restauration retenue consiste à installer sur les résidus réactifs une couverture de résidus légèrement alcalins et non générateurs d'acide, couplée à une remontée de la nappe. Pour le site Selbaie, situé au nord de La Sarre, au Québec, le parc à résidus a été partiellement restauré au moyen d'une couverture monocouche de moraine (till) de 1 à 2 mètres d'épaisseur. Ces résidus réactifs ont aussi été partiellement oxydés et l'eau d'exhaure est acide et contaminée et doit être traitée à la chaux avant d'être retournée dans l'environnement.

Des échantillons de résidus réactifs et de moraine ont été prélevés sur les deux sites en 2007. Des échantillons des résidus Goldex ont été fournis par la mine avant le début de ses opérations. Ces matériaux ont été caractérisés au laboratoire afin de déterminer leurs propriétés hydrogéologiques et géochimiques (courbes de rétentions d'eau, conductivités hydrauliques saturées, coefficients de

diffusion de l'oxygène, constantes du taux de réaction, compositions minéralogiques, teneurs en C et S totales et autres caractéristiques).

Des colonnes instrumentées (230 cm de haut pour 15 cm environ de diamètre interne) ont été montées au laboratoire pour étudier le comportement hydrogéologique et géochimique des résidus et de leur couverture. Elles comprenaient 170 cm de résidus réactifs, surmontés de 30 à 40 cm de matériaux de couverture. De petites colonnes (50 cm de haut pour 10 cm de diamètre) ont également été remplies uniquement de résidus réactifs, afin de déterminer leur comportement sans couverture.

Des cycles de mouillage-drainage (séchage), d'une durée de trente jours environ, ont été appliqués sur les colonnes afin de simuler, de façon simplifiée et contrôlée, des conditions climatiques. Jusqu'à 19 cycles ont été réalisés sur les colonnes. Les teneurs en eau volumiques, les pressions d'eau interstitielles, les concentrations en oxygène et les conditions « climatiques » du laboratoire ont été suivies pendant la durée des tests. L'étude comprenait également le suivi de la qualité de l'eau de drainage au moyen de mesures du pH, de la conductivité électrique ainsi que des concentrations en sulfates, en fer et en certains métaux lourds.

Les mouvements de l'eau et de l'oxygène dans les colonnes ont été simulés au moyen du logiciel Vadose/W 2007 (GeoSlope Inc.). Des simulations hydrogéochimiques ont aussi été réalisées au moyen du code Min3P (Mayer et al., 2002). La première étape des calculs a été de calibrer les modèles numériques, en ajustant certains paramètres en fonction des résultats de laboratoire. Une fois les modèles en mesure de bien représenter les essais en colonne, les mêmes paramètres ont été employés pour simuler des conditions plus représentatives sur le terrain. Différents types de recouvrement ont été évalués, en utilisant à la fois les calculs de flux d'oxygène à travers les couvertures ainsi que la qualité des eaux interstitielles.

Dans le cas du site Manitou, l'installation d'une couverture monocouche semble usuellement peu efficace pour les conditions analysées ici. Avec une remontée de la nappe à -2 m ou -1 m sous la surface des résidus, les flux d'oxygène sont limités, mais suffiraient à produire du DMA. Les simulations de conditions plus sèches (deux mois sans précipitations) montrent de plus une nette dégradation de la qualité de l'eau interstitielle. Une couverture bicouche (couche de rétention d'eau sur bris capillaire) peut s'avérer une solution adéquate, mais il faut pour cela contrôler les effets de l'évaporation sur sa désaturation. L'augmentation de l'épaisseur de la couche de

rétention est une option, mais les coûts de construction pourraient en être largement affectés. L'installation d'une couverture (tricouche) à effets de barrière capillaire (CEBC) semble, à l'issue de ces travaux, la meilleure solution pour limiter au mieux la génération de DMA (tant du point de vue des flux d'oxygène que de la qualité de l'eau de lixiviation). Dans le cas du site Manitou, elle pourrait être constituée d'une couche de résidus Goldex (d'environ 1 mètre d'épaisseur), placée entre deux couches de sable, de gravier ou de roches stériles (de 50 cm à 100 cm). Pour le site Selbaie, aucune des configurations testées avec les matériaux considérés ne semble vraiment efficace, en dehors de la CEBC tricouche avec roches stériles grossières. Mais la moraine ne semble pas être un matériau approprié pour bien jouer le rôle de couche de rétention d'eau, surtout dans une configuration de type monocouche ou bicouche.

ABSTRACT

Mine tailings, produced during ore treatment, are usually stored at surface disposal sites. The iron sulfides (pyrite, pyrrhotite, arsenopyrite, etc.) that the tailings may contain can react with oxygen and water to generate acid mine drainage (AMD). The resulting acidic effluent is generally characterized by high concentrations of dissolved metals and sulfates, a low pH and a high electrical conductivity. Reclamation methods at mine closure mainly tend to inhibit access of water or oxygen to the sulfide minerals. In humid climates, oxygen access can be decreased using water covers, covers with capillary barrier effects, or an elevated water table. Each technique needs to be adapted for the specific site conditions so that the design can be optimized.

Reclamation work should be planned well ahead of the site closure and implemented near the end of operation or shortly thereafter to maximize efficiency. Old tailings sites that have been left exposed for some time typically include tailings that have been altered before the reclamation work starts. In such cases, the selected reclamation technique must take into account the contamination history of the site, especially when the pH of the leachate is low enough to maintain ferric ions in solution, which can then indirectly oxidize iron sulphide minerals.

This study focuses on the evaluation of the efficiency of several reclamation methods applied to two partially oxidized tailings impoundments. At the Manitou mine site, located near Val-d'Or, Québec, the adopted reclamation method consists of adding a layer of slightly alkaline (non acid generating) tailings onto the surface, together with an elevated water table. For the Selbaie mine site, located north of La Sarre, Quebec, the impoundment has already been covered by a 1 m to 2 m thick monolayer cover made of till. The reactive tailings have also been partially oxidized and the discharge water is acidic and contaminated, and has to be lime-treated.

Reactive tailings and cover material (till) samples were collected *in situ* in 2007 from both disposal sites. Non acid-generating tailings were provided by the Goldex mine. These materials have been characterized in the laboratory to define their hydrogeological and geochemical properties (water retention curves, saturated hydraulic conductivity, oxygen diffusion and consumption parameters, mineralogical compositions, total C and S contents, etc.).

Instrumented columns (230 cm in height, and 15 cm internal diameter) were set up in the laboratory to study the hydrogeological and geochemical behaviour of the tailings-cover systems.

They were filled with 170 cm of reactive tailings, covered with 30 to 40 cm of cover material. Smaller columns (50 cm in height, 10 cm in diameter) were also included with the reactive tailings only to investigate their geochemical behaviour when left uncovered. Monthly wetting and drainage (drying) cycles were repeated to simulate, in a simplified (but controlled) manner, the site climatic conditions. Up to 19 cycles were applied to the columns. Volumetric water content, pressure head, dissolved and gaseous oxygen concentrations and climatic conditions were monitored. The experimental program also included the measurement of the pH, the electrical conductivity, and the sulphate, iron, and other metal concentrations in the leachate.

Vadose/W 2007 (GeoSlope Inc.) was used in this study to simulate water flow and oxygen diffusion in the columns. Hydro-geochemical simulations were also conducted using the Min3P code (Mayer et al., 2002). The first step of the modelling work was to compare and calibrate the hydrogeological and chemical parameters using the column test results. Once the column models had been calibrated to reproduce experimental measurements, similar material parameters were used to simulate field conditions. Different types of covers were also investigated, comparing both oxygen fluxes and water quality.

At the Manitou site, the simulations tend to indicate that a monolayer cover is usually inefficient at preventing AMD generation under the test conditions. Raising the water table to 2 m or 1 m below the tailings surface decreases the oxygen flux through the cover, but the tailings continued to oxidize nevertheless. Moreover, during dry years (without significant infiltration in July and August), the cover efficiency drastically decreases. A two-layer cover (water retention layer on a capillary break) could be an effective solution, but evaporation would have to be controlled. Increasing the thickness of the water retention layer could be an option, but costs could significantly increase. Finally, the simulations show that a three-layer CCBE (cover with capillary barrier effects) could be a cost-effective method to prevent further oxidation and AMD generation (considering both the oxygen flux decrease and water quality improvement). For the Manitou site, a CCBE cover should be made of a 1 m retention layer (Goldex tailings), sandwiched between two sand, gravel or waste rock layers (50 cm to 100 cm thick). Concerning the Selbaie site, none of the simulated configurations seemed very effective (except the CCBE with very coarse waste rock). The available till does not seem to be a suitable material for constructing a retention layer in a monolayer or two-layer cover.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS III

RÉSUMÉ IV

ABSTRACT VII

TABLE DES MATIÈRES IX

LISTE DES TABLEAUX XVII

LISTE DES FIGURES XXIII

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS XLIII

LISTE DES ANNEXES XLIX

CHAPITRE 1 INTRODUCTION 1

1.1 Problématique 1

1.2 Description du projet de recherche 3

1.2.1 Question de recherche 3

1.2.2 Objectif général 3

1.2.3 Étapes du projet 3

1.2.4 Hypothèses scientifiques 3

1.3 Contenu du document et contributions de l'étude 5

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE 7

2.1 Géochimie du drainage minier acide 7

2.1.1 Caractéristiques générales du drainage minier acide 7

2.1.2 Oxydation de la pyrite 7

2.1.3 Oxydation d'autres minéraux sulfureux 10

2.1.4 Rôle des bactéries 11

2.1.5 Neutralisation 12

2.1.6 Produits d'oxydation 13
2.1.7 Coefficient du taux de réaction 15
2.1.8 Oxydation indirecte 17
2.1.9 Evaluation du potentiel de génération de DMA et de la réactivité 20
2.2 Mouvement de l'eau en milieu poreux 28
2.2.1 Ecoulements en milieu saturé 28
2.2.2 Écoulements en milieu non saturé 29
2.2.3 Courbe de rétention d'eau 31
2.2.4 Fonction de perméabilité 38
2.3 Mouvement des gaz en milieu poreux 42
2.3.1 Mouvements des gaz 42
2.3.2 Advection 43
2.3.3 Diffusion 45
2.4 Bilan hydrique 50
2.4.1 Bilan hydrique 50
2.4.2 Infiltration 51
2.4.3 Evaporation 52
2.5 Méthodes de prévention et contrôle du DMA 54
2.5.1 Généralités 54
2.5.2 Exclusion de l'oxygène 55
2.5.3 Matériaux des couvertures 59
2.5.4 Evaluation de l'efficacité 61
2.6 Modélisation numérique 62
2.6.1 Modèles hydrogéologiques 62

2.6.2 Modèles géochimiques 64

CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE DE L'ÉTUDE : NATURE DES MATÉRIAUX ET PROTOCOLES EXPÉRIMENTAUX 68

3.1 Résidus miniers étudiés 68

3.1.1 Origine des résidus 68

3.1.2 Échantillonnage et préparation des échantillons 72

3.2 Caractérisation physique, hydrique et géochimique des résidus 73

3.2.1 Granulométrie 74

3.2.2 Densité relative des grains 74

3.2.3 Indice des vides 75

3.2.4 Conductivité hydraulique saturée 75

3.2.5 Essais de compactage et de consolidation 75

3.2.6 Courbe de rétention d'eau 76

3.2.7 Analyses chimiques et minéralogiques 76

3.2.8 Coefficient de diffusion d'oxygène et constante du taux de réaction 77

3.2.9 Bactériologie 79

3.3 Essais en grandes colonnes 79

3.3.1 Caractéristiques des colonnes 80

3.3.2 Montage des colonnes 83

3.3.3 Instrumentation des colonnes 84

3.3.4 Essai de mouillage-drainage 90

3.3.5 Analyses chimiques du lixiviat 92

3.3.6 Démantèlement des colonnes 94

3.4 Essais en petites colonnes 95

3.4.1 Caractéristiques des colonnes 95

3.4.2 Montage des colonnes 98
3.4.3 Instrumentation des colonnes 98
3.4.4 Essai de mouillage-drainage 98
3.4.5 Analyses chimiques du lixiviat 100
3.4.6 Démantèlement des colonnes 100
CHAPITRE 4 RÉSULTATS DE LA CARACTÉRISATION DES MATÉRIAUX AU LABORATOIRE ET *IN SITU* 102
4.1 Résultats des essais de laboratoire 102
4.1.1 Granulométrie 102
4.1.2 Densité relative des grains 108
4.1.3 Essais de compactage 110
4.1.4 Conductivité hydraulique saturée 110
4.1.5 Courbes de rétention d'eau 112
4.1.6 Analyses chimiques et minéralogiques 114
4.1.7 Coefficient de diffusion de l'oxygène et constante du taux de réaction 123
4.2 Résultats des essais de terrain 126
4.2.1 Travaux de terrain sur le site Manitou 127
4.2.2 Travaux de terrain sur le site Selbaie 138
CHAPITRE 5 RÉSULTATS DES ESSAIS EN GRANDE COLONNE 148
5.1 Caractéristiques hydro-géotechniques 148
5.1.1 Indices des vides et porosités 148
5.1.2 Conductivité hydraulique 150
5.1.3 Conditions atmosphériques (au laboratoire) 152
5.1.4 Débit de sortie 154
5.2 Teneurs en eau volumiques 156

5.3 Pressions d'eau 163
5.4 Concentrations en oxygène 168
5.5 Chimie du lixiviat 171
5.5.1 Colonne MNOG 172
5.5.2 Colonne MOG 181
5.5.3 Colonne SNOG 186
CHAPITRE 6 COMPLÉMENT DE CARACTÉRISATION ET RÉSULTATS DES ESSAIS EN PETITE COLONNE 197
6.1 Caractéristiques hydro-géotechniques et climatiques 197
6.1.1 Indices des vides et porosités 197
6.1.2 Conductivité hydraulique 198
6.1.3 Conditions atmosphériques et infiltration (au laboratoire) 199
6.1.4 Débit de sortie 200
6.2 Teneurs en eau volumiques 202
6.3 Pressions d'eau 204
6.4 Qualité du lixiviat 207
6.4.1 MNOP 207
6.4.2 MOP 212
6.4.3 SNOP et SOP 216
CHAPITRE 7 SIMULATIONS HYDROGÉOLOGIQUES 223
7.1 Construction des modèles numériques 223
7.1.1 Construction géométrique 223
7.1.2 Paramètres de convergence 227
7.1.3 Courbes de rétention d'eau initiales et simulation de l'effet d'hystérésis 227
7.1.4 Fonctions de perméabilité initiales 232

7.1.5 Conditions initiales....233
7.1.6 Conditions frontières supérieures et données climatiques....233
7.1.7 Conditions frontières inférieures....234
7.1.8 Autres paramètres du modèle....236
7.2 Calibration et validation des modèles numériques....237
7.2.1 Essais en grandes colonnes....238
7.2.2 Petites colonnes....248
7.3 Analyse de sensibilité et étude paramétrique....252
7.4 Simulations des conditions de terrain....255
7.4.1 Objectifs et méthodologie....255
7.4.2 Propriétés des matériaux....256
7.4.3 Résultats - Site Manitou....262
7.4.4 Résultats - Site Selbaie....268
7.5 Comparaison de recouvrements alternatifs....271
7.5.1 Objectifs et méthode....271
7.5.2 Recouvrements monocouches de diverses épaisseurs....274
7.5.3 Couvertures bicouches à effet de barrière capillaire....286
7.5.4 Couverture tricouche à effets de barrière capillaire....303
7.5.5 Synthèse des résultats des simulations hydrogéologiques....314
CHAPITRE 8 MODÉLISATIONS HYDROGÉOCHIMIQUES....315
8.1 Construction des modèles numériques....315
8.1.1 Construction géométrique....315
8.1.2 Paramètres de convergence....316
8.1.3 Paramètres hydrogéologiques....317

8.1.4 Eléments pris en compte 318
8.1.5 Conditions frontières 320
8.1.6 Conditions initiales 322
8.1.7 Eléments orphelins 323
8.2 Simulations des essais en petite colonne 324
8.2.1 Méthodologie 324
8.2.2 Validation des résultats hydrogéologiques 324
8.2.3 Simulation des essais dans la petite colonne MNOP 325
8.2.4 Simulation des essais dans la petite colonne MOP 333
8.2.5 Simulation des essais dans la petite colonne SNOP 333
8.2.6 Simulation des essais dans la petite colonne SOP 339
8.3 Simulations des essais en grande colonne 339
8.3.1 Méthodologie 339
8.3.2 Simulations des essais dans la colonne MNOG 341
8.3.3 Simulations des essais dans la colonne MOG 346
8.3.4 Simulations des essais dans les colonnes SNOG et SOG 346
8.3.5 Résultats complémentaires des simulations des essais en grande colonne 350
8.4 Analyse de sensibilité et étude paramétrique 355
8.5 Simulations des conditions de terrain 356
8.5.1 Méthodologie 356
8.5.2 Résultats pour le site Manitou 359
8.5.3 Résultats pour le site Selbaie 383
CHAPITRE 9 SYNTHÈSE, CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS 396
9.1 Synthèse et discussion des résultats 396

9.1.1 Essais de laboratoire 396
9.1.2 Simulations numériques 398
9.2 Conclusion 410
9.3 Recommandations 413
LISTE DE RÉFÉRENCES 416
ANNEXES 461

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1: Exemples d'utilisations des essais en colonnes dans diverses études sur le DMA ...24

Tableau 2.2: Méthodes de détermination de la CRE selon la succion (adapté de Lal et Shukla (2004))....32

Tableau 2.3: Différentes valeurs des coefficients de diffusion libres dans l'air (D_a^0) et dans l'eau (D_w^0)....47

Tableau 2.4: Principales méthodes de prévention de génération de drainage minier acide, classées par approches (adapté d'Aubertin et al., 2002)....55

Tableau 2.5: Principales caractéristiques numériques du code Vadose/W (GeoSlope, 2007) 63

Tableau 3.1: Caractéristiques géométriques des colonnes....81

Tableau 3.2: Caractéristiques des eaux de mouillage ajoutées au sommet des colonnes à chaque cycle. Les valeurs de concentrations sont données en ppm 91

Tableau 3.3: Date et durée des cycles de mouillage-drainage sur les grandes colonnes 92

Tableau 3.4: Volume d'eau ajouté au sommet des petites colonnes au début de chaque cycle (en mL)....99

Tableau 4.1: Caractéristiques des courbes granulométriques moyennes des divers matériaux étudiés 105

Tableau 4.2: Densités relatives des matériaux étudiés (mesures réalisées avant le début des essais en colonnes) 108

Tableau 4.3: Résultats des essais de compactage Proctor sur les matériaux étudiés. e_{opt} : indice des vides à l'optimum Proctor ; w_{opt} : teneur en eau massique à l'optimum ; γ_d : poids volumique maximal du matériau sec (à l'optimum Proctor)....110

Tableau 4.4: Résultats des essais de perméabilité sur les différents matériaux étudiés. Jusqu'à quatre essais par matériaux ont pu être réalisés, soient deux essais en cellules triaxiales et deux en cellules à parois rigides. Les essais ont été réalisés à charge variable. On indique également les indices des vides et les degrés de saturation (lorsque disponibles) pour chaque essai 112

Tableau 4.5: Paramètres des courbes de rétention d'eau selon le modèle de van Genuchten (1980) pour les matériaux étudiés 114

Tableau 4.6: Résultats des analyses LECO sur les matériaux étudiés (mesures réalisées avant le début des essais en colonne) 115

Tableau 4.7: Calculs des potentiels de neutralisation PN et d'acidification PA à partir des résultats des analyses LECO, et estimation du potentiel net de neutralisation (PNN = PN – PA) ; les résultats sont donnés en kgCaCO3eq/t 115

Tableau 4.8: Résultats des analyses LECO réalisées au démontage des petites colonnes. Les chiffres entre parenthèses indiquent les variations par rapport aux valeurs initiales 117

Tableau 4.9: Résultats des analyses minéralogiques (DRX) sur les résidus MNO, MO et Goldex (rapports massiques en pourcentage, avec plage de mesures) 118

Tableau 4.10:Résultats des analyses minéralogiques (DRX) sur les résidus SNO, SO et la moraine (rapports massiques en pourcentage, avec plage de mesures) 119

Tableau 4.11:Calculs des potentiels de neutralisation PN et d'acidification PA à partir des résultats des analyses DRX, et estimation du potentiel net de neutralisation (PNN = PN – PA) ; les résultats sont donnés en kgCaCO3eq/t 120

Tableau 4.12:Résultats des analyses DRX au démontage des petites colonnes (rapports massiques en pourcentage, moyennes de deux mesures) 121

Tableau 4.13:Chimie de l'eau interstitielle initialement présente dans les grandes colonnes, avant le début des essais de mouillage-drainage. Les concentrations sont données en ppm (ou mg/L) 122

Tableau 4.14:Description des échantillons prélevés sur le site Manitou 128

Tableau 4.15:Coefficients du taux de réaction des résidus Manitou estimés par des essais de consommation *in situ* 136

Tableau 5.1: Indices des vides mesurés au montage et au démontage des grandes colonnes 149

Tableau 5.2: Valeurs retenues du k_{sat} des matériaux dans les grandes colonnes comparées aux valeurs minimales et maximales prédites selon les indices des vides mesurés 150

Tableau 6.1: Indices des vides évalués au montage et au démontage des petites colonnes.....197

Tableau 6.2: Valeurs des conductivités hydrauliques retenues pour les simulations des essais dans les petites colonnes (valeurs utilisées aux chapitres 7 et 8) 199

Tableau 7.1: Paramètres du modèle de van Genuchten (1980) pour les courbes de rétention d'eau en mouillage et en drainage (valeurs préliminaires) 231

Tableau 7.2: Paramètres du modèle de van Genuchten (1980) pour les courbes de rétention d'eau, en mouillage et en drainage, et valeurs de la conductivité hydraulique saturée des matériaux utilisés dans les modélisations après calibration. Entre parenthèses : modifications par rapport aux paramètres initiaux 239

Tableau 7.3: Evaporation potentielle (ETP) appliquée dans les simulations des essais en petite colonne, en fonction de la présence ou non de la couche de sable lâche à leur sommet.....250

Tableau 7.4: Caractéristiques des courbes granulométriques retenues pour les simulations numériques des conditions de terrain (avec leur identification) 257

Tableau 7.5: Intervalle des valeurs des indices des vides mesurés sur le terrain et au laboratoire.... 257

Tableau 7.6: Facteurs de correction appliqués aux courbes de rétentions d'eau prédites 259

Tableau 7.7: Degré de saturation maximum S_{rmax} estimé pour les matériaux utilisés dans les simulations des conditions de terrain et basé sur les mesures dans les colonnes....260

Tableau 7.8: Paramètres du modèle de van Genuchten (1980) des courbes de rétention d'eau des matériaux retenus pour les simulations des conditions de terrain (voir CRE à la figure 7.34).....261

Tableau 7.9: Conductivités hydrauliques saturées estimées pour les matériaux lors des simulations des conditions de terrain 261

Tableau 7.10:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet du recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2), pour différentes épaisseurs de couverture et différentes profondeurs de nappe (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an) 279

Tableau 7.11:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet du recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2) pour différentes épaisseurs de couverture et une nappe située à -2 m, pour une année sèche (en g/m²/an) ; on présente également l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an) et la comparaison avec les résultats obtenus pour une année normale 282

Tableau 7.12:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet d'un recouvrement monocouche (S3Mor2 et S4Mor2) pour différentes épaisseurs de couverture et différentes profondeurs de nappe (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an) 285

Tableau 7.13:Paramètres du modèle de van Genuchten (1980) pour la CRE et valeurs de la conductivité hydraulique des stériles St1 et St2 employés dans la simulation de recouvrements bicouches (et tricouches) des parcs Manitou et Selbaie ; on rappelle également les caractéristiques des résidus Goldex G2 et de la moraine Mor2 287

Tableau 7.14:Flux d'oxygène annuels simulées au sommet d'une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2) pour différentes épaisseurs de la couche de rétention d'eau (en g/m²/an) ; on montre également l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an) 293

Tableau 7.15:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet d'une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), pour différentes épaisseurs de la couche de rétention d'eau et une nappe à -1 m (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an) 296

Tableau 7.16:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet d'une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2) pour différentes épaisseurs de la couche de rétention d'eau (en g/m²/an) ; on présente également l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an) 299

Tableau 7.17:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (M3G2 et M4G2 ; en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an).....301

Tableau 7.18:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (S2Mor2 et S3Mor2 ; en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an).....303

Tableau 7.19:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), pour deux types de stériles (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an).....306

Tableau 7.20:Flux d'oxygène au sommet de la CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), pour une année sèche pour deux types de stériles (en g/m²/an) ; on indique également l'efficacité du recouvrement par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an 309

Tableau 7.21:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2) pour deux types de stériles (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an).....311

Tableau 7.22:Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), pour une année sèche et pour deux types de stériles (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an).....313

Tableau 8.1: Eléments et composés principaux employés dans les modèles géochimiques 318

Tableau 8.2: Minéraux employés dans les modèles géochimiques (selon les matériaux).....319

Tableau 8.3: Composition chimique de l'eau ajoutée au sommet des modèles (colonnes et terrain) ; l'analyse de base est adapté de Molson et al. (2008) et a été complétée pour les besoins de cette étude.....322

Tableau 8.4: Paramètres minéralogiques utilisés dans les simulations des essais dans la petite colonne MNOP. 328

Tableau 8.5: Paramètres minéralogiques utilisés dans les simulations des essais avec les résidus SNO.....334

Tableau 8.6: Paramètres minéralogiques des résidus Goldex utilisés dans les simulations avec Min3P 341

Tableau 8.7: Chimie de l'eau d'infiltration dans les résidus MNOG, après que celle-ci ait traversé la couverture de résidus Goldex 342

Tableau 8.8: Paramètres minéralogiques de la moraine dans les simulations avec Min3P 347

Tableau 8.9: Chimie de l'eau d'infiltration dans les résidus SNOG, après que celle-ci ait traversé la couverture de moraine. 347

Tableau 8.10: Pressions partielles d'oxygènes (%) à l'interface résidus-couverture pour chaque type de résidus et de couverture. Les concentrations ont été évaluées au moyen du logiciel Vadose/W. Les cas simulés avec Min3P sont indiqués en gris 358

Tableau 8.11: Composition chimique de l'eau initialement présente dans les résidus Manitou pour les simulations des conditions de terrain (obtenue à partir de la simulation des résidus sans couverture, avec une nappe à -4 m) 360

Tableau 8.12: Caractéristiques chimiques de l'eau interstitielle simulée pour les résidus Manitou selon la méthode de recouvrement employée, 1 mètre sous la surface des résidus après 10 ans (les pressions partielles d'O_2 appliquées au sommet des simulations sont également rappelées) 379

Tableau 8.13: Chimie de l'eau interstitielle simulée pour les résidus Selbaie (sans dolomite ni anorthite) selon le recouvrement employé, 2 m sous la surface des résidus après 10 ans (les pressions partielles d'O_2 appliquées au sommet des simulations sont également rappelées) 395

LISTE DES FIGURES

Figure 2.1: Phases successives de la formation du drainage minier acide par l'oxydation de la pyrite. Les réactions des phases I et II correspondent à l'oxydation directe des sulfures et à la précipitation des hydroxydes de fer. Quand le pH devient inférieur à 3,5 environ, la phase III débute avec l'oxydation indirecte de la pyrite (adapté de Kleinman et al., 1981; tiré de Aubertin et al., 2002).....9

Figure 2.2: Modèle du noyau réactif. On considère que les grains de sulfures sont sphériques et qu'ils sont progressivement oxydés. Pour réagir avec la surface du grain non oxydé, l'oxygène doit traverser (par diffusion) le fluide environnant, le film aqueux autour du grain, ainsi que la frange de précipitation secondaire et de minéraux déjà oxydés (anneau d'altération)(adapté de Mayer et al., 2002).....16

Figure 2.3: Illustration de la loi de continuité et de conservation de masse pour un volume élémentaire de sol parcouru par un flux unitaire q_w selon l'axe (Ox). Le gain d'humidité peut être positif, négatif, ou nul (adapté de Hillel, 1998) 30

Figure 2.4: Courbes de rétention d'eau conceptuelles pour un silt et un sable. θ_s : teneur en eau à saturation [-] ; θ_r : teneur en eau résiduelle [-] ; ψ_a : pression d'entrée d'air (ou AEV) [L] ; ψ_r : pression d'entrée d'eau ou succion résiduelle [L] (tiré d'Aubertin et al., 1995) 31

Figure 2.5: Courbes de rétention d'eau conceptuelles décrites par le modèle de van Genuchten (1980).....34

Figure 2.6: a) Schéma interprétatif de l'effet de bouteille d'encre ou de goulot. Lors du drainage, lorsque la succion dépasse (en valeur absolue) la pression d'entrée d'air du plus gros pore, le pore plus petit ne se draine pas, d'où une teneur en eau plus importante. En mouillage, à la même succion la teneur en eau volumique est plus faible puisque le plus gros pore n'est pas rempli d'eau (adapté de Hillel, 1998). b) Effet similaire pour un plus petit pore connecté en parallèle à un plus gros pore. Pour une même succion, la teneur en eau volumique en drainage sera plus importante qu'en mouillage (adapté de Delage et Cui, 2000).....36

Figure 2.7: L'angle de contact entre solide et liquide en drainage (β_1) est plus grand que l'angle de contact en mouillage (β_2). Par conséquent, la pression d'entrée d'eau est (en valeur absolue) plus grande en drainage qu'en mouillage (adapté de Delage et Cui, 2000) 37

Figure 2.8: Courbes de rétention d'eau conceptuelles en drainage et en mouillage. IDC : courbe initiale en drainage ; MWC : courbe principale en mouillage ; MDC : courbe principale en drainage ; PDSC : courbe intermédiaire en drainage ; PWSC : courbe intermédiaire en mouillage ; θ_0 : teneur en eau maximale à satiation (aussi notée θ_{max} parfois) (tiré de Bussière et al., 1999) 38

Figure 2.9: Fonctions de perméabilités conceptuelles d'un sable et d'un silt (tiré d'Aubertin et al., 1995) 38

Figure 2.10: Principales composantes d'un système de recouvrement multicouche (adapté d'Aubertin et al., 2002) 56

Figure 3.1: Site Manitou. a) Vue aérienne du parc à résidus et de la zone d'épanchement ; b) Parc B vu depuis le Parc A (été 2007) ; c) Parc A ; on notera la présence de nombreuses fentes de dessiccation (été 2009) ; d) Déversement des résidus Goldex sur le site (Nord du Parc B) (été 2010) ; e) Eau contaminée au pied des digues du Parc A (été 2009) ; f) Parc 1, recouvert de résidus Goldex ; on note la couleur orange au sommet des résidus, signe de la recirculation d'eau contaminée (été 2010) 70

Figure 3.2: Parc à résidus Les Mines Selbaie. a) Vue aérienne du parc à résidus ; b) Surface du parc, revégétée (été 2008) ; c) Tranchée creusée sur le parc pour échantillonner les résidus et la moraine, réaliser des tests de consommation et installer les équipements de suivi ; d) Vue de la fosse depuis le parc à résidus ; e) Détail de la couche de moraine (ici 1 m) ; f) Profil de résidus, avec front d'oxydation (orange) et résidus frais en profondeur (gris) 71

Figure 3.3: Schéma du montage et de l'instrumentation d'une grande colonne.....82

Figure 3.4: Grandes colonnes montées au laboratoire (EPM). 1 : Capteurs Sup ; 2 : Capteurs Mil ; 3 : Capteurs Inf ; 4 : Base des colonnes et sortie d'eau ; 5 : colonnes entourées de papier aluminium 83

Figure 3.5: Etape du montage d'une grande colonne, avec à gauche la consolidation de la première couche dans la première section et à droite la consolidation dans la troisième section (les grandes colonnes comportent 4 sections au total). 1 : Capteur de déplacement ; 2 : Charge sur bras de levier ; 3 : Piston ; 4 : Instruments (TDR et connecteur pour tensiomètre).....84

Figure 3.6: Calibration des sondes TDR et courbe de tendance (trait plein ; voir équation 5.1) avec intervalle à ±0,05 (courbes en pointillés) 88

Figure 3.7: Calibration des sondes ECH_2O et courbe de tendance (trait plein) avec intervalle à ±0,05 (pointillés).....89

Figure 3.8: Exemple du démoulage d'une section de grande colonne (SOG) et découpage en plusieurs tranches pour caractérisation 95

Figure 3.9: Schéma du montage des petites colonnes. Les caractéristiques géométriques de chacune d'entre elles sont indiquées, ainsi que les positions des capteurs ; on voit les résidus en gris, la couche de sable en jaune, et l'espace laissé vide (pour ajouter de l'eau à chaque cycle de mouillage) en bleu. Le sommet des petites colonnes demeure ouvert à l'atmosphère en tout temps 97

Figure 3.10: A gauche : consolidation de la seconde couche dans les petites colonnes MNOP, SNOP et SOP. A droite : Petites colonnes en place, recouvertes de papier aluminium. 1 : Charge ; 2 : Capteurs de déplacement ; 3 : Tensiomètre ; 4 : Sortie d'eau.....97

Figure 4.1: Courbes granulométriques des résidus Manitou et Goldex 103

Figure 4.2: Courbes granulométriques des résidus Selbaie et de la moraine 104

Figure 4.3: Courbes granulométriques moyennes des matériaux étudiés 105

Figure 4.4: Comparaison des granulométries au début et à la fin des essais en colonnes. Les élévations (mesurées par rapport à la base des colonnes) auxquelles ont été prélevés les échantillons analysés sont indiquées sur les graphiques 107

Figure 4.5: Densités relatives des matériaux au démontage des colonnes et pour différentes profondeurs comparées aux mesures réalisées avant le début des essais (trait plein : valeur moyenne ; pointillés : plage de mesures).....109

Figure 4.6: Comparaison des conductivités hydrauliques saturées mesurées et prédites avec les modèles KC et KCM.....111

Figure 4.7: Résultats des essais de rétention d'eau en cellule Tempe présentés avec les courbes descriptives obtenues avec le code RETC pour le modèle de Van Genuchten (1980) ainsi que les courbes prédictives obtenues avec le modèle MK 113

Figure 4.8: Profils de teneurs en soufre et carbone totaux dans les colonnes obtenues au LECO. Les trains pleins correspondent aux mesures réalisées avant le début des essais et les points sont les mesures ponctuelles réalisées sur les échantillons prélevés au démontage des colonnes 117

Figure 4.9: Résultats des essais de diffusion de l'oxygène (à deux réservoirs) interprétés au moyen du code Vadose /W et comparaison avec le modèle d'Aachib et al. (2004)124

Figure 4.10: Valeurs de la constante du taux de réaction des résidus obtenues suite aux essais pour divers degrés de saturation et comparaison avec les prédictions du modèle de Collin (1987)(les calculs ont été effectués à partir des résultats des analyses DRX) 125

Figure 4.11: Carte générale du site Manitou (tirée de Bussière et al., 2001) avec localisation des essais et des points d'échantillonnage. En rouge : Parcs A et B (principales zones d'accumulation de résidus sur le site). En bleu : zone à proximité des Parcs, délimitée par des digues et dans laquelle des résidus Goldex ont commencé à être déposés. En jaune : ancienne zone d'épanchement contaminée par des résidus, aujourd'hui partiellement restaurée 129

Figure 4.12: Fuseaux granulométriques mesurés sur des échantillons prélevés sur le site Manitou (résidus Manitou (a) et Goldex (b, c)). Les courbes (trait épais) MNO, MO et Goldex correspondent aux matériaux utilisés dans les essais en colonne, au laboratoire 130

Figure 4.13: Fluctuations du niveau de la nappe dans le piézomètre F7 et précipitations mesurées entre mai 2009 et juillet 2010 (tiré de Bussière et al., 2011) 135

Figure 4.14: Coefficients du taux de réaction K_r estimées par des essais de consommation in situ, comparées aux résultats des mesures de laboratoire et au modèle de Collin (1987)(voir équation 2.18) 136

Figure 4.15: Courbes granulométriques mesurées sur divers échantillons de moraine prélevés sur le parc à résidus des Mines Selbaie.....138

Figure 4.16: Courbes granulométriques mesurées sur divers échantillons de résidus prélevés sur le parc à résidus des Mines Selbaie.....139

Figure 4.17: Valeurs des indices des vides dans la couverture de moraine et les résidus (z = 0 cm) sur le site Selbaie, obtenus par essais au cône. L'élévation est mesurée à partir de l'interface résidus-couverture (z = 0 cm) 141

Figure 4.18: Carte du parc à résidus des Mines Selbaie. Points verts notés C1 à C4 : emplacement des essais de consommation ; triangles rouges notés T1 à T10 : emplacement des tranchées et stations de mesures ; carrés bleus et verts : piézomètres 142

Figure 4.19: Valeurs mesurées des profondeurs d'eau dans les piézomètres sur le parc à résidus Selbaie entre 2007 et 2010 143

Figure 4.20: Isocontours des teneurs en eau au sommet de la couverture de moraine. Les teneurs en eau volumiques sont données en pourcentages 145

Figure 4.21: Coefficients du taux de réaction K_r estimées par des essais de consommation *in situ* sur le site Selbaie, comparées aux résultats de laboratoire et au modèle de Collin (1987)(voir équation 2.18) 146

Figure 5.1: Valeurs de l'indice des vides des matériaux mesurées au début des essais et au démontage à différentes élévations dans les grandes colonnes 149

Figure 5.2: Comparaison des conductivités hydrauliques saturées des matériaux dans les colonnes (valeurs retenues ; losanges jaunes) avec les valeurs mesurées (perméamètre, voir section 4.4 ; carrés bleus) ; les valeurs prédites par les modèles prédictifs KC et KCM (respectivement les lignes rouge et verte ; voir section 4.4) sont aussi montrées 151

Figure 5.3: Paramètres climatiques mesurés au laboratoire à proximité des grandes colonnes. Les valeurs de température et d'humidité relative ont été mesurées toutes les heures. On montre ici les maximums et minimums journaliers. Le graphique des précipitations représente l'ajout d'eau au sommet de la colonne à divers moment durant le programme d'essai 153

Figure 5.4: Rapport des volumes récupérés sur les volumes ajoutés au début de chaque cycle ; le volume d'eau initialement présent dans les colonnes au début de l'essai explique la valeur supérieure à 100% pour le premier cycle 155

Figure 5.5: Variations des teneurs en eau volumiques mesurées dans les grandes colonnes MNOG et MOG au cours des cycles de mouillage-drainage ; les élévations z des capteurs sont données par rapport à la base des colonnes.....157

Figure 5.6: Variations des teneurs en eau volumiques mesurées dans les grandes colonnes SNOG et SOG au cours des cycles de mouillage-drainage ; les élévations des capteurs sont données par rapport à la base des colonnes.....158

Figure 5.7: Valeurs des degrés de saturation dans les grandes colonnes mesurées au démontage ; une ou deux mesures ont été effectuées sur chaque couche.....162

Figure 5.8: Variations des pressions dans les grandes colonnes MNOG et MOG au cours des cycles de mouillage-drainage ; l'élévation z des capteurs est exprimée par rapport à la base de la colonne 164

Figure 5.9: Variations des pressions dans les grandes colonnes SNOG et SOG au cours des cycles de mouillage-drainage ; l'élévation z des capteurs est exprimée par rapport à la base de la colonne 165

Figure 5.10: Valeurs des concentrations relatives en oxygène mesurées durant les essais en grande colonne ; l'élévation z des capteurs est exprimée par rapport à la base des colonnes 169

Figure 5.11: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne MNOG à chaque cycle. En général, deux mesures ont été réalisées pour chaque cycle (à partir du cycle 6).....173

Figure 5.12: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne MOG à chaque cycle. En général, deux échantillonnages ont été réalisés au début de chaque cycle 182

Figure 5.13: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne SNOG à chaque cycle. En général, deux échantillonnages ont été réalisés au début de chaque cycle 187

Figure 5.14: Diagramme [SO_4] vs [Ca]+[Mg] dans le lixiviat récupéré à la base de la grande colonne SNOG (les numéros indiqués correspondent aux cycles auxquels les mesures ont été réalisées).....190

Figure 5.15: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne SOG à chaque cycle. En général, deux échantillonnages ont été réalisés au début de chaque cycle 193

Figure 5.16: Diagramme [SO_4] vs [Ca]+[Mg] dans le lixiviat récupéré à la base de la grande colonne SOG (les numéros indiqués correspondent aux cycles auxquels les mesures ont été réalisées).....195

Figure 6.1: Comparaison des conductivités hydrauliques saturées des résidus prédites dans les petites colonnes (triangles bleus) avec les valeurs évaluées pour les grandes colonnes (losanges jaunes) et les valeurs mesurées au perméamètre (carrés bleus) ; les valeurs déduites des modèles prédictifs KC et KCM (respectivement les lignes rouge et verte) sont aussi montrées.....198

Figure 6.2: Rapport des volumes récupérés à la base sur les volumes ajoutés au début de chaque cycle lors des essais dans les petites colonnes 201

Figure 6.3: Variations des teneurs en eau volumiques dans les petites colonnes au cours des cycles de mouillage-drainage (obtenues selon les lectures des sondes TDR) ; les pointillés marquent l'ajout de la couche de sable dans les colonnes SNOP et SOP (le sable a été mis en place dès le début pour MNOP et MOP) 202

Figure 6.4: Variations des pressions d'eau mesurées dans les petites colonnes au cours des cycles de mouillage-drainage ; les pointillés marquent l'ajout de la couche de sable dans les colonnes SNOP et SOP (le sable a été mis en place dès le début pour MNOP et MOP) 205

Figure 6.5: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne MNOP à chaque cycle 209

Figure 6.6: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne MOP à chaque cycle 213

Figure 6.7: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne SNOP à chaque cycle ; les pointillés marquent l'ajout de la couche de sable 217

Figure 6.8: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne SOP à chaque cycle ; les pointillés marquent l'ajout de la couche de sable 218

Figure 6.9: Diagramme [SO_4] vs [Ca]+[Mg] dans le lixiviat récupéré à la base des colonnes SNOP et SOP (les numéros indiqués correspondent aux cycles auxquels les mesures ont été réalisées) 221

Figure 7.1: Modèle numérique d'une colonne tel que construit dans Vadose/W avec détail de l'interface résidus/céramique ; les schémas a et b montrent la construction expérimentale et la conceptualisation numérique des colonnes 225

Figure 7.2: Modèle numérique d'une petite colonne dans Vadose/W. L'épaisseur des résidus varie entre 34,1 et 36,5 cm et la succion appliquée est comprise entre -30 cm et -2 m (voir aussi section 3.4) 226

Figure 7.3: Courbes préliminaires de rétention d'eau en mouillage et en drainage, employées dans les premières simulations, et mesures expérimentales dans les colonnes (couples θ-ψ) et dans les cellules Tempe 228

Figure 7.4: Conditions climatiques (températures maximales et minimales, humidités relatives maximales et minimales, vitesses des rafales du vent et précipitations) utilisées dans les simulations des conditions de terrain pour une année typique et une année sèche (données d'Environnement Canada pour Val d'Or) 235

Figure 7.5: Courbes de rétention d'eau en mouillage et en drainage, calibrées à partir des mesures expérimentales dans les essais en grandes colonnes (traits pleins) ; courbes initiales (tiretés) 240

Figure 7.6: Fonctions de perméabilité en mouillage et en drainage initiales (tiretés) et après calibration (traits pleins) 241

Figure 7.7: Teneurs en eau volumiques mesurées au démontage (points) et profils simulés avec Vadose à la fin de certains cycles (lignes) 242

Figure 7.8: Variation des degrés de saturation (mesurés et simulés) dans la colonne MNOG, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture 244

Figure 7.9: Variation des pressions d'eau (mesurées et simulées) dans la colonne MNOG, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture 244

Figure 7.10: Rapport des débits sortants mesurés et simulés dans la colonne MNOG (rapports eau drainée/eau ajoutée à chaque cycle) 245

Figure 7.11: Rapports des volumes d'eau évaporés et drainés dans les grandes colonnes selon les valeurs mesurées (a) et simulées (b) à chaque cycle. Les résultats sont présentés sous forme de rapports (eau drainée et eau évaporée/eau ajoutée) 247

Figure 7.12: Variation du degré de saturation dans les 15 cm supérieurs de la petite colonne SNOP (moyenne), observé expérimentalement et simulé ; la couche de sable a été ajoutée au cycle 7 250

Figure 7.13: Variation des pressions d'eau mesurées et simulées au centre de la petite colonne SNOP 251

Figure 7.14: Débits mesurés et simulés à la sortie de la petite colonne SNOP. Les résultats sont présentés sous forme de rapport : eau sortie/eau ajoutée 252

Figure 7.15: Courbes granulométriques retenues pour la simulation des conditions de terrain..257

Figure 7.16: Courbes de rétentions d'eau estimées par le modèle MK à partir des courbes granulométriques et des indices des vides mesurés (avant corrections) 258

Figure 7.17: Courbes de rétention d'eau (modèle de van Genuchten (1980)) des matériaux retenus pour l'analyse numérique du comportement des résidus sur le terrain 260

Figure 7.18: Variations du degré de saturation simulé dans les couvertures, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture, pour toute une année et pour chaque couple de matériaux Manitou et Goldex. On présente dans chaque graphique les résultats pour trois profondeurs de nappe différentes (-2, -4 et -6 mètres sous l'interface Manitou-Goldex) 263

Figure 7.19: Profils du degré de saturation simulé pour chaque couple de matériaux Manitou et Goldex, pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m), le jour le plus sec de l'année (8 juillet ; trait plein) et à la fin de l'hiver (pointillés) 264

Figure 7.20: Profils de la pression interstitielle simulée pour chaque couple de matériaux Manitou et Goldex, pour trois profondeurs de nappe différentes (-2, -4 et -6 m) le jour le plus sec de l'année (8 juillet ; trait plein) et à la fin de l'hiver (pointillés) ..264

Figure 7.21: Variation du degré de saturation simulé dans les couvertures, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture, pour toute une année et pour chaque couple de matériaux Selbaie et moraine. On présente dans chaque graphique les résultats pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m sous l'interface résidus-couverture) 268

Figure 7.22: Profils du degré de saturation simulé pour chaque couple de matériaux Selbaie et moraine, pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m), le jour le plus sec de l'année (8 juillet ; trait plein) et à la fin de l'hiver (pointillés) 269

Figure 7.23: Profils de la pression interstitielle simulée pour chaque couple de matériaux Selbaie et Moraine, pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m), le jour le plus sec de l'année (8 juillet ; trait plein) et à la fin de l'hiver (pointillés) 269

Figure 7.24: Variations du flux d'oxygène (exprimé en g/m²/s) simulé avec Vadose/W et corrigé, au sommet du modèle M3G2Cx1 avec une nappe à -2 m, pour chaque jour d'une année. 274

Figure 7.25: Variation du degré de saturation simulé pour une couverture monocouche (M3G2 et M4G2), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture pour la couverture de 1 m d'épaisseur (Cx1) ou 1,40 m sous la surface pour les couvertures de 2 m et 4 m d'épaisseur (respectivement Cx2 et Cx4) ; les résultats sont montrés pour une année et pour quatre profondeurs de nappe différentes.....275

Figure 7.26: Profils du degré de saturation simulé pour une couverture monocouche (M3G2 et M4G2) le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour quatre profondeurs de nappe. On indique également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés). Cx1 correspond à une couverture de 1m, Cx2 de 2 m et Cx4 de 4 m. La flèche noire indique la profondeur de la zone gelée (i.e. couche imperméable dans le modèle) 277

Figure 7.27: Profils des pressions interstitielles simulées pour un recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour quatre profondeurs de nappe. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés). Cx1 correspond à une couverture de 1m, Cx2 de 2 m et Cx4 de 4 m. La flèche noire indique profondeur de la zone gelée au cours de l'hiver 278

Figure 7.28: Variation du degré de saturation simulé pour un recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2) avec une nappe située à -2 m, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture ; les résultats sont montrés pour une année sans précipitations aux mois de juillet et août, et pour différentes épaisseurs de couverture 280

Figure 7.29: Profils du degré de saturation simulé pour un recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 243 ; 31 août) pour trois épaisseurs de couverture. On montre également le profil du degré de saturation à la même date pour une année normale (pointillés) 281

Figure 7.30: Profils des pressions interstitielles simulées pour un recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 243) pour trois épaisseurs de couverture. On montre également le profil de pressions à la même date pour une année normale (pointillés).....281

Figure 7.31: Variation du degré de saturation pour un recouvrement monocouche (S3Mor2 et S4Mor2), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture pour la couverture de 1 m d'épaisseur (Cx1) ou 1,40 m sous la surface pour les couvertures de 2 m et 4 m d'épaisseur (respectivement Cx2 et Cx4) ; on présente les résultats pour une année et pour trois profondeurs de nappe.....283

Figure 7.32: Profils du degré de saturation simulé pour un recouvrement monocouche (S3Mor2 et S4Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour trois profondeurs de nappe. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés) et la profondeur de la zone gelée (flèche).....284

Figure 7.33: Profils des pressions interstitielles simulées pour un recouvrement monocouche (S3Mor2 et S4Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour trois profondeurs de nappe. On montre aussi le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés). Cx1 correspond à une couverture de 1m, Cx2 de 2 m et Cx4 de 4 m. La flèche noire indique la profondeur de la zone gelée 285

Figure 7.34: Courbes de rétention d'eau (selon le modèle de van Genuchten, 1980) et fonctions de perméabilité (modèle de Mualem, 1976) des roches stériles employés dans les simulations de recouvrements bicouches des parcs Manitou et Selbaie ; on montre également les courbes des résidus Goldex G2 et de la moraine Mor2 287

Figure 7.35: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC bicouche, 1,40 m sous la surface ; les résultats sont montrés pour une année et pour trois épaisseurs de couche de rétention d'eau (CR) 289

Figure 7.36: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour trois épaisseurs de couche de rétention. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés) 290

Figure 7.37: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour trois épaisseurs de couche de rétention. On montre également le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés) 291

Figure 7.38: a) Profils des concentrations d'oxygène simulées pour une CEBC bicouche (M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour trois épaisseurs de couche de rétention ; b) Simulation de la variation des concentrations d'oxygène pour une CEBC bicouche, au sommet de la couche de stériles (0,95 m au-dessus de l'interface résidus-couverture) ; les résultats sont montrés pour une année et pour trois épaisseurs de couche de rétention d'eau 292

Figure 7.39: Simulation de la variation du degré de saturation dans une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), avec une nappe à -1 m, 10 cm au-dessus de l'interface bris capillaire-couche de rétention ; on présente les résultats pour une année et pour trois épaisseurs de couche de rétention différentes 294

Figure 7.40: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) avec une nappe à -1 m et pour différentes épaisseurs de la couche de rétention d'eau. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés).....295

Figure 7.41: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet), avec une nappe à -1 m et pour différentes épaisseurs de la couche de rétention. On montre aussi le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés) 295

Figure 7.42: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), 1,40 m sous la surface ; on montre les résultats pour une année et pour trois épaisseurs de la couche de rétention d'eau 297

Figure 7.43: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour trois épaisseurs de couche de rétention. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés) 298

Figure 7.44: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour trois épaisseurs de couche de rétention. On montre aussi le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés) 298

Figure 7.45: Simulation de la variation du degré de saturation (a) pour une CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (M3G2 et M4G2), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture ; les résultats sont montrés pour une année ; profils du degré de saturation (b) et des pressions interstitielles (c), simulés pour une CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet). On montre également les profils du degré de saturation (b) et des pressions (c) à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés).....300

Figure 7.46: Simulation de la variation du degré de saturation (a) pour une CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (S2Mor2 et S3Mor2), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture ; les résultats sont montrés pour une année ; profils du degré de saturation (b) et des pressions interstitielles (c), simulés pour une CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet). On montre également les profils du degré de saturation (b) et des pressions (c) à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés).....302

Figure 7.47: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), 1,40 m sous la surface ; on montre les résultats pour une année, selon le type de stériles employés comme bris capillaire (entre les résidus et la couche de rétention).....304

Figure 7.48: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés).....304

Figure 7.49: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2),le jour le plus sec de l'année (jour 188) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés).....305

Figure 7.50: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), 1,40 m sous la surface ; on montre les résultats pour une année sèche, selon le type de stériles employés comme bris capillaire (entre les résidus et la couche de rétention).....307

Figure 7.51: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (pour une année sèche, soit le jour 243 ; 31 août) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil du degré de saturation à la même date pour une année normale (pointillés) 308

Figure 7.52: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (pour une année sèche, soit le jour 243 ; 31 août) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la même date pour une année normale (pointillés) 308

Figure 7.53: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), 1,40 m sous la surface des résidus ; les résultats sont montrés sur une année, selon le type de stériles employés comme bris capillaire (entre les résidus et la couche de rétention) 309

Figure 7.54: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil du degré de saturation à la même date pour une année normale (pointillés) 310

Figure 7.55: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la même date pour une année normale (pointillés) 310

Figure 7.56: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), 1,40 m sous la surface des résidus ; les résultats sont montrés pour une année sèche, selon le type de stériles employés comme bris capillaire (entre les résidus et la couche de rétention) 312

Figure 7.57: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (pour une année sèche, soit le jour 243 ; 31 août) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la même date pour une année normale (pointillés) 313

Figure 7.58: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 243) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la même date pour une année normale (pointillés) 313

Figure 8.1: Exemple de condition frontière supérieure (flux d'infiltration) dans Min3P pour la simulation d'un recouvrement tricouche (résidus M3, stériles 2, nappe à -4 m) ; on présente les résultats sous forme de rapport entre le flux d'infiltration journalier q_i et le flux d'infiltration totale annuel Q 321

Figure 8.2: Degrés de saturation et charge de pressions interstitielles dans la couverture de la colonne SNOP au cours des cycles de mouillages-séchages, mesurés et simulés par Min3P et Vadose/W 325

Figure 8.3: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la petite colonne MNOP au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulations).....327

Figure 8.4: Diagramme Eh-pH simplifié du fer pour une concentration de 10 000 ppm (100 ppm en pointillés) avec la plage des valeurs de pH et Eh simulées au bas des colonnes MNOP et MOP 330

Figure 8.5: Variations des concentrations de zinc dans la petite colonne MNOP au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation).....332

Figure 8.6: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la petite colonne SNOP au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation) 336

Figure 8.7: Diagramme Eh-pH simplifié du fer pour une concentration de 10 000 ppm (et 100 ppm en pointillés) avec en rouge la plage des valeurs de pH et Eh simulées dans la colonne SNOP et SOP par le modèle Min3P 337

Figure 8.8: Simulation des degrés de saturation et des pressions interstitielles dans la couverture de la colonne MNOG, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture (capteurs Sup), au cours des cycles de mouillage-séchage, avec les valeurs mesurées (résultats de Min3P et Vadose).....340

Figure 8.9: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la colonne MNOG au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation). 343

Figure 8.10: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la colonne SNOG au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation) 348

Figure 8.11: Profils du pH, du Eh, de la concentration d'oxygène dissout et des concentrations de métaux et autres éléments dans la colonne MNOG au cours des cycles de mouillage-drainage (au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18) 351

Figure 8.12: Profils du pH, du Eh, de la concentration d'oxygène dissout et des concentrations de métaux et autres éléments dans la colonne MOG au cours des cycles de mouillage-drainage (au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10 et 12) 352

Figure 8.13: Profils du pH, du Eh, de la concentration d'oxygène dissout et des concentrations de métaux et autres éléments dans la colonne SNOG au cours des cycles de mouillage-drainage (au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18) 353

Figure 8.14: Profils du pH, du Eh, de la concentration d'oxygène dissout et des concentrations de métaux et autres éléments dans la colonne SOG au cours des cycles de mouillage-drainage (au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18) 355

Figure 8.15: Profils simulés de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments dans les modèles sans couverture avec et sans anorthite après 10 ans (Manitou) ..360

Figure 8.16: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments dans un modèle avec une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur, nappe à -4 m, en incluant l'anorthite dans les calculs (Manitou) 363

Figure 8.17: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments dans un modèle avec une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur, nappe à -4m, en retirant l'anorthite de la composition des résidus (Manitou) 364

Figure 8.18: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments dans un modèle avec une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur, nappe à -4m, en incluant la sphalérite (2%) dans la simulation (Manitou) 365

Figure 8.19: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à -1 m (Manitou) 366

Figure 8.20: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à -2 m (Manitou) 368

Figure 8.21: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à -6 m (Manitou) 370

Figure 8.22: Simulation des profils de pH, Eh, O_2 dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et différentes profondeurs de nappe après 10 ans (Manitou) 371

Figure 8.23: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire (Stériles 2 et résidus Goldex G2), avec une couche de rétention de 1 m d'épaisseur et une nappe à -4 m (Manitou) 372

Figure 8.24: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire (Stériles 2 et résidus Goldex G2), avec une couche de rétention de 1 m d'épaisseur et une nappe à -1 m (Manitou) 373

Figure 8.25: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire (Stériles 2 et résidus Goldex G2), avec une couche de rétention d'eau de 3 mètres d'épaisseur et une nappe à -4 m (Manitou) 375

Figure 8.26: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour CEBC tricouche (Stériles 1), avec une nappe à -4 m (Manitou) 376

Figure 8.27: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour une CEBC tricouche (Stériles 2), avec une nappe à -4 m (Manitou) 378

Figure 8.28: Evolution du pH simulé en fonction du temps, à la base d'un modèle numérique de 1 m^3 de résidus Goldex à travers lequel on fait passer une eau de diverses qualités à un débit de $6.34.10^{-9}$ m/s pendant 1000 jours 382

Figure 8.29: Simulation du profil de la teneur en calcite et en dolomite (en pourcentage massique) dans un modèle numérique de 1 m^3 de résidus Goldex à travers lequel on fait passer un eau de diverses qualités à un débit de $6.34.10^{-9}$ m/s après 1000 jours de simulation 382

Figure 8.30: Simulation des profils simulés de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments en l'absence de recouvrement, pour une nappe située 4 m sous la surface des résidus Selbaie.....384

Figure 8.31: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 mètre d'épaisseur avec une nappe à -4 m (Selbaie) 385

Figure 8.32: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur avec une nappe à -4 m, sur une durée de 20 ans (Selbaie) 387

Figure 8.33: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 mètre d'épaisseur avec une nappe à -4 m, résidus SNO sans dolomite ni anorthite (Selbaie) 388

Figure 8.34: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 mètre d'épaisseur avec une nappe à -2 m (Selbaie) 389

Figure 8.35: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur avec une nappe à -6 m (Selbaie) 390

Figure 8.36: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire, avec une couche de rétention de 1 mètre d'épaisseur et une nappe située à -4 m (Selbaie) ..391

Figure 8.37: Simulation des profils simulés de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire, avec une couche de rétention de 3 m d'épaisseur et une nappe située à -4 m (Selbaie) .392

Figure 8.38: Simulation des profils simulés de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour CEBC tricouche avec une nappe située à -4 m (Selbaie)...394

Figure 9.1: Représentation graphique de l'efficacité relative (en termes de flux d'oxygène) des divers scénarios de recouvrement simulés pour les résidus Manitou M3 ; la couche de rétention d'eau est constituée de résidus Goldex G2 ; résultats basés sur les simulations avec Vadose/W 406

Figure 9.2: Représentation graphique de l'efficacité relative (en termes de flux d'oxygène) des divers scénarios de recouvrement simulés pour les résidus Manitou M4 ; la couche de rétention d'eau est constituée de résidus Goldex G2 ; résultats basés sur les simulations avec Vadose/W 406

Figure 9.3: Représentation graphique de l'efficacité relative (en termes de flux d'oxygène) des divers scénarios de recouvrement simulés pour les résidus Selbaie S2 ; la couche de rétention d'eau est constituée de Moraine Mor2 ; résultats basés sur les simulations avec Vadose/W 407

Figure 9.4: Représentation graphique de l'efficacité relative (en termes de flux d'oxygène) des divers scénarios de recouvrement simulés pour les résidus Selbaie S3 ; la couche de rétention d'eau est constituée de moraine Mor2 ; résultats basés sur les simulations avec Vadose/W 407

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

A	Inverse de l'humidité relative à la surface du sol [-]
a_c	Coefficient d'adhésion (modèle MK) [-]
B	Inverse de l'humidité relative de l'air [-]
C(t)	Concentration au temps t [$M.L^{-3}$]
C_0	Concentration initiale (temps t = 0) [$M.L^{-3}$]
$C_{e,\ x}$	Paramètres fonctions de la tortuosité des pores (KCM) [-]
C_d	Paramètre fonction du diamètre effectif (KCM) [-]
C_p	Pourcentage massique de pyrite dans le sol sec [-]
C_p	Chaleur spécifique
C_{O2}	Concentration en oxygène [$M.L^{-3}$]
C_U	Coefficient d'uniformité (D_{60} / D_{10}) [-]
C_ψ	Paramètre d'ajustement [-]
CEBC	Couverture à effets de barrière capillaire
CRE	Courbe de rétention d'eau
D	Drainage vers la nappe souterraine [$L.T^{-1}$]
D_{10}	Diamètre équivalent à 10% du passant sur la courbe granulométrique cumulée [L]
D_{60}	Diamètre équivalent à 60% du passant sur la courbe granulométrique cumulée [L]
D_e	Coefficient de diffusion effectif [$L^2.T^{-1}$]
D_w^0	Coefficient de diffusion libre de l'oxygène dans l'eau [$L^2.T^{-1}$]
D_a^0	Coefficient de diffusion libre de l'oxygène dans l'air [$L^2.T^{-1}$]
D_a	Coefficient de diffusion effectif de l'oxygène dans l'air [$L^2.T^{-1}$]
D_H	Diamètre homogène ou diamètre des pores d'un sol homogène ayant la même surface spécifique que celui considéré [L]

D_k	Coefficient de diffusion à travers la couronne d'oxydation [$L^2.T^{-1}$]
D_w	Coefficient de diffusion effectif de l'oxygène dans l'eau [$L^2.T^{-1}$]
DMA	Drainage Minier Acide
d	Diamètre du tamis d [L]
d_{min}	Diamètre inférieur au diamètre minimum des tamis [L]
$d_{min,eq}$	Diamètre équivalent [L]
E	Evaporation [$L.T^{-1}$], ou efficacité [-]
E_a	Flux effectif d'énergie provenant du vent [$m.s^{-1}$]
ETP	Evapotranspiration Potentielle [$L.T^{-1}$]
F_0	Flux d'oxygène dans les résidus sans couverture [$M.L^{-2}.T^{-1}$]
F_C	Flux d'oxygène à travers la couverture [$M.L^{-2}.T^{-1}$]
G	Flux de chaleur du sol (fine couche sous la surface) ($W.m^{-2}$)
H	Constante de Henry [-], ou flux de chaleur sensible ($W.m^{-2}$)
h	Charge hydraulique [L]
h_{co}	Remontée capillaire équivalente [L]
IAP	Produit d'activité ionique [-]
i_w	Gradient hydraulique [-]
$i_{w,xyz}$	Gradient hydraulique dans les directions x, y et z [-]
K	Réactivité intrinsèque de la pyrite pure avec l'oxygène [$L^3(O_2).L^{-2}$(pyrite).T^{-1}]
K_k	Constante d'équilibre [-]
$k_k^{m,eff}$	Coefficient de réaction effectif [$M.L^{-3}.T^{-1}$]
k_k^m	Coefficient de réaction spécifique [$M.L^{-3}.T^{-1}$]
K_r	Coefficient du taux de réaction [T^{-1}]
K_r	Coefficient du taux de réaction intrinsèque [$L^3(O_2).L^{-2}$(pyrite).T^{-1}]

K_r^*	Coefficient du taux de réaction apparent [T^{-1}]
k_a	Conductivité pneumatique [$L.T^{-1}$]
$\bar{k}$	Tenseur des conductivités hydrauliques saturées [$L.T^{-1}$]
k_w	Conductivité hydraulique [$L.T^{-1}$]
$k_{w,r}$	Conductivité hydraulique relative [-]
$k_{w,sat}$	Conductivité hydraulique saturée [$L.T^{-1}$]
$k_{w,sat,ij}$	Conductivité hydraulique saturée selon axes (i,j) dans un repère cartésien [$L.T^{-1}$]
$[k_{w,sat}]$	Matrice des conductivités hydrauliques
L_e	Chaleur latente de vaporisation (2,45 $MJ.kg^{-1}$)
L_e'	Flux de chaleur latente d'évaporation ($W.m^{-2}$)
m	Paramètre fonction de la distribution des pores (MK) [-]
m_{vG}	Paramètre empirique d'ajustement du modèle de van Genuchten (1980) [-]
n	Porosité [-], ou ordre de la réaction chimique
n_e	Porosité effective [-]
n_{vG}	Paramètre empirique d'ajustement du modèle de van Genuchten (1980) [-]
P	Précipitations [$L.T^{-1}$]
PA	Potentiel d'Acidification [$kgCaCO_3$ eq/t]
P_a	Pression d'air [$M.L^{-1}.T^{-2}$]
PN	Potentiel de Neutralisation [$kgCaCO_3$ eq/t]
PNC	Potentiel de neutralisation des carbonates [$kgCaCO_3$ eq/t]
PNN	Potentiel Net de Neutralisation [$kgCaCO_3$ eq/t]
p_a	Paramètre fonction de la teneur en air volumique (Aachib et al., 2004) [-]
P_{NoD}	Pourcentage massique des grains de diamètre inférieur au tamis D [-]
P_{Nod}	Pourcentage massique des grains de diamètre inférieur au tamis d [-]

P_v	Pression de vapeur au-dessus de la surface d'évaporation (kPa)
p_w	Paramètre fonction de la teneur en eau volumique (Aachib et al., 2004) [-]
q_a^A	Vitesse ou flux unitaire de l'air dans le sol [$L.T^{-1}$]
Q_i	Capacité d'infiltration cumulée, soit le volume d'eau maximal qu'un sol peut accepter sur une période donnée (par unité de surface) [L].
q_i	Taux ou flux d'infiltration (par unité de surface) [$L.T^{-1}$] ;
$q_{O_2}^{Ad}$	Flux unitaire d'oxygène dissout dans l'eau d'infiltration [$L.T^{-1}$]
$q_{O_2}^{D}$	Vitesse ou flux unitaire diffusif d'oxygène [$M.L^{-2}.T^{-1}$]
Q_p	Précipitations cumulées [L]
q_p	Intensité des précipitations [$L.T^{-1}$]
Q_w	Paramètre de débit (source ou fuite) [$L^3.T^{-1}$]
q_w	Vitesse de Darcy ou débit spécifique [$L.T^{-1}$]
$q_{w,xyz}$	Vitesse de Darcy dans les directions x, y et z [$L.T^{-1}$]
R	Ruissellement [$L.T^{-1}$]
RC	Remontées capillaires depuis la nappe souterraine [$L.T^{-1}$]
r_i^p	Rayon du grain [L]
r_i^r	Rayon du noyau non oxydé [L]
R_k^m	Taux de dissolution (de précipitation ou d'oxydation) du minéral k [$M.L^{-3}.T^{-1}$], ou taux de réaction (ou d'oxydation) [$M.L^{-3}.T^{-1}$]
R_n	Bilan énergétique de surface ou énergie radiante nette [$W.m^{-2}$]
S_a	Saturation par adhésion [-]
S_c	Saturation capillaire [-]
S_g	Degré de saturation en gaz [-]
S_k	Surface de réaction du minéral k [$L^2.M^{-1}$]

S_m	Surface spécifique massique du matériau [$L^2.M^{-1}$]
S_r	Degré de saturation [-]
S_s	Coefficient de stockage spécifique [L^{-1}]
V_k^m	Volume molaire du minéral k [-]
T	Transpiration (plantes) [$L.T^{-1}$]
T_a	Coefficients de tortuosité pour l'air [-]
T^i	Concentration (en phase aqueuse) du composant i contrôlant la réaction de dissolution-précipitation [$M.L^{-3}$]
T_j^w	Concentration du composé j dans l'eau [$M.L^{-3}$]
T_j^g	Concentration du composé j dans la phase gazeuse [$M.L^{-3}$]
T_w	Coefficients de tortuosité pour l'eau [-]
u	Pression de l'eau interstitielle (pression hydraulique) [L]
U_a	Vitesse du vent (km/h)
V_r	Vitesse réelle moyenne de l'eau [$L.T^{-1}$]
V_T	Volume total [L^3]
V_w	Volume d'eau [L^3]
w	Teneur en eau massique [-]
α	Facteur de forme (calcul surface spécifique) [-], ou paramètre fonction de la surface du sol (km/h)
α_{vG}	Paramètre empirique d'ajustement du modèle de van Genuchten (1980) [L^{-1}]
β	Angle de contact (hystérésis) [-]
β_d	Angle de contact entre solide et liquide en phase de drainage [-]
β_w	Angle de contact entre solide et liquide en phase de mouillage [-]
ε	Rapport des poids moléculaires de la vapeur d'eau et de l'air sec (0,622) [-]

Γ	Pente de la courbe de la pression de vapeur saturante en fonction de la température moyenne de l'air (kPa.°C^{-1})
φ_k	Fraction volumique du minéral k [-]
γ_w	Poids volumique de l'eau (9,8 kN/m^3 à 20°C)
ΔB	Biomasse des plantes [L.T^{-1}]
υ_k	Coefficient stoechiométrique de l'oxygène dans la réaction d'oxydation
μ_w	Viscosité de l'eau (10^{-3} Pa.s à 20°C)
μ_a	Viscosité dynamique de l'air [M.T-1.L-1]
ν	Constante psychrométrique [kPa.°C^{-1}]
θ	Teneur en eau volumique [-]
θ_a	Teneur en air volumique [-]
θ_w	Teneur en eau volumique [-]
θ_e	Teneur en eau réduite (ou équivalente) [-]
$\theta_{w,r}$	Teneur en eau résiduelle [-]
$\theta_{w,s}$	Teneur en eau à saturation [-]
ψ	Succion [L]
ψ_0	Succion à l'état sec ($\psi_0 = 10^7$ cm en général) [L]
ψ_n	Paramètre normatif (modèle MK) [L]
$\%C_{inorg}$	Teneur massique de carbone inorganique en pourcent [-]
$\%CO_2$	Teneur massique de CO_2 en pourcent [-]
$[O_2]_{air}$	Concentration d'oxygène dissout dans l'air [mol.L^{-3}]
$[O_2]_{eau}$	Concentration d'oxygène dissout dans l'eau [mol.L^{-3}]
$[O_2]_w$	Concentration d'oxygène dissout à la surface du grain [M.L^{-3}]
$\langle \ \rangle$	Crochets de Macaulay, i.e. $\langle x \rangle = 0{,}5(x + \lvert x \rvert)$

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE 3.1 – PROTOCOLE DES ESSAIS EN CELLULE TEMPE 464

ANNEXE 3.2 – CARACTÉRISTIQUES DES MATÉRIAUX AU MONTAGE DES GRANDES COLONNES 476

ANNEXE 3.3 – CALIBRATION DES TENSIOMÈTRES 478

ANNEXE 4.1 – ANALYSES MINÉRALOGIQUES (DRX) INITIALES (OBTENUES DE L'UQAT-URSTM) 480

ANNEXE 4.2 – ANALYSES ICP-AES DE L'EAU INTERSTITIELLE INITIALEMENT PRÉSENTE DANS LES GRANDES COLONNES (OBTENUES DE L'UQAT-URSTM) 481

ANNEXE 4.3 – CARACTÉRISTIQUES GRANULOMÉTRIQUES DES RÉSIDUS MANITOU ET GOLDEX PRÉLEVÉS *IN SITU* 482

ANNEXE 4.4 – DENSITÉS RELATIVES DES GRAINS (MANITOU ET GOLDEX) MESURÉES SUR DES ÉCHANTILLONS PRÉLEVÉS *IN SITU* 483

ANNEXE 4.5 – ANALYSES MINÉRALOGIQUES (DRX) EFFECTUÉES SUR CERTAINS DES ÉCHANTILLONS PRÉLEVÉS *IN SITU* (MANITOU ET GOLDEX)(ANALYSES RÉALISÉES À L'URSTM) 484

ANNEXE 4.6 – ANALYSES LECO EFFECTUÉES SUR CERTAINS DES ÉCHANTILLONS PRÉLEVÉS *IN SITU* (MANITOU) 485

ANNEXE 4.7 – INDICES DES VIDES EN PLACE DANS LES RÉSIDUS MANITOU ET GOLDEX (MESURE PAR ANNEAU) 485

ANNEXE 4.8 – CARACTÉRISTIQUES GRANULOMÉTRIQUES DES ÉCHANTILLONS DE MORAINE PRÉLEVÉS *IN SITU* (SELBAIE) 486

ANNEXE 4.9 – CARACTÉRISTIQUES GRANULOMÉTRIQUES DES ÉCHANTILLONS DE RÉSIDUS SELBAIE PRÉLEVÉS *IN SITU* 486

ANNEXE 4.10 – COMPTE RENDU DES OBSERVATIONS LORS DE L'INSTALLATION DES STATIONS DE MESURES SUR LE SITE SELBAIE 487

ANNEXE 5.1 – INDICES DES VIDES DANS LES GRANDES COLONNES 488

ANNEXE 5.2 – MESURE DE L'ÉVAPORATION AU LABORATOIRE 489

ANNEXE 5.3 – VARIATIONS DU DEGRÉ DE SATURATION DANS LES GRANDES COLONNES À DIFFÉRENTES ÉLÉVATIONS 490

ANNEXE 5.4 – EXEMPLE DE CALCUL D'ÉPUISEMENT 492

ANNEXE 6.1 – VARIATIONS DU DEGRÉ DE SATURATION AU SOMMET DES PETITES COLONNES 493

ANNEXE 7.1 – SCHÉMA DES CÉRAMIQUES UTILISÉES À LA BASE DES GRANDES COLONNES (AVEC ANNEAU MÉTALLIQUE) 494

ANNEXE 7.2 – COURBES PRÉLIMINAIRES DE RÉTENTION D'EAU EN MOUILLAGE ET EN DRAINAGE 495

ANNEXE 7.3 – CODAGE DE LA FONCTION ADD-IN POUR SIMULER LA CONDITION FRONTIÈRE INFÉRIEURE DES COLONNES DANS VADOSE/W 496

ANNEXE 7.4 – CALIBRATION DES SIMULATIONS DES ESSAIS EN GRANDE COLONNE AVEC VADOSE/W – COMPARAISON DES DEGRÉS DE SATURATION, DES PRESSIONS ET DES DÉBITS SIMULÉS ET MESURÉS 498

ANNEXE 7.5 – COMPARAISON DES SIMULATIONS DES PETITES COLONNES AVEC VADOSE/W ET DES RÉSULTATS DE LABORATOIRE 502

ANNEXE 7.6 – ANALYSE DE SENSIBILITÉ DANS LES SIMULATIONS AVEC VADOSE/W 504

ANNEXE 7.7 – ETUDE PARAMÉTRIQUE 522

ANNEXE 7.8 – LISTE DES SIMULATIONS HYDROGÉOLOGIQUES ET HYDROGÉOCHIMIQUES AVEC SECTIONS CORRESPONDANTES ... 533

ANNEXE 7.9 - SIMULATIONS DES CONDITIONS DE TERRAIN : EFFETS DE L'ÉPAISSEUR DE LA COUCHE DE STÉRILES DANS UN RECOUVREMENT BICOUCHE À EFFET DE BARRIÈRE CAPILLAIRE 534

ANNEXE 8.1 – CODAGE DES MODIFICATIONS AU CODE MIN3P 541

ANNEXE 8.2 – EXEMPLE DE MODÈLE SOUS MIN3P 545

ANNEXE 8.3 – OXYDATION INDIRECTE DANS MIN3P 550

ANNEXE 8.4 – COMPARAISON DES RÉSULTATS DES SIMULATIONS DES ESSAIS EN PETITE COLONNE AVEC MIN3P ET LES RÉSULTATS OBTENUS AU LABORATOIRE ET AVEC VADOSE/W 557

ANNEXE 8.5 – SIMULATION DES ESSAIS DANS LA PETITE COLONNE MOP AVEC LE CODE MIN3P 558

ANNEXE 8.6 – SIMULATION DES ESSAIS DANS LA PETITE COLONNE SOP AVEC LE CODE MIN3P 562

ANNEXE 8.7 – COMPARAISON DES RÉSULTATS DES SIMULATIONS DES ESSAIS EN GRANDE COLONNE AVEC MIN3P ET LES RÉSULTATS OBTENUS AU LABORATOIRE ET AVEC VADOSE/W 566

ANNEXE 8.8 – SIMULATION DES ESSAIS DANS LA COLONNE MOG AVEC LE CODE MIN3P 570

ANNEXE 8.9 – SIMULATION DES ESSAIS DANS LA COLONNE SOG AVEC LE CODE MIN3P 573

ANNEXE 8.10 – ANALYSE DE SENSIBILITÉ ET ÉTUDE PARAMÉTRIQUE DES SIMULATIONS AVEC MIN3P 575

ANNEXE 8.11 – RÉPONSES HYDROGÉOLOGIQUES DES SIMULATIONS DES CONDITIONS DE TERRAIN AVEC MIN3P 582

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

1.1 Problématique

Au cours de l'exploitation d'une mine, les divers rejets produits, secs (stériles) ou humides (résidus de concentrateur), sont entreposés en surface ou (parfois) retournés sous terre sous forme de remblais. Lorsqu'ils sont exposés aux infiltrations de l'eau et à la circulation de l'air, ces rejets sont sujets à une oxydation, et, s'ils contiennent des minéraux sulfureux (pyrite, pyrrhotite, chalcopyrite, arsénopyrite...), ils peuvent être à l'origine de la formation de drainage minier acide (DMA). Le DMA est un des problèmes environnementaux les plus graves pour les mines. Il s'agit d'un phénomène d'acidification qui favorise la mobilisation par solubilisation de métaux lourds et d'autres substances toxiques pour l'environnement et la santé humaine. Les eaux de drainage acides sont alors caractérisées par un pH faible et des concentrations élevées en métaux lourds et en sulfates (e.g. Jambor, 1994; Nordstrom, 2000).

Dans leur ensemble, les réactions chimiques de l'oxydation (et leur succession) sont bien connues. Le taux d'oxydation dépend de plusieurs paramètres (nature et abondance des minéraux sulfureux, conditions environnementales, présence de bactéries, etc.), mais l'eau et l'oxygène sont toujours requis pour permettre à la réaction d'oxydation directe de se produire. La plupart des techniques de contrôle et de prévention de la production de DMA se basent donc sur l'élimination de l'un ou l'autre de ces composés pour la restauration des sites miniers lors de la fermeture des exploitations.

Différentes techniques de contrôle de la génération du drainage minier acide ont été élaborées au cours des dernières décennies. Parmi les plus efficaces, le recouvrement en eau consiste à maintenir au-dessus des résidus une épaisseur d'eau suffisante pour limiter la disponibilité de l'oxygène de l'air (e.g. Yanful et Catalan, 2002; Romano et al., 2003). La méthode de la nappe phréatique surélevée, basée sur le même principe, consiste à maintenir un degré de saturation élevé au-dessus de la nappe phréatique par effets de capillarité (Orova et Swinder, 1996; Aubertin et al., 1999). Une autre méthode efficace dans nombre de cas est la couverture à effet de barrière capillaire (CEBC ; Nicholson et al. 1989; Aubertin et al., 1994, 2006; Bussière et al., 2003, 2006). Ce type de recouvrement a pour objectifs d'empêcher tout contact entre les rejets et le milieu environnant, de limiter l'infiltration de l'eau jusqu'aux rejets, ainsi que de contrôler la

migration des gaz (vers l'intérieur ou l'extérieur du site). Le recouvrement monocouche est une autre solution qui, couplée à une remontée de la nappe phréatique, peut également être efficace pour limiter les flux d'oxygène (Ouangrawa, 2007; Ouangrawa et al., 2009, 2010).

Malgré l'efficacité de ces méthodes pour prévenir la génération d'eaux acides, un autre écueil se dresse lorsque le site, exposé aux intempéries pendant plusieurs années, possède un passif de contamination avancé. Dans ce cas, une réaction d'oxydation dite indirecte peut se produire, sans oxygène, à partir des ions ferriques déjà présents en solution dans le milieu (Nicholson, 1994; Nordstrom et Southam, 1997). La production d'acide se trouve alors être amplifiée par rapport à celle due à l'oxydation directe. Le comportement des résidus oxydés est passablement différent de celui des résidus sulfureux non oxydés, en raison de la présence de minéraux secondaires, de la contamination des eaux interstitielles et des faibles pH, qui sont autant de paramètres à prendre en compte.

Relativement peu d'études ont été menées sur le contrôle de la génération de DMA sur les sites déjà partiellement oxydés. Le présent projet a donc pour objectif d'évaluer si les techniques de prévention développées pour d'anciens sites peuvent être efficaces lorsqu'ils possèdent un tel passif de contamination (eaux acides, métaux lourds en solution…).

Cette étude porte plus particulièrement sur deux anciens sites miniers situés en Abitibi : le site minier Manitou et le site minier Selbaie. Le premier est en cours de restauration et la méthode préconisée pour prévenir la formation additionnelle de drainage minier acide est l'installation d'une couverture monocouche, formée de résidus non générateurs d'acide (légèrement alcalins, produits à la mine Goldex), couplée à la remontée de la nappe phréatique. Le second site a déjà été partiellement restauré au moyen d'un recouvrement monocouche de sol naturel (moraine, avec couvert végétal).

Les travaux réalisés pour cette thèse incluent des mesures de terrain (échantillonnages, caractérisation…), des essais en laboratoire (caractérisation, colonnes...) et l'utilisation de modèles numériques hydrogéologiques (Vadose/W ; Geoslope Inc.) et hydrogéochimiques (Min3P ; Mayer et al., 2002). Ces approches sont utilisées conjointement afin d'évaluer le comportement hydrogéologique et géochimique des deux parcs et de leur couverture à court et à plus long terme.

1.2 Description du projet de recherche

1.2.1 Question de recherche

L'utilisation d'un recouvrement monocouche et le contrôle de la position de la nappe constituent-t-ils une méthode efficace pour prévenir la génération de drainage minier acide sur les deux anciens parcs à résidus (partiellement oxydés) considérés dans cette étude ?

1.2.2 Objectif général

Évaluer l'efficacité des recouvrements monocouches et de recouvrements alternatifs pour prévenir la génération de drainage minier acide sur d'anciens parcs à résidus miniers, selon la position de la nappe et les autres caractéristiques du système.

1.2.3 Étapes du projet

1- Caractériser expérimentalement les propriétés hydrogéologiques et géochimiques des résidus oxydés et non oxydés et des matériaux de couverture, en laboratoire et sur le terrain. Un certain nombre de ces analyses (i.e. granulométrie laser, pycnomètre à hélium et minéralogie) ont été réalisées aux laboratoires de l'URSTM.

2- Utiliser des modèles physiques pour évaluer le comportement des résidus et de leur couverture monocouche en conditions contrôlées.

3- Calibrer des modèles numériques pour l'étude des sites à partir des résultats des modèles physiques et des résultats de terrain.

4- Evaluer l'efficacité de différents recouvrements pour les conditions de terrain, sur le long terme et à différentes échelles, au moyen de modélisations numériques et des données expérimentales disponibles. Porter un jugement sur l'efficacité des couvertures et leurs limitations.

1.2.4 Hypothèses scientifiques

Hypothèses

On postule ici qu'il existe une (ou plusieurs) méthode(s) de recouvrement efficace(s) pouvant être mise(s) en œuvre pour contrôler la formation du drainage minier acide sur d'anciens sites miniers

réactifs. On sait que l'utilisation de certaines techniques de restauration pour les sites récemment fermés est efficace pour prévenir la génération de DMA, mais leur application aux anciens sites est incertaine. On considère au départ que l'installation d'une couverture monocouche sur un parc à résidus miniers peut-être efficace pour contrôler la génération de DMA selon la position de la nappe. On anticipe aussi que la composante alcaline des matériaux du recouvrement peut aider à améliorer l'efficacité de la méthode. On souhaite notamment évaluer si la restauration par couverture monocouche est appropriée pour les parcs à résidus avec une nappe relativement profonde.

Justification de l'originalité

Relativement peu d'études ont été réalisées sur les sites déjà partiellement oxydés pour évaluer l'efficacité de recouvrements monocouches pour prévenir la formation de drainage minier acide. On se propose ici d'étudier l'influence de la présence d'eaux acides et de métaux en solution sur l'efficacité d'une telle couverture monocouche. Les études intégrées globales, combinant des travaux de terrain et de laboratoire et des simulations numériques hydrogéologiques et hydrogéochimiques, sont également relativement peu fréquentes. Enfin, ce projet permet de compléter les connaissances déjà accumulées concernant les couvertures monocouches, en particulier en considérant des conditions plus critiques, telle une nappe plus profonde ou une évaporation plus intense.

Réfutabilité

Les hypothèses seront réfutées si aucune des techniques analysées ne s'avère efficace pour limiter les mécanismes d'oxydation et de production de DMA, lorsque la position de la nappe phréatique est relativement peu profonde.

Portée des résultats

Dans le cas où l'hypothèse de recherche serait vérifiée, les résultats obtenus à la fin du projet devraient permettre de confirmer qu’une restauration adéquate est possible sur les sites étudiés. On s'attend à ce qu'une couverture monocouche soit efficace dans des conditions spécifiques de position de nappe. D’autres techniques pourraient aussi aider à améliorer la qualité des eaux de drainage.

1.3 Contenu du document et contributions de l'étude

Ce document est composé de 9 chapitres. Après une brève mise en contexte et la description du projet de recherche au chapitre 1, on présente quelques rappels théoriques et pratiques par le biais d'une revue de littérature au chapitre 2. On y aborde notamment la formation du drainage minier acide, l'écoulement de l'eau dans les milieux poreux, les transferts de gaz (et en particulier de l'oxygène), les bilans hydriques (incluant les phénomènes d'infiltration et d'évaporation) et les principales méthodes de restauration des parcs à résidus miniers ; on décrit aussi les codes numériques qui seront employés dans ce projet.

Au chapitre 3, on présente la méthodologie expérimentale employée pour répondre aux objectifs. Le chapitre 4 est consacré à la caractérisation des matériaux étudiés par le biais d'essais de laboratoire et de mesures de terrain. Les résultats des essais en grande colonne sont présentés au chapitre 5, et ceux des essais en petite colonne au chapitre 6. Viennent ensuite les résultats des simulations numériques sur les aspects hydrogéologiques, au chapitre 7, et hydrogéochimiques, au chapitre 8. Enfin, on termine cette étude par une synthèse globale et une discussion des résultats ainsi que des conclusions et recommandations générales au chapitre 9.

Les principales contributions de cette étude sont liées à un avancement des connaissances dans plusieurs domaines, notamment en ce qui a trait à l'efficacité des recouvrements monocouches (selon plusieurs variables, telles leur épaisseur, leur granulométrie, leur minéralogie), au comportement non saturé des résidus et des couvertures (notamment sous l'effet de cycles de mouillage-séchage répétés), au mouvement de l'oxygène dans les recouvrements, à la détermination de l'influence des conditions environnementales (en particulier la profondeur de nappe et l'évaporation), à l'oxydation des résidus et à la génération de DMA, et à certains aspects liés à la pré-oxydation des sites. Il a également pu être mis en évidence l'importance des phénomènes d'hystérésis de la courbe de rétention d'eau (CRE) dans les essais. Ces travaux devraient permettre aussi d'améliorer un certain nombre d'aspects numériques, grâce entre autre à la modification des codes afin de les rendre plus représentatifs des conditions de laboratoire et de terrain (prise en compte partielle du phénomène d'hystérésis, meilleure estimation du coefficient du taux de réaction K_r). Parmi les contributions majeures de ce projet, on peut noter l'approche globale proposée (expérimentale et numérique) avec un schéma intégré à la conception des recouvrements. Cette méthodologie, qui utilise des données de terrain et de

laboratoire ainsi que des simulations numériques, pourrait s'appliquer à d'autres cas, à d'autres échelles (de temps et d'espace).

En complément, ces travaux auront aussi montré les limites de certains types d'essais (par exemple : application de la succion à la base des colonnes, dimension et nombre des essais versus hétérogénéité *in situ*, durée des essais, imprécision de certaines mesures), les faiblesses de certains codes numériques (instabilités numériques surtout, lenteur des calculs, non prise en compte des phénomène d'hystérésis, des cinétiques de réactions, de l'effet des bactéries, de l'oxydation indirecte des minéraux sulfureux). Les travaux ont présenté quelques méthodes pour tenter de contourner certaines de ces limites.

Enfin, ce projet aura également permis de développer et modifier certains protocoles expérimentaux (tant sur le terrain qu'au laboratoire, comme les essais de consommation d'oxygène ou l'essai en cellule Tempe), de développer les connaissances sur les essais en grande et petite colonne (et de proposer quelques recommandations pour leur amélioration dans les projets futurs, voir plus bas), et de caractériser de façon relativement poussée les résidus des sites à l'étude ainsi que leurs matériaux de couverture (un grand nombre d'échantillons de résidus et de matériaux de couverture ont été prélevés et caractérisés, ce qui pourra être utile dans les projets ultérieurs sur ces sites).

Il est à noter que ce projet fait partir d'une étude à plus grande échelle sur le site Manitou, qui inclut notamment des essais en colonnes et un suivi de terrain (URSTM ; Bussière et al., 2011).

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

2.1 Géochimie du drainage minier acide

2.1.1 Caractéristiques générales du drainage minier acide

Les caractéristiques du drainage minier acide (DMA) sont fonction de la minéralogie des matériaux réactifs et de l'état d'avancement de l'oxydation. Les principales caractéristiques du drainage minier acide associé à l'eau d'exhaure d'un parc à résidus ou d'une halde à stériles sont (Ritchie, 1994a; Aubertin et al., 2002) :

- pH < 4 (Gray, 1996; Monterroso et Macias, 1998). Dans des cas extrême, le pH peut atteindre des valeurs négatives (Nordstrom, 2000) ;
- Eh jusqu'à 0,8 V (Lin et Herbert, 1997) ;
- conductivité électrique entre 800 et 6500 μS/cm (Monterroso et Macias, 1998) ;
- concentrations en fer total de l'ordre de 100 à 4000 ppm (Gunsinger et al., 2006) ;
- concentrations en métaux (Cu, Zn, As, Cd, Pb) > 100 ppm (Jambor, 1994; Gray, 1996) ;
- concentrations en Ca, Mg, Al et surtout SO_4, pouvant atteindre plus de 10 000 ppm (Gunsinger et al., 2006; Hakkou et al., 2008b) ;
- très pauvre en matière organique.

2.1.2 Oxydation de la pyrite

Les réactions chimiques à l'origine de la formation du drainage minier acide sont relativement bien connues et largement décrites dans la littérature (e.g. Kleinmann et al., 1981; Ritcey, 1989; SRK, 1991; Hutchison et Ellison, 1992; Ritchie, 1994b; Blowes et Ptacek, 1994; Evangelou, 1995; Perkins et al., 1995; McIntosh et al., 1997; Morin et Hutt, 1997; Boon et Heijnen, 1998; Rimstidt et Vaughan, 2003; Gleisner et al., 2006; Manaka, 2007; Heidel et Tichomirowa, 2010, 2011). On utilise habituellement la pyrite (FeS_2) pour décrire les principales réactions pouvant se produire. Ce sulfure de fer est le minéral le plus abondant dans la gangue de la plupart des minerais exploités (Nicholson, 1994; Gray, 1996) et il est très réactif (e.g. Flann et Lucaszewski;

1970, Kakovsky et Kosikon, 1975; Brion, 1980). Mais les minéraux sulfureux à l'origine de la formation de drainage minier acide sont divers et variés (Keith et Vaughan, 2000).

Dans les parcs à résidus miniers, des études ont montré que les réactions d'oxydation suivaient les lois habituelles des équilibres thermodynamiques (Morin et Cherry, 1988; Frind et Molson, 1993).

On distingue généralement deux réactions d'oxydation selon l'accepteur d'électrons : une réaction dite directe (avec O_2) et une réaction dite indirecte (avec Fe^{3+}). Lorsque des microorganismes sont impliqués dans la réaction, on parle d'oxydation métabolique ou biochimique (Keith et Vaughan, 2000).

L'oxydation directe de la pyrite se produit avec l'eau et l'oxygène dissout (Nicholson, 1994) :

$$2FeS_2 + 7O_2 + 2H_2O \rightarrow 2Fe^{2+} + 4SO_4^{2-} + 4H^+ \quad (2.1)$$

Une mole de pyrite conduit à la formation de deux moles de H^+ par oxydation directe. L'équation (2.1) présente la formulation globale de la réaction. En réalité, un certain nombre d'intermédiaires à base de soufre sont formés (Appelo et Postma, 1994; Nicholson, 1994; Banfield et Welch, 2000). Parmi eux, on observe par exemple du soufre natif S^0 (Jambor, 1994), des sulfites SO_3^{2-} (Appelo et Postma, 1994) ou des thiosels (tels que $S_2O_3^{2-}$, $S_4O_6^{2-}$ ou $S_3O_6^{2-}$; Goldhaber, 1983).

Le Fe(III) peut également jouer le rôle d'accepteur d'électrons dans l'oxydation de la pyrite (réaction indirecte). Le processus débute par l'oxydation du Fe(II) produit par la réaction (2.1) :

$$2Fe^{2+} + \frac{1}{2}O_2 + 2H^+ \rightarrow 2Fe^{3+} + H_2O \quad (2.2)$$

Tant que le pH demeure suffisamment élevé (pH > 3 – 3,5 ; Nicholson, 1994), le Fe(III) peut précipiter sous forme d'hydroxyde :

$$Fe^{3+} + 3H_2O \rightarrow Fe(OH)_3 + 3H^+ \quad (2.3)$$

Lorsque le pH devient suffisamment faible (pH < 3,5), le Fe(III) devient l'accepteur d'électrons principal de la réaction d'oxydation de la pyrite (la réaction d'oxydation directe deviendrait presque inhibée ; Moses et al., 1987). La réaction d'oxydation indirecte de la pyrite s'écrit (Nordstrom et Southam, 1997) :

$$FeS_2 + 14Fe^{3+} + 8H_2O \rightarrow 15Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 16H^+ \quad (2.4)$$

Dès que la réaction (2.4) est amorcée, la formation d'eaux acides s'accélère et des pH très faibles peuvent être atteints. Les étapes de la formation du drainage minier acide par oxydation de la pyrite sont reprises dans la figure (2.1).

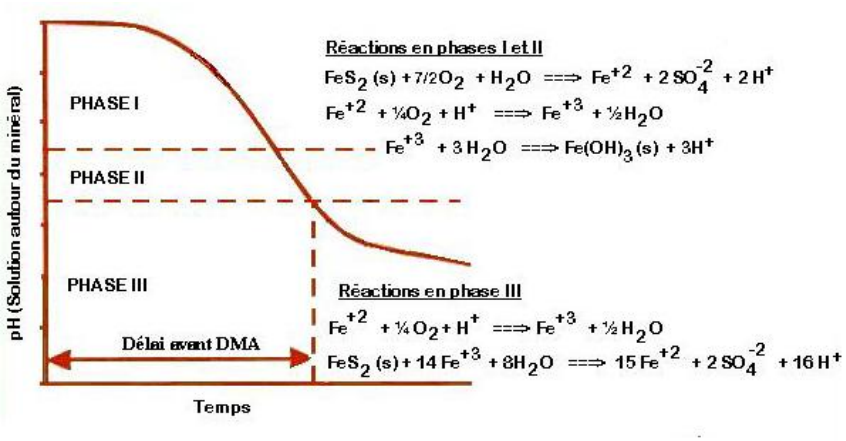


Figure 2.1: Phases successives de la formation du drainage minier acide par l'oxydation de la pyrite. Les réactions des phases I et II correspondent à l'oxydation directe des sulfures et à la précipitation des hydroxydes de fer. Quand le pH devient inférieur à 3,5 environ, la phase III débute avec l'oxydation indirecte de la pyrite (adapté de Kleinman et al., 1981; tiré de Aubertin et al., 2002)

L'oxydation du Fe(II) en Fe(III) (équation 2.2) permet d'entretenir la réaction d'oxydation indirecte de la pyrite. La réaction d'oxydation du Fe(II) en Fe(III) est très rapide pour des pH supérieurs à 4, mais elle devient très lente (et indépendante du pH) dans des milieux plus acides (Appelo et Postma, 1994). Par conséquent, la production de Fe(III), et donc la génération d'acide, sont limitées par le taux d'oxydation du Fe(II). L'action des bactéries *Acidithiobacillus ferrooxidans* permettrait de catalyser la réaction (2.2) pour qu'elle atteigne des taux de réaction équivalents à ceux de l'oxydation indirecte de la pyrite par le Fe(III) (Nordstrom et al., 1992).

Compte tenu de ces observations, la réaction globale d'oxydation de la pyrite s'écrit :

$$FeS_2 + \frac{15}{4}O_2 + \frac{7}{2}H_2O \rightarrow Fe(OH)_3 + 2H_2SO_4 \qquad (2.5)$$

La réaction d'oxydation indirecte sera décrite en détail à la section 2.1.8.

2.1.3 Oxydation d'autres minéraux sulfureux

La pyrrhotite est un sulfure de fer, de formule $Fe_{1-x}S$, avec x variant de 0,125 (Fe_7S_8) à 0 (FeS). Bien que généralement moins abondante dans les rejets miniers que la pyrite, elle peut participer pour une part importante à la génération du drainage minier acide (Nicholson, 1994). La réaction d'oxydation avec l'oxygène s'écrit (Nicholson et Scharer, 1994) :

$$Fe_{1-x}S + \left(2 - \frac{x}{2}\right) O_2 + xH_2O \rightarrow (1-x)Fe^{2+} + SO_4^{2-} + 2xH^+ \quad (2.6)$$

D'où la réaction globale suivante :

$$Fe_{1-x}S + \frac{9-3x}{4} O_2 + \frac{5-3x}{2} H_2O \rightarrow (1-x)Fe(OH)_3 + SO_4^{2-} + 2H^+ \quad (2.7)$$

Comme pour la pyrite, l'oxygène est l'accepteur d'électrons principal de la pyrrhotite tant que le pH est supérieur à 4 et le Fe(II) s'oxyde et précipite sous forme d'hydroxyde de fer ($Fe(OH)_3$) (Belzile et al., 2004).

Lorsque le pH diminue sous une valeur de 4 environ, le fer ferrique Fe(III) devient l'oxydant de la pyrrhotite (réaction d'oxydation indirecte ; Belzile et al., 2004) :

$$Fe_{1-x}S + (8-2x)Fe^{3+} + 4H_2O \rightarrow (9-3x)Fe^{2+} + SO_4^{2-} + 8H^+ \quad (2.8)$$

L'oxydation de la pyrrhotite peut être incomplète (Burns et Fisher, 1990; Fisher et Burns, 1990; Ahonen et Tuovinen, 1994; Plumlee, 1999; Janzen et al., 2000; Belzile et al., 2004; Gunsinger et al., 2006) et former des composés intermédiaires (notamment du soufre élémentaire).

La structure cristalline particulière de la pyrrhotite (certains atomes de fer sont manquants) lui confère une plus grande réactivité que la pyrite avec un taux un ordre de grandeur plus grand (Keith et Vaughan, 2000). Pour certains auteurs, l'espace laissé vide dans la structure du minéral permettrait aussi au Fe(III) de réagir plus facilement avec la surface des grains de pyrrhotite (Vaughan et Craig, 1998; Pratt et al., 1994).

La pyrite et la pyrrhotite sont généralement les espèces retenues pour décrire les phénomènes d'oxydation dans les rejets miniers en raison de leur abondance et de leur réactivité, mais les autres minéraux sulfureux (chalcopyrite, arsénopyrite…) peuvent également contribuer à l'acidification du milieu (Plumlee, 1999).

2.1.4 Rôle des bactéries

Les bactéries peuvent servir de catalyseurs dans les phénomènes d'oxydation de la plupart des minéraux sulfureux. On retrouve de nombreuses bactéries sur les sites miniers (Mills, 1999), tant neutrophiles qu'acidophiles. Trois types interviennent directement dans la formation du drainage minier acide : *Acidithiobacillus*, *Thiobacillus* et *Leptospirillum*. On distingue :

- les bactéries ferrooxydantes (IOB) qui oxydent le Fe(II) en Fe(III) (Bierens de Haan, 1991; Sengupta, 1992; Salomons, 1995; Banks et al., 1997; Belzile et al., 1997; Kelly et Wood, 2000),
- les bactéries sulfooxydantes (SOB) qui oxydent le soufre natif en acide sulfurique (Lyric et Suzuki, 1970a, b; Katayama et Kuraishi, 1978; Kelly et Harrison, 1989).

Les bactéries ferrooxydantes (comme *A. ferrooxidans* anciennement *T. ferrooxidans*) oxydent les sulfures et catalysent l'oxydation du fer ferreux (équation 2.2) dont le taux serait multiplié par un facteur de 1 000 ou plus (Singer et Stumm, 1970; SRK, 1989; Nicholson, 1994; Nordstrom et Southam, 1997). Elles permettent :

- d'accélérer la réaction d'oxydation directe (2.1) par un facteur de 10,
- de supprimer tout facteur limitant la réaction d'oxydation indirecte (la réaction (2.2) est ramenée à la même cinétique que la réaction (2.4), même à de faibles pH).

Les bactéries sulfooxydantes (comme *A. thiooxidans* ou *T. thioparus*) tirent essentiellement leur énergie de l'oxydation du soufre natif. S^0 peut se trouver à l'état naturel dans les résidus mais il est généralement formé lors de l'oxydation incomplète des sulfures (Leduc et Ferroni, 1994) :

- la réaction d'oxydation directe incomplète, à pH neutre ou légèrement acide, d'un sulfure métallique MS (M : métal, comme Fe, Cu, Pb) s'écrit:

$$MS + \frac{1}{2}O_2 + 2H^+ \rightarrow M^{2+} + S^0 + H_2O \qquad (2.9)$$

- la réaction d'oxydation indirecte incomplète à pH < 3 est:

$$MS + 2Fe^{3+} + H_2O \rightarrow M^{2+} + S^0 + 2Fe^{2+} \qquad (2.10)$$

Les bactéries sulfooxydantes permettraient de catalyser les réactions d'oxydation des sulfures (directes et indirectes) en achevant l'oxydation incomplète du soufre.

Les espèces que l'on retrouve dans les parcs, ainsi que leur nombre, varient selon le pH, la température, les teneurs en oxygène, les teneurs en eau et la minéralogie du milieu (Gould et al., 1994). Le rôle exact des bactéries sur la vitesse d'oxydation des minéraux sulfureux reste cependant sujet à discussion (Nicholson, 1994; Nordstrom et Alpers, 1999; Banfield et Welch, 2000).

2.1.5 Neutralisation

Certains minéraux (carbonates, silicates), parfois présents dans les résidus miniers (Jambor et Blowes, 1998), ont la capacité de réagir avec les protons et de les neutraliser, généralement en formant des ions HCO_3^-. Cette capacité neutralisante, ou pouvoir tampon, constitue un moyen de prévention naturel (et quelque fois efficace) de la génération du drainage minier acide.

Au rang de ces minéraux neutralisants, la calcite ($CaCO_3$), la dolomite ($(Ca,Mg)(CO_3)_2$) et la magnésite ($MgCO_3$) sont parmi les plus efficaces (Plumlee, 1999). Leur présence permet de maintenir un pH autour ou au-dessus de 5,5 sur certains sites (Blowes et al., 2003).

Les réactions de neutralisation par la calcite peuvent s'écrire comme suit (Plumlee, 1999) :

$$2CaCO_3 + H_2SO_4 \rightarrow 2Ca^{2+} + 2HCO_3^- + SO_4^{2-} \quad (2.11)$$

$$Ca^{2+} + 3NaOH \rightarrow Ca(OH)_3 + 3Na^+ \quad (2.12)$$

La neutralisation par la dolomite s'exprime de la manière suivante :

$$CaMg(CO_3)_2 + H_2SO_4 \rightarrow Mg^{2+} + Ca^{2+} + 2HCO_3^- + SO_4^{2-} \quad (2.13)$$

$$Ca^{2+} + 2NaOH \rightarrow Ca(OH)_2 + 2Na^+ \quad (2.14)$$

$$Mg^{2+} + 2NaOH \rightarrow Mg(OH)_2 + 2Na^+ \quad (2.15)$$

Lorsque toute la calcite et la dolomite ont été consommées, la sidérite (primaire ou secondaire) peut également consommer une partie de l'acide. La réaction s'écrit (Ptacek et Blowes, 1994) :

$$FeCO_3 + H^+ \rightarrow Fe^{2+} + HCO_3^- \quad (2.16)$$

Quand le pH devient inférieur à 4, et que toutes les autres espèces ont été épuisées, les silicates et phyllosilicates peuvent à leur tour jouer le rôle de neutralisant (Perkins et al., 1995).

La réactivité des minéraux neutralisants est variable selon les espèces. Certains se dissolvent rapidement dès que le pH baisse quelque peu, mais d'autres sont pratiquement inertes. On peut ainsi les classer par capacité neutralisante décroissante (Plumlee, 1999) :

calcite > dolomite > ankérite magnésienne > ankérite > sidérite

D'autres séquences de neutralisation existent, comme par exemple (Blowes et Ptacek, 1994; Blowes et al., 2003) :

calcite (pH = 6,5-7,5) > sidérite (pH = 4,8-6,3) > $Al(OH)_3$ (pH = 4,0-4,3) > $Fe(OH)_3$ (pH < 3,5)

Une autre approche consiste à quantifier les différences de pouvoir neutralisant. Ainsi, à un pH de 5, si l'on donne la valeur 1 à la réactivité de la calcite, de la dolomite, de l'aragonite ou encore de la magnésite (minéraux solubles et également réactifs), la réactivité de l'anorthite, du grenat, ou de l'olivine sera de 0,4, celle des sorosilicates, des pyroxènes, des amphiboles et des phyllosilicates sera de 0,02 (contribution limitée), celle des plagioclase, des argiles, de la muscovite ou encore des feldspaths potassiques est de 0,01 et enfin celle du quartz est de 0,004 (quasi inerte) (Sverdrup, 1990; Kwong, 1993).

D'autres auteurs proposent que si la valeur 1 est donnée à la calcite et à la dolomite, l'ankérite ait une réactivité de 1,25, la chlorite de 0,125, la muscovite de 0,2, la kaolinite, la brucite et la gibbsite de 0,67, l'olivine ou les plagioclases sodiques de 0,5 (Paktunc, 1999a, b). Ces valeurs représentent le nombre de moles de l'espèce requis pour neutraliser une mole d'acide sulfurique.

2.1.6 Produits d'oxydation

Les très fortes concentrations en métaux lourds dans les eaux de drainage minier acide, ainsi que les mécanismes de neutralisation, ont pour conséquence d'engendrer des phénomènes de précipitation. Les minéraux dits secondaires, formés à l'issue de ces réactions, dépendent de la valeur de l'indice de saturation, soit encore de la composition de la solution (concentrations, pH), de la minéralogie des minéraux primaires, de la température, ainsi que de la teneur en eau du milieu.

De très nombreuses espèces secondaires existent avec le DMA (e.g. Nordstrom et Alpers, 1999; Jambor, 2000) mais parmi les plus communes, on retiendra la goethite, le gypse et la jarosite, la covellite, la marcasite et le soufre natif (Jambor, 2000). Sur les sites abandonnés, qui possèdent

un certain passif de contamination, on retrouve souvent de nombreux minéraux secondaires et produits d'oxydation : halotrichite, goethite, jarosite-hydronian, hydronium-jarosite, starkeyite, gypse, alunite, copiapite, butterite, coquimbite ainsi que du soufre natif (Hakkou et al., 2008a). Les minéraux secondaires peuvent être à l'origine de variations importantes dans les concentrations de fer notamment, suite à la précipitation de goethite, de ferrite cuprique ou de lepidocrocite par exemple (Bussière et al., 2004).

La plupart des métaux sont bi- ou trivalents et amphotères (Nordstrom et Alpers, 1999), ce qui signifie que leur minimum de solubilité tourne autour de pH = 7 (Barton, 1978). Leur capacité à précipiter sous forme d'oxydes est liée à leur adsorption à la surface des oxydes de fer hydratés (Nordstrom et Alpers, 1999) qui est elle-même fonction du pH (Dzombak et Morel, 1990). Pour une molarité minimale de 10^6, la séquence de précipitation sous forme d'hydroxydes et d'oxy-hydroxydes pour des pH croissants est la suivante : Fe(III), Pb, Al, Cu, Zn, Fe(II) et Cd (Nordstrom et Alpers, 1999).

Le Fe (III) précipite essentiellement sous forme de goethite (FeO(OH)) et parfois d'hématite (Fe_2O_3) (Nordstrom et Alpers, 1999). D'autres facteurs, comme la présence d'aluminium (Tardy et Nahon, 1985) et d'autres éléments traces (qui peuvent se substituer à un certain nombre d'atomes de fer ; Torrent et Guzman, 1982), la teneur en eau et la taille des grains (germination), ont une influence sur le type d'oxydes de fer formés.

Il est par contre rare que le Fe(II) précipite car il nécessite des environnements très alcalins, peu fréquents dans la nature (en particulier dans l'environnement direct des parcs à résidus miniers). Sa précipitation est d'ailleurs limitée par une cinétique particulièrement lente (Nordstrom et Alpers, 1999).

Les sulfates sont souvent abondants dans les parcs à résidus. Ils se présentent la plupart du temps sous forme de sels solubles. Ils se forment généralement en période de sécheresse, avant de se redissoudre dès que le milieu redevient plus humide. Ils favorisent la rétention des métaux dans les zones de battement de nappe. On retrouve des sulfates de nombreux métaux sur les sites miniers (Nordstrom et Alpers, 1999).

La présence de carbonates est également fréquente sur les sites miniers, avec pour origine soit la gangue elle-même, soit les amendements éventuellement employés. En général, on retrouve surtout de la sidérite ($FeCO_3$) sur les sites miniers (Nordstrom et Alpers, 1999).

2.1.7 Coefficient du taux de réaction

La réaction d'oxydation des sulfures peut s'écrire sous la forme d'une équation avec une cinétique du premier ordre (Nicholson et al., 1988, 1989; Appelo et Postma, 1994; Mbonimpa et Aubertin, 2002; Gosselin, 2007) :

$$C(t) = C_0 e^{-K_r.t} \qquad (2.17)$$

avec : K_r : coefficient du taux de réaction [T^{-1}]

$C(t)$: concentration au temps t [$M.L^{-3}$]

C_0 : concentration initiale (temps t = 0) [$M.L^{-3}$]

La réactivité des minéraux sulfureux est fonction de nombreux paramètres :

- composition minéralogique. Une classification assez bien acceptée des sulfures selon leur réactivité décroissante est la suivante (Jambor, 1994; Pratt et al., 1996) :

  pyrrhotite > galène = sphalérite > pyrite = arsénopyrite > chalcopyrite > magnétite

- structure cristalline du minéral (Orlova et al., 1989; Nicholson, 1994; Belzile et al., 2004), mais cet effet semble contesté (Jambor et Blowes, 1998; Janzen et al., 2000; Meldrum et al., 2001).

- granulométrie et surface spécifique des grains (Nicholson, 1984, 1994; Nicholson et Scharer, 1994; Kwong, 1995; Janzen et al., 2000).

- action galvanique entre différents minéraux réactifs (Kwong, 1993; Evangelou, 1995; Perkins et al., 1995; McIntosh et al., 1997)

- concentrations en métaux traces tels Co, Cu, Mn, Ni (Kwong, 1995; Janzen et al., 2000).

- impuretés (Lehner et al., 2007).

- accumulation de soufre natif sur les surfaces des grains qui accélère l'oxydation métabolique (McGuire et al., 2001a,b).

- oxygénation (e.g. Nicholson et al., 1988; Appelo et Postma, 1994).

- concentration en Fe(III) (Williamson et Rimstidt, 1994).

- pH (Moses et al., 1987; Appelo et Postma, 1994; Belzile et al., 2004).

- température (Meldrum et al., 2001; Elberling, 2005).
- activités bactériennes (Shelp et Yanful, 2000; Edwards et al., 2000).
- pré-oxydation selon le principe du noyau réactif (figure 2.2)(Davies et Ritchie, 1986). Selon ce modèle, la surface du grain réactif est sphérique. D'un côté, l'oxydation entraine la perte d'une certaine quantité de matériau et fait diminuer le diamètre du grain. De l'autre, les précipitations et minéralisations secondaires à sa surface font augmenter son diamètre total (Hakkou et al., 2008b). Ces produits secondaires constituent également une barrière au passage de l'oxygène (Nicholson et al., 1990; Appelo et Postma, 1994). Plusieurs modèles de simulation géochimique utilisent l'approche du noyau réactif (Mayer et al., 2000, 2002; Lefèbvre et al., 2001b; Molson et al., 2005, 2008). L'idée de base du modèle provient d'observations de terrain (Cathles et Schlitt, 1980).

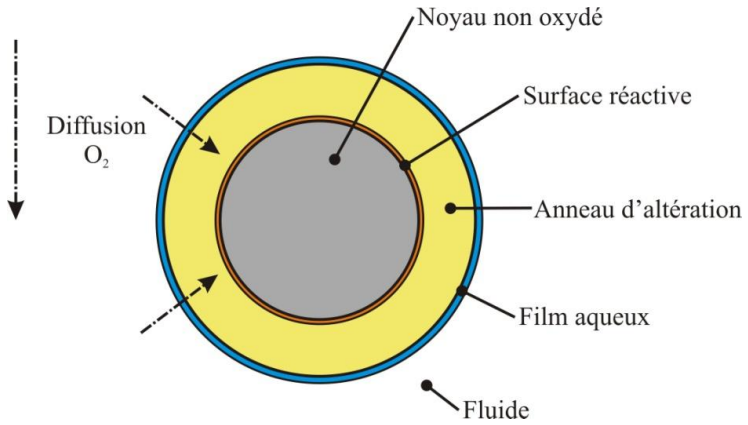


Figure 2.2: Modèle du noyau réactif. On considère que les grains de sulfures sont sphériques et qu'ils sont progressivement oxydés. Pour réagir avec la surface du grain non oxydé, l'oxygène doit traverser (par diffusion) le fluide environnant, le film aqueux autour du grain, ainsi que la frange de précipitation secondaire et de minéraux déjà oxydés (anneau d'altération) (adapté de Mayer et al., 2002)

Une bonne estimation du coefficient du taux de réaction K_r est généralement obtenue par le modèle de Collin (1987). En considérant que seule la pyrite est réactive, qu'elle est directement accessible à l'oxygène et que la surface de pyrite par unité de volume est la même que celle des grains solides, alors il est possible d'écrire (Collin, 1987; Mbonimpa et al., 2002, 2003 ;Gosselin, 2007) :

$$K_r = K'.\frac{6}{D_H}(1-n)C_p \qquad (2.18)$$

avec : K' : réactivité intrinsèque de la pyrite pure avec l'oxygène [$L^3(O_2).L^{-2}$(pyrite).T^{-1}]

n : porosité [-]

C_p : pourcentage massique de pyrite dans le sol sec [-]

D_H : diamètre équivalent [-]

K' est variable selon les sources, mais une valeur communément utilisée est :

K' = 5.10^{-10} $m^3.O_2.m^{-2}_{pyrite}.s^{-1}$ = $5{,}76.10^{-15}$ $mol.s^{-1}.g^{-1}$

2.1.8 Oxydation indirecte

Les sites étudiés dans le cadre de l'étude (voir section 3.1) sont partiellement oxydés et l'eau interstitielle est déjà acide et contaminée. L'oxydation indirecte des minéraux sulfureux est donc un phénomène potentiellement critique. Les mécanismes de cette réaction sont décrits ici en détails. Un certain nombre d'études analysent ce phénomène dans des conditions extrêmes de températures et de pressions (Lowson, 1982) ; ces résultats ne seront pas considérés ici compte tenu du caractère irréaliste de ces conditions. Remarquons aussi que la plupart des expériences sont menées avec de la pyrite fraîche, pure et sous agitation, ce qui n'est pas forcément représentatif des conditions de terrain.

La réaction d'oxydation indirecte de la pyrite semble être une réaction chimique de surface (Wiersma et Rimstidt, 1984; Moses et al., 1987). Le Fe(III) dissout serait l'oxydant le plus efficace de la pyrite (Luther, 1987). La réaction d'oxydation serait donc d'autant plus rapide qu'il y aurait plus de Fe(III) en solution. Le Fe(III) est produit par l'oxydation du Fe(II), lui même produit par l'oxydation de la pyrite ; cette dernière réaction est donc le principal facteur qui limite la réaction d'oxydation indirecte (e.g. Singer et Stumm, 1970; Moses et al., 1987).

La vitesse de la réaction d'oxydation indirecte dépend de nombreux paramètres : température, pH, concentration en oxygène dissout (Lottermoser, 2010) et en sulfates (Zheng et al., 1986). Elle peut être catalysée par des bactéries (Singer et Stumm, 1970; SRK, 1989; Nicholson, 1994; Nordstrom et Southam, 1997).

Effets du pH

Lorsque le pH dépasse 3-4, le Fe(III) se retrouve essentiellement sous forme précipitée (hydroxydes $Fe(OH)_3$ et oxy-hydroxydes FeOOH). Certains estiment que la réaction d'oxydation indirecte est alors lente et négligeable comparativement à l'oxydation directe (Lottermoser, 2010) et que l'effet du pH est quasiment nul autour de la neutralité (Moses et al., 1987; Appelo et Postma, 1994). Inversement, plus le pH est faible, plus le Fe(III) se retrouve en solution, et plus la réaction d'oxydation indirecte est accélérée.

Certains auteurs considèrent que le taux de la réaction d'oxydation indirecte (équation 2.4) R_{FeS_2} [$M.L^{-3}.T^{-1}$] est lié au rapport entre les concentrations de Fe(II) et de Fe(III) en solution, ce qui permet d'écrire une réaction générale du type (Smith et Shumate, 1970; Zheng et al., 1986) :

$$R_{FeS_2} = \frac{K_1 - K_2([Fe^{2+}]/[Fe^{3+}])^{1/2}}{[Fe^{3+}]^{-1/2} + K_3 + K_4([Fe^{2+}]/[Fe^{3+}])^{1/2}} \quad (2.19)$$

avec K_i des constantes de réactions fonctions du milieu et des conditions expérimentales. Des valeurs typiques de R_{FeS_2} sont comprises entre $5{,}9.10^{-11}$ et $1{,}1.10^{-7}$ $mol.m^{-2}.s^{-1}$ (Williamson et Rimstidt, 1994; Gleisner et al., 2006).

Dans le cas où les concentrations de sulfates sont importantes et variables, Zheng et al. (1986) proposent l'expression suivante (assez similaire à la précédente) :

$$R_{FeS_2} = \frac{K_1[Fe^{3+}]}{(1 + K_2[Fe^{3+}] + K_3[Fe^{2+}] + K_4[Fe^{2+}][HSO_4^-]^3)^{1/2}} \quad (2.20)$$

Pour un pH de 1,6, une température de 30°C, un rapport $[Fe^{3+}]/[Fe^{2+}]$ compris entre 500 et 20000 et en présence de bactéries du type *Leptospirillum*, le modèle proposé par Boon et Heijnen (1998) s'écrit :

$$R_{FeS_2} = \frac{A}{1 + B([Fe^{2+}]/[Fe^{3+}])} \quad (2.21)$$

où A [T^{-1}] et B [-] sont des constantes cinétiques qui sont fonctions des conditions expérimentales.

Une autre formulation proposée par Williamson et Rimstidt (1994) permet d'écrire :

$$R_{FeS_2} = 10^{-8,58}.\frac{[Fe^{3+}]^{0,30}}{[Fe^{2+}]^{0,47}.[H^+]^{0,32}} \quad (2.22)$$

Pour d'autres auteurs, le taux de réaction de l'oxydation indirecte à faible pH n'est fonction que de la concentration de Fe(III) en solution et indépendant de celle de Fe(II) (McKibben et Barnes, 1986; Moses et al., 1987; Gleisner et al., 2006). On peut dans ce cas estimer le taux de réaction de la pyrite par la formule suivante (Gleisner et al., 2006) :

$$R_{FeS_2} = 10^{-7,02\pm0,26}[Fe(III)]^{0,83\pm0,07} \quad (2.23)$$

Cette relation a été définie pour un pH de 2,65 (±0,16) et des concentrations de bactéries *Acidithiobacillus ferrooxidans* supérieures à 10^6 cellules/mL.

Dans le même ordre d'idée, certains auteurs proposent une expression qui dépend à la fois des concentrations en Fe(III) et du pH (Fowler et al., 2001; Crundwell, 2003) :

$$R_{FeS_2} = \frac{A.[Fe^{3+}]^{0,5}}{[H^+]^x} \quad (2.24)$$

avec x = 0,5 en l'absence de bactéries *A. ferrooxidans* et x = 0,39 si elles sont présentes. A est un paramètre fonction des conditions de l'essai.

D'autres études indiquent également qu'à pH faible, il pourrait exister un phénomène de compétition entre les ions H^+ et Fe^{3+} (et éventuellement Fe^{2+}) sur les sites d'adsorption, ce qui ferait diminuer la réactivité des sulfures (Smith et al., 1968; Belzile et al., 2004). Pour des pH relativement faibles (pH < 2 pour Garrels et Thompson (1960) et pH < 4 pour Brown et Jurinak (1989)), la vitesse de la réaction d'oxydation indirecte deviendrait indépendante du pH.

Effet de l'oxygène

De trop faibles concentrations d'oxygène (inférieures à 5% de fraction molaire dans l'air ou 2% en poids dans l'eau (Lefebvre, 1994), inférieures à 12,9 µmol/L (Myerson, 1981) ou à 1,3 µmol/L (Goodman et al., 1983)) peuvent arrêter le processus d'oxydation indirecte, certains expliquant ce phénomène par la nécessité d'avoir un minimum d'oxygène en solution pour oxyder le Fe(II) et Fe(III) et éventuellement permettre le développement des bactéries catalysant cette réaction (Jaynes, 1983; Gleisner et al., 2006).

La présence d'oxygène pourrait également jouer sur le potentiel d'oxydo-réduction de l'eau interstitielle et donc sur le rapport Fe(III)/Fe(II). On peut alors écrire, en présence d'oxygène dissout (Williamson et Rimstidt, 1994) :

$$R_{FeS_2} = 10^{-6,07} . \frac{[Fe^{3+}]^{0,93}}{[Fe^{2+}]^{0,40}} \quad (2.25)$$

R_{FeS_2} varie alors typiquement entre $5{,}0.10^{-11}$ et $5{,}0.10^{-7}$ mol.m^{-2}.s^{-1} (Williamson et Rimstidt, 1994; Gleisner et al., 2006).

D'autres auteurs considèrent au contraire que la réaction indirecte par le Fe(III) est indépendante du contexte aérobie ou anaérobie (Singer et Stumm, 1970), ou que les effets de l'oxygène dissout sont négligeables (Mazumdar et al., 2008).

Certains auteurs ont mentionné la possibilité que l'oxydation indirecte demeure un mécanisme important, voir prédominant, à des pH proches de la neutralité, et ce malgré les faibles concentrations de Fe(III) en solution (Smith et al., 1968; Moses et al., 1987; Brown et Jurinak, 1989). Moses et al. (1987) mentionnent que s'il y a effectivement une réaction entre la pyrite et les oxy-hydroxydes de fer (réaction solide-solide), celle-ci devrait être plus lente que la réaction d'oxydation indirecte.

Brown et Jurinak (1989) ont cherché à montrer que l'oxydation du Fe(II) en Fe(III) n'est pas toujours le facteur limitant de la réaction d'oxydation indirecte, mais qu'elle pourrait aussi être limitée par la réaction de surface avec le Fe(III) elle-même.

Enfin, il est intéressant de remarquer que l'oxydation indirecte de la pyrite ne produit généralement pas de composés intermédiaires. Les réactions seraient si rapides que les intermédiaires seraient presque instantanément retransformés jusqu'à obtenir les produits finaux de l'oxydation (Moses et al., 1987). Singer et Sturm (1970) et Moses et Herman (1991) ont proposé des schémas généraux des mécanismes de l'oxydation indirecte de la pyrite.

2.1.9 Evaluation du potentiel de génération de DMA et de la réactivité

Les méthodes de mesures du potentiel de génération d'acide sont de deux types :

- les essais statiques, qui sont principalement des estimations mathématiques à partir des données chimiques ou minéralogiques des résidus (Benzaazoua et al., 2002; Plante, 2004),
- les essais cinétiques, qui reproduisent à petite échelle certaines conditions de terrain et qui permettent un suivi au cours du temps (Benzaazoua et al., 2002, 2004; Villeneuve, 2004).

On ajoutera ici les essais de consommation, en cellule au laboratoire ou sur le terrain, qui permettent de caractériser la réactivité d'un matériau.

Les essais statiques sont des tests de prédiction rapides et sommaires qui permettent de comparer le potentiel de génération d'acide (PA) et le potentiel de neutralisation (PN) d'un matériau réactif. Il s'agit d'un essai ponctuel et global qui ne tient pas compte de la cinétique des réactions. Afin de pouvoir comparer le PA et le PN, ils sont usuellement exprimés en unité de $kgCaCO_3$(éq) par tonne de rejets.

On distingue :

- les méthodes chimiques, basées sur les analyses d'un lixiviat mis en contact avec les résidus,
- les méthodes minéralogiques, basées sur l'analyse minéralogique des résidus.

Parmi les tests les plus reconnus et employés, on trouve :

- le test NAG (Net Acid Generating ; Miller al., 1997; Jambor, 2003; Plante, 2004).
- la méthode NP (Neutralization Potential; Lawrence et al., 1989; Lapakko, 1994; Jambor, 2003).
- la méthode du potentiel de neutralisation du carbone inorganique (ou PNC), qui consiste à mesurer la teneur en carbone inorganique (donnée parfois en $\%CO_2$) en faisant l'hypothèse que tout le carbone contenu dans l'échantillon provient des carbonates (Plante, 2004) :

  $$PNC = 83{,}33.\,\%C_{inorg} \quad (2.26)$$

  $$PNC = 22{,}74.\,\%CO_2 \quad (2.27)$$

  avec : PNC : potentiel de neutralisation des carbonates [$kgCaCO_3/t$]

  $\%C_{inorg}$: teneur massique de carbone inorganique (en %) [-]

  $\%CO_2$: teneur massique de CO_2 (en %) [-]

- l'essai de base (Morin et Hutt, 1997), dit test standard modifié, ABA ou approche de Sobeck modifiée par Lawrence et Wang (Sobeck et al., 1978; Lawrence et Wang, 1997), qui fait l'hypothèse que les sulfures et les carbonates présents dans le milieu ont tous la

même réactivité que la pyrite et la calcite. Pour déterminer le PA, on quantifie ici le pourcentage de soufre total (ou de soufre sulfure) présent dans l'échantillon. On a alors (Jambor, 2003) :

$$PA = 31{,}25.\,\%S_{Sulfures} en\ kgCaCO_3/t \quad (2.28)$$

Le PN peut être déterminé à partir d'un titrage ou la mesure du carbone inorganique (PNC). On peut alors calculer :

- le potentiel de neutralisation net : PNN = PN – PA ;
- le potentiel de neutralisation nette étendu : PNCN = PNC – PA ;
- le rapport PN/PA.

Selon la valeur de chaque paramètre, il est possible de déterminer la tendance d'un matériau à générer des eaux acides (Plante, 2004) :

- Si PNN > 0, PNCN > 0 ou PN/PA > 1, alors les risques de génération d'acide sont faibles.
- Si PNN < 0, PNCN < 0 ou PN/PA < 0, alors il y a un risque de production de DMA.

Les essais statiques chimiques sont faciles et rapides à réaliser, mais ils présentent quelques limites dues aux effets de la granulométrie, des différences entre chaque minéralogie et des bactéries.

Les approches minéralogiques constituent une autre approche. On y dénombre :

- l'approche de Kwong (1993) qui intègre un facteur cinétique dans la détermination du PNN. Une variante de la méthode a été proposée par Li (1997) mais n'a pas été validée (Plante, 2004).
- l'approche de Paktunc (1999a, b) prend en compte la minéralogie de l'échantillon mais considère que seules la pyrite et la pyrrhotite génèrent de l'acide (Plante, 2004).
- une seconde approche de Paktunc (1999a, b), dite itérative, est plus précise et prend en compte des facteurs cinétiques, la granulométrie et l'état de surface des particules solides.

Du fait des nombreuses hypothèses simplificatrices et des imprécisions de ces méthodes, on y associe en général une zone d'incertitude. En dehors de cette zone, les estimations pourront être considérées avec une certaine assurance. Autrement, aucune conclusion ne pourra être tirée des

résultats. Les limites de cette zone d'incertitude ne sont pas uniformément fixées (Ferguson et Morin, 1991; Miller et al., 1991; Morin et Hutt, 1994; Price et al., 1997; Adam et al., 1997; Sjoberg et al., 2001; Plante, 2004)

Lorsque les essais statiques ne permettent pas de conclure sur le potentiel de génération d'acide d'un matériau, il est préconisé de réaliser des essais cinétiques. Ces tests sont plus longs, plus coûteux, mais permettent de conclure de manière plus fiable sur les risques de génération de DMA. Il en existe plusieurs types (Benzaazoua et al., 2002, 2004; Villeneuve, 2004), sur le terrain et en laboratoire. On note parmi eux :

- les tests en cellules humides (ASTM D5744-96, 1998, voir aussi Morin et Hutt, 1997; White et al., 1999; Filipek et al., 1999; White et Lapakko, 2003; Villeneuve, 2004).
- les mini-cellules d'altération (Villeneuve, 2004).
- la technique des flacons agités (Villeneuve, 2004).
- l'extracteur de Soxhlet (Villeneuve, 2004).
- les essais de terrain (parcelles expérimentales), qui seraient la meilleure solution pour estimer la réactivité des matériaux et évaluer les méthodes de contrôle du DMA dans des conditions réelles (SRK, 1989; Aubertin et al., 1997, 1999; Bussière et al., 2001, 2007; Smith et Beckie, 2003; Yanful et al., 2006; Molson et al., 2008) Des essais similaires ont été réalisés pour l'analyse de la génération de drainage neutre contaminé (DNC) sur certaines haldes à stériles (Plante, 2010).
- les essais en colonne, qui permettent de simuler certaines conditions réelles de terrain sur des échantillons plus grands que dans les autres essais cinétiques. L'essai peut aussi servir à déterminer l'efficacité des recouvrements, l'effet des bactéries, les taux de réaction et leur variabilité dans le temps (SRK, 1989; Villeneuve, 2004) ainsi qu'à réaliser des analyses de sensibilités, calibrer des modèles numériques ou encore valider des modèles analytiques. Le tableau 2.1 donne quelques exemples concrets d'applications et d'utilisation des essais en colonne.

Ces essais sont généralement complétés par des modélisations numériques (e.g. Molson et al., 2008).

Tableau 2.1: Exemples d'utilisations des essais en colonnes dans diverses études sur le DMA

Source	Objectifs	Description	Matériaux	Mesures
Aachib, 1997	Efficacité de couvertures constituées de rejets miniers pour limiter le DMA	150 cm de haut	- Rejets Bevcon - Rejets Senator - Rejets Sigma - Rejets Norebec-Manitou - Rejets Solbec-Cupra	- Cycles mouillage-séchage - Teneurs en eau - Analyse lixiviat - Températures
Aubertin et al., 1997 Aubertin et al., 1999	- Caractéristiques hydriques et de diffusion des matériaux de recouvrement - Efficacité de couvertures constituées de rejets miniers pour limiter le DMA - Comparaison des résultats de laboratoire et de terrain - Simulations numériques	15 cm de diamètre 150 à 250 cm de haut	- Résidus Norebec-Manitou - Résidus non sulfureux ; Sigma grossier et Sigma fin (couv) - Sable (couv) - Till (couv) - Résidus non sulfureux non amendés	- Cycles mouillage-séchage - Teneurs en eau - Analyse lixiviat - Démantèlement
Joanes, 1999	Efficacité de recouvrements multicouches pour limiter le DMA	15 cm de diamètre 150 à 200 cm de haut	- Sable, till - Résidus non réactifs Sigma, grossiers, fins - Résidus Manitou réactifs	- Cycles mouillage-séchage - Teneurs en eau - Analyse de lixiviat - Démantèlement
Yanful et al., 1999	Efficacité de couvertures multicouches	28 cm² de section 105 cm de haut	- Résidus réactifs - Sable grossier, argile, sable fin	- Cycles mouillage-séchage - $[O_2]$ - Températures - Teneurs en eau - Analyses lixiviat - Prélèvement d'eau dans la colonne - Démantèlement
Choo et Yanful, 2000 Yanful et al., 2006	- Simulations numériques - Efficacité de deux couvertures (deux et trois couches)	11 cm de diamètre 102 cm de hauteur	- Résidus réactifs - Sable fin, moyen et grossier, till, mélange sable bentonite, sable	- Teneurs en eau - Evaporation
Benzaazoua et al. 2001, 2004	Comparaison des essais en colonne avec les autres essais cinétiques	10 cm de diamètre 70 cm de hauteur	- Résidus Joutel	- Cycles mouillage-séchage - Analyse lixiviat
Elberling et Damgaard, 2001	Consommation d'O_2 dans des résidus déposés sous l'eau		- Résidus réactifs remaniés et non remaniés	- $[O_2]$

Tableau 2.1: Exemples d'utilisations des essais en colonnes dans diverses études sur le DMA (suite)

Bussière et al., 2002a; 2004	- Efficacité d'une couverture faite de résidus réactifs mais non générateurs - Effet de la teneur en soufre résiduelle	10 cm de diamètre 160 cm de haut	- Résidus désulfurés - Sable	- Cycles mouillage-séchage - Positions de la nappe - $[O_2]$ - Analyse lixiviat
Hecht et Kölling, 2002	Oxydation des sulfures avec la profondeur	10 cm de diamètre 100 cm de haut (87 cm de résidus)	Résidus réactifs (1,2% pyrite)	
Dagenais, 2005	- Effet de la variation du niveau de la nappe sur l'oxydation - Efficacité de la méthode de la nappe surélevée - Taux d'oxydation des sulfures	15 cm de diamètre 50-100 cm de hauteur	- Résidus Lorraine - Résidus Aldermac - Mélange résidus Solbec-Manitou	- Cycles mouillage-séchage - Positions de la nappe - Analyse lixiviat - $[O_2]$
Doye, 2005	Capacité de résidus industriels alcalins à inhiber le drainage minier acide		- Stériles miniers - Poussières de four de cimenterie et boues rouges d'aluminerie	
Olson et al., 2006	Utilisation d'un biocide phosphaté pour application sur rejets sulfureux	10 cm de diamètre 50 cm de haut	- Résidus réactifs	- Cycles mouillage-séchage - Analyse lixiviat
Stewart et al., 2006	Réactivité d'un matériau		- Résidus réactifs	- Cycles mouillage-séchage - Analyse lixiviat
Ouangrawa, 2007 Ouangrawa et al., 2005, 2006, 2007	- Effet du maintient d'une nappe surélevée sur la production de DMA - Calibration d'un modèle de transport réactif (MIN3P) - Influence la granulométrie et de la minéralogie	15 cm de diamètre 150-200 cm de hauteur	- Résidus Louvicourt - Résidus Sigma - Mélange des deux résidus	- Cycle mouillage-séchage - Positions nappe - Analyse lixiviat - Débits - $[O_2]$ - Teneurs en eau - Succions - Prélèvements d'eau dans la colonne - Démantèlement

Tableau 2.1: Exemples d'utilisations des essais en colonnes dans diverses études sur le DMA (fin)

Demers, 2008 Demers et al., 2008a Demers et Bussière, 2008	- Performances de résidus désulfurés comme matériaux de recouvrement - Influence de la quantité de soufre résiduel, de la position de la nappe et de l'épaisseur des couvertures - Reproductibilité des essais en colonnes	14 cm de diamètre Hauteurs variables	- Résidus réactifs - Résidus désulfurés à divers teneurs en soufre (réactifs mais non générateur)	- Cycles mouillage-séchage - Positions de nappe - Succions - Analyse lixiviat - Prélèvement de gaz dans la colonne - Déplacements - Démantèlement
Maqsoud et al., 2008	Efficacité de résidus de carbonates de calcium comme couche de rétention dans une CEBC	30 cm de diamètre 140 cm de hauteur	- Résidus Doyon - Résidus alcalins Omya-SPS - Sable	- Cycles mouillage-séchage - Teneur en eau - Succions - Prélèvement de gaz dans la colonne - Analyse lixiviat
Nichol et al., 2008	- Processus de la zone vadose sur le long terme - Fonctionnement d'un lysimètre	56 cm de diamètre 360 cm de haut	- Sol granulaire - Remblais miniers	- Infiltration - Succion - Analyse lixiviat
Reynolds et Petrik, 2008	Efficacité des cendres volantes comme matériaux de couvertures	Colonnes de tailles variées	- Résidus réactifs - Cendres volantes	- Analyse lixiviat - Démantèlement
Bussière et al., 2011	Efficacité de divers recouvrement pour la restauration du site Manitou	Colonnes de tailles variées	- Résidus réactifs - Résidus non générateurs - Chaux - Sable	- Cycles mouillage-séchage - Teneur en eau - Succions - Prélèvement de gaz dans la colonne - Analyse lixiviat - Démantèlement

Voici quelques caractéristiques générales des essais en colonnes présentés dans le tableau 2.1 :

- les colonnes sont généralement faites de tubes de plexiglas, de PVC, d'acrylique ou de verre, de 5 cm à 60 cm de diamètre et de 20 cm à 600 cm de hauteur ;
- une plaque poreuse en céramique est souvent placée à leur base, afin de simuler une nappe phréatique plus profonde (tube en U) en empêchant l'air de remonter par la base de

la colonne. Les résidus (ou sols) sont souvent disposés directement sur la céramique pour assurer la transmission de la succion ;

- les épaisseurs des matériaux sont choisies en fonction de leurs caractéristiques et des propriétés que l'on souhaite tester (pressions d'entrée d'air, temps de résidence). Il est quelquefois possible de reproduire la stratigraphie observée sur le terrain ;
- on récupère le lixiviat par drainage (libre ou sous succion) à la base de la colonne ;
- on cherche en général à installer dans les colonnes des matériaux fraîchement échantillonnés, en particulier lorsqu'il s'agit de résidus réactifs non oxydés ;
- en fonction de la configuration de la colonne, il est parfois souhaitable d'installer un poumon d'azote (Aubertin et al., 1995, 1997) afin de maintenir la pression de gaz constante dans toute la colonne (e.g. Bradham et Caruccio, 1991; Bussière et al., 1998).

Benzaazoua et al. (2001, 2004) ont comparé les essais en colonne aux autres tests cinétiques existants. De façon générale, il en ressort que la diminution du pH est usuellement moins rapide dans les colonnes. La précipitation des minéraux secondaires y est également plus importante. L'épuisement des minéraux est plus rapide dans les cellules, mais les concentrations en éléments dissouts dans le lixiviat sont du même ordre de grandeur pour les deux types de tests. La bonne répétabilité des essais a également pu être constatée (Aubertin et al., 1997; Demers et Bussière, 2008; Demers et al., 2010a). Enfin, il a été observé que la fréquence de rinçage peut avoir une influence sur l'estimation de la réactivité (Song et Yanful, 2010).

Des essais de consommation (qui peuvent également être réalisés dans les colonnes) peuvent aussi être assimilés à des essais cinétiques. La méthode généralement employée est le test dit de consommation d'oxygène modifié (Mbonimpa et al., 2002, 2003; Martin et al., 2006; Gosselin, 2007), qui constitue une variante de la procédure d'Elberling et al. (1994). Initialement destinée à des essais en laboratoire, la méthode a pu être adaptée aux mesures de terrain (Aubertin et al., 2000; Bussière et al., 2002b).

Il est aussi possible de réaliser des tests qui prennent en compte ou non les microorganismes (voir par exemple Ouangrawa, 2007 ou Toussaint, 2010) et vérifier ainsi si l'activité bactérienne contribue à la production de DMA. Il peut alors s'avérer intéressant de :

- stériliser le milieu pour s'assurer d'obtenir des résultats intrinsèques aux matériaux, sans prendre en compte l'effet des bactéries indigènes,
- stimuler le développement et l'activité des bactéries. Dans ce cas, il est préférable d'employer une microflore mixte indigène, mieux adaptée et qui permet d'éviter la phase d'adaptation (ou de latence) des bactéries.

Ces essais sont cependant difficiles à réaliser en pratique (e.g. Ouangrawa, 2007; Toussaint, 2010), notamment en raison de la difficulté de maintenir des conditions stériles pendant la durée des essais.

2.2 Mouvement de l'eau en milieu poreux

2.2.1 Ecoulements en milieu saturé

Dans un matériau poreux saturé, le mouvement de l'eau est décrit par la loi de Darcy, qui s'écrit, dans un milieu à une dimension (Hillel, 1998; Delleur, 1999; Miyazaki, 2006) :

$$q_w = -k_{w,sat}.i_w \tag{2.29}$$

avec : q_w : vitesse de Darcy ou débit spécifique [$L.T^{-1}$]

$k_{w,sat}$: conductivité hydraulique saturée [$L.T^{-1}$]

i_w : gradient hydraulique [-]

La vitesse réelle de l'eau se définit de la manière suivante (Delleur, 1999) :

$$V_r = \frac{q_w}{n_e} \tag{2.30}$$

avec : V_r : vitesse réelle moyenne de l'eau [$L.T^{-1}$]

n_e : porosité effective [-]

L'expression (tensorielle) de la vitesse de Darcy peut-être étendue à un milieu à trois dimensions (cartésien) et anisotrope :

$$[q_w] = \begin{bmatrix} q_{w,x} \\ q_{w,y} \\ q_{w,z} \end{bmatrix} = -[k_{w,sat,ij}] \begin{bmatrix} i_{w,x} \\ i_{w,y} \\ i_{w,z} \end{bmatrix} = -\begin{bmatrix} k_{w,sat,xx} & k_{w,sat,xy} & k_{w,sat,xz} \\ k_{w,sat,yx} & k_{w,sat,yy} & k_{w,sat,yz} \\ k_{w,sat,zx} & k_{w,sat,zy} & k_{w,sat,zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{\partial h}{\partial x} \\ \frac{\partial h}{\partial y} \\ \frac{\partial h}{\partial z} \end{bmatrix} = -[k_{w,sat}]\nabla[h] \tag{2.31}$$

avec : $q_{w,xyz}$: vitesse de Darcy dans les directions x, y et z [$L.T^{-1}$]

$k_{w,sat,ij}$: conductivité hydraulique saturée anisotrope [$L.T^{-1}$]

$[k_{w,sat}]$: matrice des conductivités hydrauliques

$i_{w,xyz}$: gradient hydraulique dans les directions x, y et z [-]

La matrice des conductivités hydrauliques $[k_{w,sat}]$ est définie positive et symétrique.

La loi de Darcy n'est valide que si certaines hypothèses sont vérifiée (fluide incompressible, milieu saturé en eau, écoulement laminaire sans seuil et isotherme). Ces conditions sont habituellement vérifiées pour la majorité des sols saturés. Toutefois, la présence de macropores et de fractures (dessiccations, fissuration) peut favoriser les écoulements turbulents qui modifient la linéarité de la relation entre q et i.

2.2.2 Écoulements en milieu non saturé

Les milieux naturels sont souvent partiellement saturés, particulièrement au-dessus de la nappe phréatique. La conductivité hydraulique k_w [$L.T^{-1}$] d'un sol est alors fonction de son degré de saturation S_r, lui-même fonction de la pression d'eau (ou de la succion ψ) appliquée :

$$k_w = k_w(S_r) = k_w(\Psi) \tag{2.32}$$

L'équation de Richards généralise l'équation de Darcy à un milieu partiellement saturé et permet d'écrire de la même façon (Hillel, 1998) :

$$q_w = -k_w(\Psi).i \tag{2.33}$$

Soit encore dans un repère tridimensionnel cartésien (expression vectorielle) :

$$q_w = -k_w(\Psi).\nabla.h \tag{2.34}$$

Les équations (2.33) et (2.34) supposent que les lois de continuité et de conservation sont vérifiées.

Pour décrire l'écoulement de l'eau en régime transitoire dans un milieu partiellement saturé, on peut considérer un cube de sol de volume unitaire traversé par un flux hydraulique (figure 2.3). La différence entre ce qui entre et sort du système (cube) correspond à la variation de l'emmagasinement d'eau du sol (ΔV_w). Cette variation peut-être positive comme négative.

Si le sol est incompressible, le volume total et la porosité n (rapport du volume des vides sur le volume total) demeurent constants. Dans ce cas, la variation de la quantité d'eau dans le volume de sol ΔV_w peut être reliée directement à la teneur en eau volumique θ_w (= $n.S_r = V_w/V_T$).

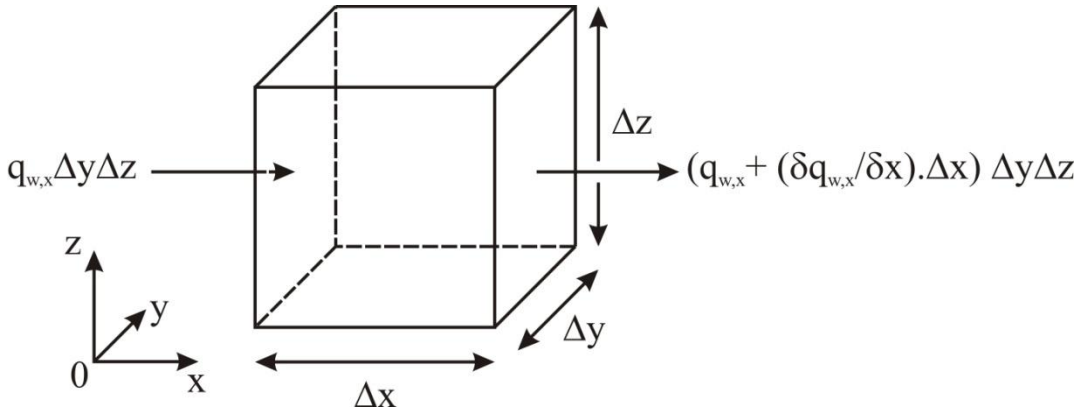


Figure 2.3: Illustration de la loi de continuité et de conservation de masse pour un volume élémentaire de sol parcouru par un flux unitaire q_w selon l'axe (Ox). Le gain d'humidité peut être positif, négatif, ou nul (adapté de Hillel, 1998)

L'équation de conservation de la masse s'écrit, pour un écoulement (Hillel, 1998) :

- à une dimension : $\frac{\partial \theta_w}{\partial t} = -\frac{\partial q_{w,x}}{\partial x}$ (2.35)
- à trois dimensions : $\frac{\partial \theta_w}{\partial t} = -\nabla . q_w$ (2.36)

En remplaçant la valeur du débit unitaire q_w par l'expression de l'équation (2.34) on obtient :

$$\frac{\partial \theta_w}{\partial t} = \nabla . (k_w(\Psi) . \nabla . h) \quad (2.37)$$

Plusieurs hypothèses sont sous-entendues dans l'équation (2.31) :

- les forces d'inertie sont négligeables par rapport aux forces de viscosité,
- toute l'eau est connectée lors de son déplacement,
- l'état du fluide et celui du milieu poreux ne sont pas modifié durant l'écoulement.

Ces conditions sont généralement vérifiées dans le cas de l'écoulement de l'eau en milieu poreux comme les sols (et les rejets miniers).

On peut encore écrire l'équation (2.37) sous la forme :

$$\frac{\partial \theta_w}{\partial t} = \nabla.(k_w(\Psi).\nabla.\Psi) + \frac{\partial k_w(\Psi)}{\partial z} \quad (2.38)$$

ou encore de façon développée, dans un repère cartésien (Richards, 1931; Hillel, 1998) :

$$\frac{\partial \theta_w}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}.\left(k_w(\Psi).\frac{\partial \Psi}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}.\left(k_w(\Psi).\frac{\partial \Psi}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial z}.\left(k_w(\Psi).\frac{\partial \Psi}{\partial z}\right) + \frac{\partial k_w(\Psi)}{\partial z} \quad (2.39)$$

Cette dernière équation serait valide pour tous les types de sols (homogènes ou hétérogènes, isotropes ou non).

2.2.3 Courbe de rétention d'eau

2.2.3.1 Définitions

La fonction qui décrit l'évolution de la teneur en eau volumique θ_w (ou du degré de saturation S_r) en fonction de la succion ψ est appelée courbe de rétention d'eau ou CRE (figure 2.4 ; Aubertin et al., 1998; Delleur, 1998).

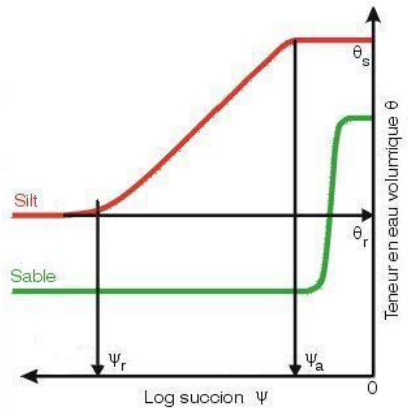


Figure 2.4: Courbes de rétention d'eau conceptuelles pour un silt et un sable. θ_s : teneur en eau à saturation [-] ; θ_r : teneur en eau résiduelle [-] ; ψ_a : pression d'entrée d'air (ou AEV) [L] ; ψ_r : pression d'entrée d'eau ou succion résiduelle [L] (tiré d'Aubertin et al., 1995)

Il existe diverses méthodes pour mesurer la teneur en eau d'un sol. Certaines méthodes sont directes (Gardner, 1958; Lal et Shukla, 2004), comme l'extraction de l'eau, le remplacement de l'eau par un autre liquide avec des propriétés (physiques, électriques) différentes ou l'utilisation de produits chimiques. L'inconvénient majeur des méthodes directes est leur caractère

perturbateur. D'autres méthodes sont indirectes (Lal et Shukla, 2004), incluant les mesures de la conductivité électrique (réflectométrie ou capacitance), de la diffraction ou de la dispersion de rayonnements gamma ou neutron, de la conductivité thermique ou d'autre propriétés chimiques ou acoustiques.

Pour déterminer la courbe de rétention d'eau d'un matériau, il existe plusieurs techniques, en laboratoire, mais aussi sur le terrain. La plupart des essais sont réalisés en drainage. On note en particulier la cellule Tempe (ou cellule Tempe modifiée ; Aubertin et al., 1998, 1999 ; ASTM D3152-72 ; ASTM D6836-02) avec ses variantes (MacKay et al., 1998; Shelp et Yanful, 2000), l'essai à la plaque de pression (ou « pressure plate ») (e.g. Ricard, 1994; Aubertin et al., 1995, 1998; Hillel, 1998 ; Albright et al., 2006a; Adu-Wusu et al., 2007; Benson et al., 2007; Saleh-Mbemba, 2010), et quelques autres méthodes in situ (US EPA, 1993a,b; Klute, 1986; Fredlund et Rahardjo, 1993; Bussière, 2007). Le tableau 2.2 synthétise les principales méthodes employées pour déterminer la courbe de rétention d'eau selon la succion maximale visée.

Tableau 2.2: Méthodes de détermination de la CRE selon la succion (adapté de Lal et Shukla (2004))

Domaine de succion (kPa)	Méthode
0-10	Boite à sable
0-20	Entonnoir de Haines
0-70	Plaque de céramique
10-50	Mélange sable-kaolinite
0-60	Table de succion (en verre ou plexiglas)
1-1000	Consolidation avec des pierres poreuses
10-1500	Cellules Tempe, extracteurs avec plaques poreuses
10-3000	Centrifugeuse
30-1500	Osmose (glycol ou autre)
100-2000	Psychromètre
$10\text{-}10^4$	Membrane de pression, pressure plate
$3000\text{-}10^6$	Equilibre des pressions de vapeur
$1000\text{-}10^7$	Papier filtre

2.2.3.2 Modèles descriptifs

La courbe de rétention d'eau (idéalisée) peut être décrite par diverses expressions mathématiques : exponentielle, loi de puissance, cosinus hyperbolique, polynomiale ou encore avec fonction d'erreur. La plupart introduisent dans leur formulation un paramètre sans dimension appelé teneur en eau réduite (ou équivalente) θ_e (parfois notée S_e ou Θ) (Brooks et Corey, 1964; van Genuchten, 1980) :

$$\theta_e = \frac{\theta_w - \theta_{w,r}}{\theta_{w,s} - \theta_{w,r}} \tag{2.40}$$

avec : θ_e : teneur en eau réduite (ou équivalente) [-]

$\theta_{w,r}$: teneur en eau résiduelle [-]

$\theta_{w,s}$: teneur en eau à saturation [-]

Parmi les modèles descriptifs les plus employés, on note les modèles de Brooks et Corey (1964), de Gardner (1958), de Fredlund et Xing (1994) et surtout le modèle de van Genuchten (1980) :

$$\theta_e = [1 + (\alpha_{vG}.\Psi)^{n_{vG}}]^{-m_{vG}} \tag{2.41}$$

avec : α_{vG} : paramètre d'ajustement du modèle relié à l'AEV [L^{-1}]

n_{vG} : paramètre d'ajustement du modèle relié à la courbure de la fonction [-]

m_{vG} : paramètre empirique d'ajustement du modèle [-]
(généralement, $m_{vG} = 1 - 1/n_{vG}$; van Genuchten et Nielsen, 1985)

Deux exemples de courbes de rétention d'eau obtenues avec le modèle de van Genuchten (1980) sont présentés à la figure 2.5.

De nombreux autres modèles ont été développées pour représenter la CRE, basés sur une approche purement empirique (Williams et al., 1983; Bump, 1987; Russo, 1988; Ross et al., 1991; Rossi et Nimo, 1994), ou en partie sur une modélisation conceptuelle de la distribution de la taille des pores (Kosugi, 1994, 1996, 1997, 1999; Assouline et al., 1998; Groenevelt et Grant, 2004).

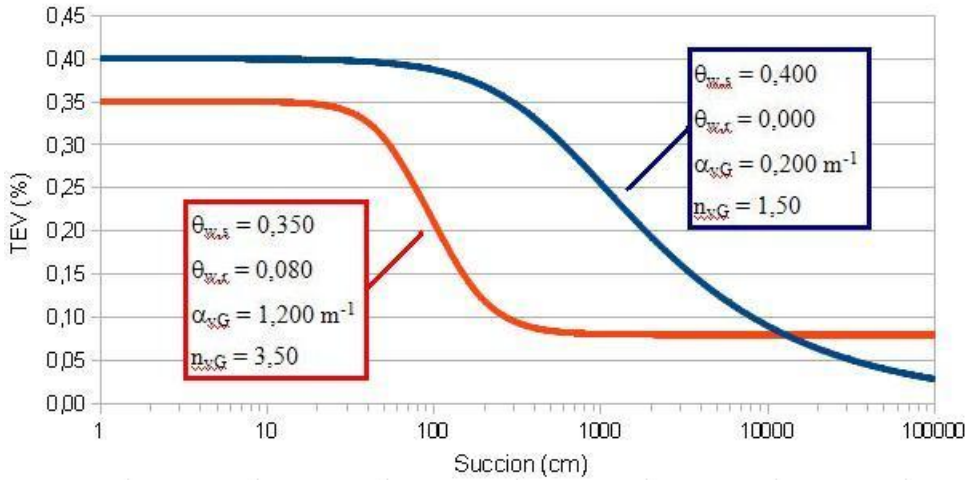


Figure 2.5: Courbes de rétention d'eau conceptuelles décrites par le modèle de van Genuchten (1980)

2.2.3.3 Modèles prédictifs

La mesure de l'évolution de la teneur en eau en fonction de la succion peut s'avérer fastidieuse. Il existe différentes approches prédictives (fonctions pédo-transferts), basées sur les propriétés géotechniques de base des sols (granulométrie, indice des vides) et éventuellement sur d'autres paramètres plus spécifiques (teneur en matière organique, minéralogie des argiles, capacité d'échange cationique). On distingue habituellement deux types de modèles prédictifs : les modèles basés sur des régressions à partir de données expérimentales et les modèles théoriques basés sur les propriétés physiques des matériaux. Les modèles prédictifs incluent ceux de Kovacs (1981); Arya et Paris (1981); Haverkamp et Parlange (1986); Tyler et Wheatcraft (1990); Haverkamp et al. (1999); Arya et al. (1999).

Le modèle de Kovacs modifié (MK ; Aubertin et al., 1998, 2003) sera principalement employé dans le cadre de ce projet. Il s'appuie sur le modèle proposé par Kovacs (1981). L'hypothèse de base est que la rétention d'eau est le résultat simultané des forces capillaires (saturation capillaire S_c) et d'adhésion (saturation par adhésion S_a ; Kovacs, 1981). Ce modèle permet d'exprimer la teneur en eau θ_w de la façon suivante (Mbonimpa et al., 2006) :

$$\theta_w = n.S_r = n(1-(1-S_c)\langle 1-S_a\rangle) \tag{2.42}$$

où $\langle \quad \rangle$ représentent les crochets de Macaulay, i.e. $\langle x\rangle = 0{,}5(x+|x|)$.

$$S_c = 1 - \left[\left(\frac{h_{co}}{\Psi}\right)^2 + 1\right]^m exp\left(-m\left(\frac{h_{co}}{\Psi}\right)^2\right) \quad (2.43)$$

$$S_a = a_c . C_\Psi \frac{(h_{co}/\Psi_n)^{2/3}}{e^{1/3}(\Psi/\Psi_n)^{1/6}} \quad (2.44)$$

avec : ψ_n : paramètre normatif [L] (pour h_{co} et ψ exprimés en cm, ψ_n = 1 cm)

a_c : coefficient d'adhésion [-]

C_ψ : paramètre d'ajustement [-]

m : paramètre fonction de la distribution des pores [-]

h_{co} : remontée capillaire équivalente [L]

Pour des matériaux granulaires, on peut écrire (Mbonimpa et al., 2006) :

$$h_{co} = \frac{0{,}75}{e.D_{10}.(1{,}17 log C_U + 1)} \quad (2.45)$$

$$\Psi_r = 0{,}86 . h_{co}^{1,2} \quad (2.46)$$

Pour des matériaux granulaires, une bonne approximation de m, pour des coefficients d'uniformité inférieurs à 20 environ, est (Aubertin et al., 2003a,b) :

$$m_G = \frac{1}{C_U} \quad (2.47)$$

Le paramètre a_c est le coefficient d'adhésion, sans unité, dont la valeur est une constante indépendante du matériau. Pour un sol granulaire (Aubertin et al., 2003a,b) :

$$a_{c,G} = 0{,}01 \quad (2.48)$$

Le paramètre C_ψ permet d'imposer une teneur en eau nulle lorsque la succion atteint une certaine limite imposée par les propriétés d'équilibres thermodynamiques (Fredlund et Xing, 1994). Il dépend principalement de la succion résiduelle ψ_r et s'écrit (Aubertin et al., 2003a,b):

$$C_\Psi = 1 - \frac{ln(1+\Psi/\Psi_r)}{ln(1+\Psi_0/\Psi_r)} \quad (2.49)$$

avec : ψ_0 : succion à l'état sec ($\psi_0 = 10^7$ cm en général) [L]

2.2.3.4 Effets d'hystérésis

Expérimentalement, on a pu observer un phénomène d'hystérésis sur la courbe de rétention d'eau, selon qu'on réalisait l'essai en drainage (S_r initial de 100%) ou en mouillage (sol initialement non saturé). Ceci peut s'expliquer par (Hillel, 1998; Delage et Cui, 2000; Maqsoud et al., 2002, 2006) :

- la non uniformité de la géométrie des pores et en particulier le fait que les pores les plus gros soient reliés entre eux par des pores plus petits (effet de bouteille d'encre ou de goulot) (figure 2.6a). La conséquence est que la pression d'entrée d'air en drainage sera plus élevée (en valeur absolue) que la pression d'entrée d'air en mouillage. Un phénomène similaire est observé lorsqu'un pore plus petit est connecté en parallèle à un pore plus grand (figure 2.6b).

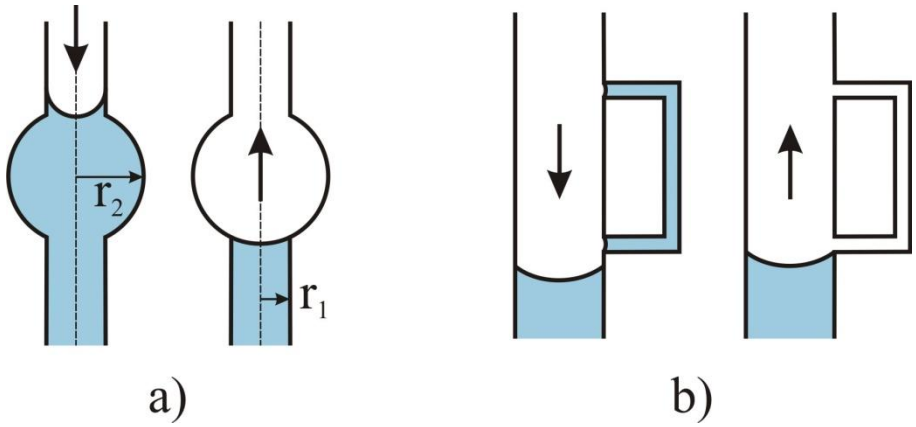


Figure 2.6: a) Schéma interprétatif de l'effet de bouteille d'encre ou de goulot. Lors du drainage, lorsque la succion dépasse (en valeur absolue) la pression d'entrée d'air du plus gros pore, le pore plus petit ne se draine pas, d'où une teneur en eau plus importante. En mouillage, à la même succion la teneur en eau volumique est plus faible puisque le plus gros pore n'est pas rempli d'eau (adapté de Hillel, 1998). b) Effet similaire pour un plus petit pore connecté en parallèle à un plus gros pore. Pour une même succion, la teneur en eau volumique en drainage sera plus importante qu'en mouillage (adapté de Delage et Cui, 2000).

- l'angle de contact plus grand lors du mouillage (β_2) que du drainage (β_1), en raison de l'effet de goutte et des impuretés et anfractuosités qu'il peut y avoir sur une surface. La pression limite de rétention capillaire est fonction du cosinus de l'angle de contact β. Plus l'angle est élevé, plus le cosinus est faible, et donc plus la pression d'entrée d'eau (la pression à laquelle l'eau pénètre dans le pore) est faible (en valeur absolue). En d'autres termes, la pression d'entrée d'eau en drainage est (en valeur absolue) plus grande qu'en mouillage (figure 2.7).

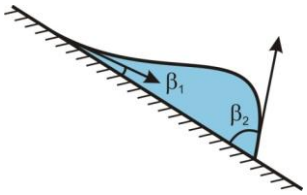


Figure 2.7: L'angle de contact entre solide et liquide en drainage (β_1) est plus grand que l'angle de contact en mouillage (β_2). Par conséquent, la pression d'entrée d'eau est (en valeur absolue) plus grande en drainage qu'en mouillage (adapté de Delage et Cui, 2000)

- la présence d'air emprisonné dans les pores ($\theta_{w,s}$(mouillage) < $\theta_{w,s}$(drainage)) qui produit $\theta_{w,satiation}$ < n.
- les variations de volume du sol (tassement).
- la condensation capillaire qui peut avoir un effet mouillant à forte succion.

La figure 2.8 présente une courbe de rétention d'eau sujette à un phénomène d'hystérésis.

Plusieurs modèles ont été développés pour décrire ou prédire l'hystérésis, sur des bases conceptuelles (Néel, 1942; Topp et Miller, 1966; Parlange, 1976) ou empiriques (Haverkamp et al., 2002; Gandola et al., 2004). Parmi les plus employés, On note les modèles de Mualem (1977) ou de Parlange (1976)(Si et Kachanoski, 2000; Haverkamp et al., 2002). L'expression de la CRE du modèle MK est identique, avec la définition de h_{co} (Maqsoud et al., 2006) :

$$h_{co,w} = \frac{0{,}75.cos\beta_w}{e.D_{10}.1{,}17.logC_U+1} \qquad (2.50)$$

avec : β_w : angle de contact entre solide et liquide en phase de mouillage [-]

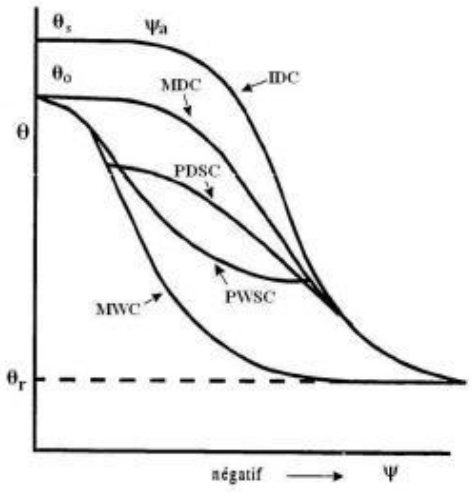


Figure 2.8: Courbes de rétention d'eau conceptuelles en drainage et en mouillage. IDC : courbe initiale en drainage ; MWC : courbe principale en mouillage ; MDC : courbe principale en drainage ; PDSC : courbe intermédiaire en drainage ; PWSC : courbe intermédiaire en mouillage ; θ_0 : teneur en eau maximale à satiation (aussi notée θ_{max} parfois) (tiré de Bussière et al., 1999)

2.2.4 Fonction de perméabilité

Dans un milieu poreux triphasique, où les vides sont remplis d'eau et d'air, les bulles de gaz forment un obstacle à l'écoulement du liquide. La conductivité hydraulique k_w d'un sol est donc fonction de sa teneur en eau θ_w ou de la succion appliquée ψ (figure 2.9).

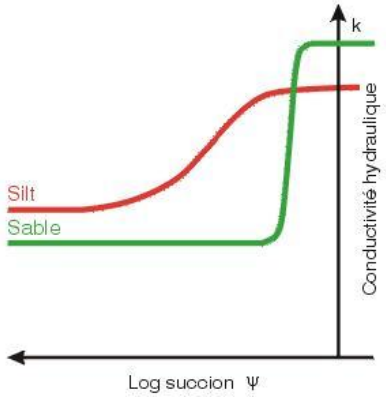


Figure 2.9: Fonctions de perméabilités conceptuelles d'un sable et d'un silt (tiré d'Aubertin et al., 1995)

2.2.4.1 Conductivité hydraulique saturée

La conductivité hydraulique saturée $k_{w,sat}$ peut-être mesurée au laboratoire par des essais dans des perméamètres à parois rigides ou souples. On peut également l'estimer au moyen de modèles : Hazen (1911); Taylor (1948); Navfac DM7 (1974), et plus particulièrement Kozeny-Carman (KC ; Kozeny, 1953; Carman, 1956; Chapuis et Aubertin, 2003) et Kozeny-Carman modifié (KCM ; Mbonimpa et al., 2002), qui seront employés tous deux dans la suite de l'étude.

Le modèle de Kozeny-Carman permet de déterminer la conductivité hydraulique saturée d'un sol fin ou grossier, plastique ou non. Il nécessite la détermination de la surface spécifique massique du matériau, S_m, qui peut être estimée, pour les sols granulaires, à partir de la fonction de distribution de la taille des pores (Kovacs, 1981) :

$$S_m = \frac{\alpha}{\rho_s . D_H} \tag{2.51}$$

avec : α : facteur de forme [-]

D_H : diamètre homogène ou diamètre des pores d'un sol homogène ayant la même surface spécifique que celui considéré [L]

Le diamètre D_H est estimé à partir de la courbe granulométrique (Chapuis et Légaré, 1992) :

$$D_H = \left(\sum \frac{P_{NoD} - P_{Nod}}{d}\right)^{-1} \tag{2.52}$$

avec : P_{NoD} : pourcentage massique des grains de diamètre inférieur au tamis D [-]

P_{Nod} : pourcentage massique des grains de diamètre inférieur au tamis d (D et d sont des tamis successifs) [-]

d : diamètre du tamis d [L]

Pour les fractions de diamètre inférieur au diamètre minimum des tamis (d_{min}), on calcule un diamètre équivalent $d_{min,eq}$ (Chapuis et Légaré, 1992) :

$$d_{min,eq}^2 = \frac{1}{d_{min}} \int_0^{d_{min}} y^2 dy = \frac{d_{min}^2}{3} \tag{2.53}$$

Une autre façon d'estimer le diamètre homogène a été proposée par Aubertin et al. (1998) :

$$D_H = D_{10} . [1 + 1{,}17 . log C_U] \tag{2.54}$$

avec : D_{10} : diamètre équivalent à 10% du passant sur la courbe granulométrique cumulée [L]

D_{60} : diamètre équivalent à 60% du passant sur la courbe granulométrique cumulée [L]

C_U : coefficient d'uniformité (D_{60} / D_{10}) [-]

On estime alors la conductivité hydraulique saturée par (Chapuis et Aubertin, 2003) :

$$k_{w,sat} = 10\text{^}\left(0{,}5 + log\left(\frac{e^3}{D_R^2 S_m^2 (1+e)}\right)\right) \quad (2.55)$$

Cette méthode donne en général des résultats dans un intervalle d'un facteur de 3 par rapport à la mesure.

Une autre méthode d'estimation de la conductivité hydraulique saturée est le modèle Kozeny-Carman modifié (KCM) (Mbonimpa et al., 2002) ; pour les sols granulaires, il s'écrit (Mbonimpa et al., 2002) :

$$k_{w,sat,G} = C_e C_d \frac{\gamma_w}{\mu_w} \frac{e^{3+x}}{1+e} C_U^{1/3} D_{10}^2 \quad (2.56)$$

avec : C_e, x : paramètres fonctions de la tortuosité des pores [-]

γ_w : poids volumique de l'eau (9,8 kN/m^3 à 20°C)

μ_w : viscosité de l'eau (10^{-3} Pa.s à 20°C)

C_d : paramètre fonction du diamètre effectif [-] ($C_d = 1/\alpha^2$)

C_e et x peuvent être définis en fonction de la porosité (Marshall et al., 1996) et du type de sol, mais on les prend habituellement comme des constantes. La valeur x = 2 est souvent employée. La constante C_eC_d est généralement prise égale à 0,1 (Mbonimpa et al., 2002), mais peut également varier en fonction de la forme des grains.

2.2.4.2 Conductivité hydraulique non saturée

La mesure de la conductivité hydraulique non saturée est pour sa part beaucoup plus complexe. Les quelques méthodes expérimentales existantes sont fastidieuses, de telle sorte que l'utilisation de modèles prédictifs devient presque une nécessité.

Pour prédire la fonction de perméabilité d'un sol, on définit en général une fonction k_r, appelée conductivité hydraulique relative (sans unité) :

$$k_w = k_{w,r}.k_{w,sat} \tag{2.57}$$

avec : $k_{w,r}$: conductivité hydraulique relative [-]

On considère souvent que la conductivité hydraulique $k_{w,r}$ peut être obtenue à partir de la courbe de rétention d'eau (Childs et Collis-George, 1950; Burdine, 1953; Mualem, 1976a,b; Fredlund et Xing, 1994; Mbonimpa et al., 2006). Il existe plusieurs modèles prédictifs qui permettent d'estimer cette fonction de perméabilité, incluant : Gardner (1958), Rijtema (1965) ou d'autres encore (Schuh et Cline, 1990; Vereecken et al., 1989, 1992, 1995; Elsenbeer, 2001; Wagner et al., 2001; Wösten et al., 2001; Borgesen et al., 2008).

Divers modèles macroscopiques (Averjanov, 1950; Yuster, 1951; Irmay, 1954; Corey, 1957) et fractals (Toledo et al., 1990; Rieu et Sposito, 1991a,b; Shepard, 1993; Crawford, 1994; Fuentes et al., 1996; Gimenez et al., 1997a,b), ont été développés, mais les plus employés sont les modèles statistiques. Parmi eux, mentionnons ceux de Gardner (1958), Brooks et Corey (1964), Campbell (1974) et Poulsen et al. (1998). Le plus utilisé est celui de Mualem (1976a,b) et van Genuchten (1980), qui peut s'écrire :

$$k_w(\theta_e) = k_{w,sat}.\theta_e^{\lambda}.\left[1-\left(1-{\theta_e}^{1/m_{vG}}\right)^{m_{vG}}\right]^2 \tag{2.58}$$

où θ_e peut être évalué selon les courbes de rétention d'eau. La paramétrisation des modèles se fait souvent par modèles neuronaux (Schaap et al., 1998; Schaap et van Genuchten, 2005; Zhuang et al., 2001).

De nombreux autres modèles statistiques ont aussi été développés (e.g. Green et Corey, 1971; Mualem, 1976a,b; van Genuchten et Nielsen, 1985; Zaradny, 1993; Fredlund et al., 1994; Leong et Rahardjo, 1997a,b).

Les fonctions de perméabilité sont également sujettes à des phénomènes d'hystérésis, mais peu de travaux ont été réalisés sur le sujet. Mualem (1976b) a proposé des ajustements à son modèle pour que l'hystérésis de la fonction de rétention d'eau soit retranscrite dans la fonction de perméabilité. En pratique, la méthode généralement employée consiste à estimer les deux fonctions en mouillage et en drainage à partir des courbes de rétention d'eau respectives.

2.2.4.3 Altération de surface et autres facteurs d'influence

La conductivité hydraulique d'un sol a tendance à changer au cours du temps. Ainsi, un sol exposé aux conditions climatiques a tendance à se détériorer ; les cycles de mouillage-séchage et de gel-dégel, l'érosion, le ruissellement, les réactions chimiques, l'intrusion d'animaux fouisseurs, le développement de végétaux et d'autres phénomènes, se traduisent par l'ouverture de fissures et de fentes. L'épaisseur de la zone altérée varie avec le temps, le sol et l'environnement.

La présence de passages préférentiels se traduit généralement par :

- une réponse aux précipitations plus rapide (Albright et al., 2006a),
- une réponse aux précipitations sous forme de paliers (Adu-Wusu et Yanful, 2007),
- l'absence de corrélation forte entre débits de drainage et teneurs en eau (Albright et al., 2006b).

L'utilisation de traceurs est généralement un bon outil pour caractériser les écoulements préférentiels (Alfnes et al., 2004; Köhne et al., 2006).

Pour tenir compte de la détérioration des propriétés des sols en surface, il est possible dans les modèles d'augmenter artificiellement, sur une mince épaisseur, la conductivité hydraulique de deux ordres de grandeur (Adu-Wusu et Yanful, 2007; Adu-Wusu et al., 2007; Kelln et al., 2007). Une autre solution consiste à intégrer des tubes dans le modèle. On considère alors une matrice de sol dans laquelle l'écoulement est régi par l'équation de Richards, et un ou plusieurs tubes dans lesquels l'eau s'écoule suivant les règles de l'hydraulique classique (loi de Manning notamment) (Tsutsumi et al., 2005). Enfin, une autre méthode proposée par certains auteurs est de développer des modèles à double porosité (Simunek et al., 2003) qui permettent de prendre en compte deux régimes d'écoulement.

2.3 Mouvement des gaz en milieu poreux

2.3.1 Mouvements des gaz

On considère ici le milieu poreux comme un système triphasique : d'un côté la matrice granulaire solide, de l'autre les vides, remplis de gaz et de liquide. Dans le cadre de cette étude, les

matériaux sont réactifs, et, par conséquent, consomment une fraction des composants de l'air. Par mouvement des gaz, on entend donc mouvement de l'air, mais aussi et surtout flux d'oxygène.

L'air pénètre dans le sol :

- par l'action physique de gradients de pression totale. On parle alors d'un mouvement d'advection. La différence de pression à l'origine de ce mouvement peut être produite par les variations barométriques et thermiques en surface, l'effet du vent, les battements de nappe, la compression de l'air dans le sol au passage de machinerie sur le site.
- sous l'effet d'un gradient de concentration (ou de pression partielle) associé à la diffusion moléculaire
- sous forme dissoute avec l'eau d'infiltration.

La question de la prépondérance d'un phénomène sur l'autre a été largement discutée (Hillel, 1998), et il ressort principalement qu'elle est fonction avant tout du type de sol et de ses caractéristiques (comme sa porosité ou sa teneur en eau). Ainsi, dans les haldes à stériles, l'advection s'avère souvent dominante sur les phénomènes de diffusion (Bennet et al., 1989; Morin et al., 1991; Lefebvre, 1994; Mbonimpa et al., 2003). Dans les résidus miniers et leurs couvertures par contre, le phénomène de diffusion serait prédominant (Collin, 1987; Collin et Rasmuson, 1988, 1990; Nicholson et al., 1989; Yanful, 1993; Aubertin et al., 1995; Elberling et Nicholson, 1996; Aachib, 1997; Mbonimpa et Aubertin, 2002; Aachib et al., 2004; Kim et Benson, 2004). Dans les cas où des fissures et autres fentes seraient nombreuses, l'advection pourrait ne plus être négligeable (Lundgren, 2001).

2.3.2 Advection

Le mouvement par advection de l'air dans le sol peut s'écrire (Delleur, 1998) :

$$q_a^A = -\frac{k_a(\Psi)}{\mu_a}\nabla P_a \qquad (2.59)$$

avec : q_a^A : vitesse ou flux unitaire de l'air dans le sol [$L.T^{-1}$]

k_a : conductivité pneumatique [$L.T^{-1}$]

P_a : pression d'air [$M.L^{-1}.T^{-2}$]

μ_a : viscosité dynamique de l'air [$M.T^{-1}.L^{-1}$]

La conductivité pneumatique $k_a(\psi)$ est la capacité d'un sol à laisser passer les gaz. Sa valeur est fonction de la porosité et de la teneur en eau du sol et donc de la succion ψ qui lui est appliquée. On définit θ_a, la teneur en eau volumique, i.e. le rapport du volume d'air sur le volume total de l'échantillon :

$$\theta_a = n.S_g = n(1 - S_r) \tag{2.60}$$

avec : S_g : degré de saturation en gaz [-]

Le degré de saturation S_r du sol influe sur sa conductivité pneumatique : au-dessus de 80 ou 85% (Corey, 1957; Collin et Rasmuson, 1988; Mbonimpa et Aubertin., 2002, Mbonimpa et al., 2003), les pores remplis d'air ne sont plus interconnectés et le gaz se retrouve isolé localement, empêchant le passage de l'air par advection (k_a ~0 m/s).

On intègre quelquefois aux phénomènes d'advection le transport de l'oxygène dissout dans l'eau d'infiltration. Le flux unitaire d'oxygène dissout dans l'eau s'écrit (Mbonimpa et Aubertin, 2002) :

$$q_{O_2}^{Ad} = q_w.[O_2]_{eau} \tag{2.61}$$

avec : $q_{O_2}^{Ad}$: flux unitaire d'oxygène dissout dans l'eau d'infiltration [$L.T^{-1}$]

q_w : flux hydraulique unitaire ou de percolation [$L.T^{-1}$]

$[O_2]_{eau}$: concentration d'oxygène dissout dans l'eau [$mol.L^{-3}$]

La concentration d'oxygène dans l'eau $[O_2]_{eau}$ est fonction de la pression et de la température. A l'équilibre, la loi de Henry permet d'écrire (Stumm et Morgan, 1996) :

$$[O_2]_{eau} = H.[O_2]_{air} \tag{2.62}$$

avec : H : constante de Henry [-]

$[O_2]_{air}$: concentration d'oxygène dissout dans l'air [$mol.L^{-3}$]

La valeur de la constante de Henry est fonction de la température et de la pression, mais en général, à 20°C, sous conditions normales, elle est prise égale à 0,03 (Appelo et Postma, 1994; Renault et Stengel, 1994; Hillel, 1998; Mihelcic, 1998; Mbonimpa et Aubertin, 2002; Aachib et

al., 2004). De nombreuses expressions de H existent (rapport de pressions partielles, de volumes ; Mbonimpa et Aubertin, 2002).

2.3.3 Diffusion

Dans les parcs à résidus miniers, l'apport d'oxygène aux résidus est principalement régi par les mécanismes de diffusion. La diffusion est un phénomène de transport moléculaire, au travers de l'eau ou de l'air, se développant sous l'effet d'un gradient de concentration.

Le flux unitaire diffusif d'oxygène est décrit par la première loi de Fick (Bear, 1972; Crank, 1975; Hillel, 1998; Aachib et al., 2004) :

$$q_{O_2}^D(z,t) = -D_e \frac{\partial C_{O_2}(z,t)}{\partial z} \tag{2.63}$$

avec : $q_{O_2}^D$: vitesse ou flux unitaire diffusif d'oxygène [$M.L^{-2}.T^{-1}$]

D_e : coefficient de diffusion effectif [$L^2.T^{-1}$]

C_{O2} : concentration en oxygène [$mol.L^{-3}$] ou [$M.L^{-3}$]

La seconde loi de Fick permet de déterminer en un point donné d'un milieu non réactif, la concentration en oxygène due aux mouvements de diffusion. Originellement, l'équation à une dimension était la suivante (Yanful, 1993; Aubertin et al., 1995) :

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\theta_a . C_{O_2}\right) = \frac{\partial}{\partial z}\left(D_e . \frac{\partial C_{O_2}}{\partial z}\right) \tag{2.64}$$

L'emploi de la teneur en air volumique a pour conséquence de considérer la diffusion uniquement dans les pores remplis d'air. Pour prendre en compte la diffusion de l'oxygène à la fois dans l'air et dans l'eau, on définit une teneur en air volumique équivalente θ_{eq} (sans unité ; Aubertin et al., 1999, 2000) :

$$\theta_{eq} = \theta_a + H . \theta_w \tag{2.65}$$

Ce terme remplace θ_a dans l'équation 2.64.

Par ailleurs, les résidus miniers étudiés sont réactifs. La concentration d'oxygène C_{O2} est donc également fonction du taux de consommation par les rejets. La réaction d'oxydation étant du premier ordre, on peut écrire (Elberling et Nicholson, 1994; Yanful et al., 1999b; Mbonimpa et al., 2003) :

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\theta_{eq}.C_{O_2}\right) = \frac{\partial}{\partial z}\left(D_e.\frac{\partial C_{O_2}}{\partial z}\right) - K_r.C_{O_2} \quad (2.66)$$

On définit également des coefficients réduits (ou apparents)(Aubertin et al., 2000) :

$$D^* = \frac{D_e}{\theta_{eq}} \quad (2.67)$$

$$K_r^* = \frac{K_r}{\theta_{eq}} \quad (2.68)$$

avec : D^* : coefficient de diffusion apparent [$L^2.T^{-1}$]

K_r^* : coefficient du taux de réaction apparent [T^{-1}]

L'équation (2.66) devient alors (Mbonimpa et al., 2003) :

$$\frac{\partial C_{O_2}}{\partial t} = D^*.\frac{\partial^2 C_{O_2}}{\partial z^2} - K_r^*.C_{O_2} \quad (2.69)$$

Cette dernière équation (2.69) est très fortement non linéaire et une résolution numérique est habituellement nécessaire. Des solutions analytiques existent, sous forme de séries infinies et d'intégrales, pour des conditions aux frontières et initiales simples (Mbonimpa et al., 2003).

2.3.3.1 Evaluation du coefficient D_e

Le coefficient de diffusion effectif D_e est fonction de la température, des propriétés du milieu et du degré de saturation (Bird et al., 1960; Sallam et al., 1984; Renault et Sierra, 1994; Lefèbvre et al., 2001a; Meslin et al., 2010). On définit également des coefficients de diffusion libres, dans des milieux sans obstacles :

- D_w^0 : coefficient de diffusion libre de l'oxygène dans l'eau [$L^2.T^{-1}$]
- D_a^0 : coefficient de diffusion libre de l'oxygène dans l'air [$L^2.T^{-1}$]

Des valeurs types de ces coefficients sont rapportées dans le tableau 2.3.

On sait aussi que D_e varie de façon inverse au degré de saturation, car plus les pores sont remplis d'eau, plus la diffusion d'oxygène sera lente (Collin et Rasmuson, 1988; Gosselin et al., 2007). L'effet du degré de saturation est double :

- la diffusion dans l'air est plus rapide que dans l'eau (jusqu'à 10 000 fois supérieure ; tableau 2.3). Dans un milieu partiellement saturé, la diffusion au travers des pores remplis d'air est donc plus rapide que celle au travers de ceux remplis d'eau.
- l'augmentation du degré de saturation accroit la tortuosité des pores remplis d'air, diminuant encore la vitesse de diffusion.

Tableau 2.3: Différentes valeurs des coefficients de diffusion libres dans l'air (D_a^0) et dans l'eau (D_w^0).

Coefficient	cm^2/s	T (°C)	P (atm)	Sources
D_w^0	$2{,}2.10^{-5}$	20	1	Fredlund et Rahardjo, 1993; Elberling et al., 1993 ; Renault et Sierra, 1994
	$2{,}5.10^{-5}$	20	1	Scharer et al., 1993
	$1{,}9.10^{-5}$	25	1	Hillel, 1998
	$2{,}13.10^{-5}$	9	1	Lefebvre et al., 2001a
D_a^0	$1{,}8.10^{-1}$	20	1	Scharer et al., 1993; Fredlund et Rahardjo, 1993; Elberling et al., 1993
	$2{,}05.10^{-1}$	20	1	Kawamoto et al., 2006
	$1{,}98.10^{-1}$	25	1	Hillel, 1998

Le coefficient de diffusion effectif D_e varie le long d'un profil de sol. En régime stationnaire, la moyenne harmonique des coefficients de diffusion effectifs d'un milieu stratifié peut s'écrire (Scharer et al., 1993; Elberling et al., 1993; Aubertin et al., 2000; Mbonimpa et al., 2003) :

$$D_e = \frac{z}{\sum \frac{z_i}{D_{e,i}}} \tag{2.70}$$

Le coefficient de diffusion effectif D_e peut être mesuré sur le terrain (Jellick et Schnabel, 1986; Rolston et al., 1991; Hers et al., 2000; Mbonimpa et Aubertin, 2002; Mbonimpa et al., 2002; Bussière et al., 2002a; Werner et al., 2004) ou en laboratoire (Sallam et al., 1984; Bruckler et al., 1989; Glauz et Rolston, 1989; Shackelford, 1991; Yanful, 1993; Aubertin et al., 1995; Batterman et al., 1996).

De façon générale, la méthode consiste à utiliser une cellule de diffusion à deux réservoirs (voir aussi section 3.2.7). L'un et l'autre sont remplis de gaz à la même pression totale mais à des concentrations en oxygène différentes. Le suivi des concentrations permet de déterminer la vitesse de transport de l'oxygène à travers le sol, et d'en déduire D_e. Cette méthode a été largement employée et validée (Aubertin et al., 1995, 1999; Mbonimpa et al., 2003; Aachib et al., 2004; Gosselin, 2007). Une autre approche consiste à n'employer qu'un seul réservoir au-dessus d'un échantillon de sol (McKay et al., 1998; Shelp et Yanful, 2000).

Comme ces essais sont relativement fastidieux, il est également possible d'estimer le coefficient de diffusion effectif de l'oxygène.

Il existe de nombreux modèles unimodaux, qui prennent en compte la diffusion de l'oxygène dans les pores remplis d'air (e.g. Buckingham, 1904; Penman, 1940; van Bavel, 1952; Flegg, 1953; Rust et al., 1957; Dye et Dallavalle, 1958; Marshall, 1959; Millington, 1959; Wesseling, 1962; Campbell, 1985). Certains y ajoutent un terme de tortuosité, lequel prend indirectement en compte l'effet des pores remplis d'eau (Marshall, 1959; Millington et Quirk; 1960, 1961; Pruess, 1991; Lefèbvre et al., 2001a), notamment en reliant son estimation à la courbe de rétention d'eau (Olsen et al., 1996; Moldrup et al., 2000a,b, 2001; Weerts et al., 2000; Kawamoto et al., 2006).

Une meilleure approche consiste à tenir compte de la diffusion à la fois dans l'air et dans l'eau. On a (Troeh et al., 1982; Collin et Rasmuson, 1988) :

$$D_e = D_a + H.D_w \tag{2.71}$$

avec : D_a : coefficient de diffusion effectif de l'oxygène dans l'air [$L^2.T^{-1}$]

D_w : coefficient de diffusion effectif de l'oxygène dans l'eau [$L^2.T^{-1}$]

D_a et D_w peuvent être estimés par (Collin, 1987; Aubertin et al., 1999, 2000) :

$$D_a = \theta_a.D_a^0.T_a \tag{2.72}$$

$$D_w = \theta_w.D_w^0.T_w \tag{2.73}$$

T_a et T_w sont les coefficients de tortuosité pour l'air et l'eau (Collin, 1987; Collin et Rasmuson, 1988) :

$$T_a = \frac{\theta_a^{2x+1}}{n^2} \quad (2.74)$$

$$T_w = \frac{\theta_w^{2y+1}}{n^2} \quad (2.75)$$

Les paramètres x et y sont obtenus en résolvant de façon itérative le système d'équations suivant :

$$\theta_a^{2x} + (1-\theta_a)^x = 1 \quad (2.76)$$

$$\theta_w^{2y} + (1-\theta_w)^y = 1 \quad (2.77)$$

Généralement x est égal à y et ils varient entre 0,6 et 0,75 (Aubertin et al., 2000).

D'autres modèles existent pour calculer les coefficients de tortuosité (Elberling et al., 1993; Scharer et al., 1993; Elberling et al., 1994; Elberling et Nicholson, 1996; Aubertin et al., 2000). Ces différentes expressions donnent des résultats relativement proches les uns des autres mais ont souvent tendance à surestimer les valeurs de D_e, en particulier pour des porosités supérieures à 0,4 (Aachib et al., 2004). On emploiera dans ce projet le modèle suivant (Aubertin et al., 1999, 2000; Aachib et al., 2002, 2004) :

$$D_e = \frac{1}{n^2}\left(D_a^0 \theta_a^{p_a} + H D_w^0 \theta_w^{p_w}\right) \quad (2.78)$$

avec : p_a : paramètre fonction de la teneur en air volumique [-]

p_w : paramètre fonction de la teneur en eau volumique [-]

Des fonctions explicites permettent de déterminer ces coefficients (Aachib et al, 2004) :

$$p_a = 1{,}201.\theta_a^3 - 1{,}515.\theta_a^2 + 0{,}987.\theta_a + 3{,}119 \quad (2.79)$$

$$p_w = 1{,}201.\theta_w^3 - 1{,}515.\theta_w^2 + 0{,}987.\theta_w + 3{,}119 \quad (2.80)$$

Les expressions (2.79) et (2.80) sont valides pour des porosités n comprises entre 0,1 et 0,8 et des degrés de saturation S_r supérieurs à 10% (Aachib et al., 2004). On peut simplifier l'équation 2.78 en adoptant :

- $p_a = p_w = 3{,}4$(Aachib et al., 2004)
- $p_a = p_w = 3{,}5$ (Aachib et al., 2002; Mbonimpa et Aubertin, 2002; Sjoberg et al., 2003)

2.4 Bilan hydrique

2.4.1 Bilan hydrique

Pour estimer les fluctuations des teneurs en eau d'un sol en conditions naturelles, on dresse généralement un bilan hydrique du milieu, à partir de l'estimation des contributions de chaque phénomène naturel.

Au nombre des entrées d'eau, on trouve essentiellement les précipitations (P), les remontées capillaires depuis la nappe souterraine (RC). Les pertes sont dues au drainage vers la nappe souterraine (D), à l'évaporation (E), à la transpiration des plantes, si elles sont présentes sur le site (T), et au ruissellement (R). Le bilan hydrique affecte la teneur en eau du milieu ($\Delta\theta_w$). Il est possible également de prendre en compte l'assimilation d'une partie de l'eau par la biomasse des plantes (ΔB).

Le bilan général peut donc s'écrire (e.g. Hillel, 1998) :

$$\Delta\theta_w + \Delta B = P + RC - (D + E + T + R) \tag{2.81}$$

On définit généralement la zone active comme l'épaisseur de sol affectée par les fluctuations saisonnières de θ_w (Blight, 1997; Nelson et al., 2001). Sous cette zone, la teneur en eau du sol (et la succion) seraient indépendante du temps et régies principalement par la nature du sol, la profondeur de la nappe ou encore le taux de recharge net (i.e. la fraction d'infiltration qui traverse la zone active) (Lu et Likos, 2004). La zone active est également fonction de ces paramètres, mais dépend beaucoup des variations de températures, des taux d'évaporation ou d'infiltration, de la présence de végétation, des conditions atmosphériques (vents, humidité relative) (Lu et Likos, 2004). Son épaisseur est une caractéristique importante pour déterminer la zone qui risque de se désaturer ou de s'altérer (Nelson et al., 2001).

Il n'existe pas de méthode simple et universelle pour déterminer l'épaisseur de la zone active (Blight, 1997).

Par la suite, certaines composantes du bilan hydrique décrit plus haut seront discutées.

2.4.2 Infiltration

L'infiltration est le mécanisme principal d'entrée de l'eau dans le sol. Elle correspond dans l'équation (2.81) à la différence entre les précipitations (P) et le ruissèlement (R), l'évaporation (E) et la transpiration (T) (I = P – R – E - T). On définit les paramètres:

- q_p : intensité des précipitations [$L.T^{-1}$] ;
- Q_p : précipitations cumulées [L] ;
- q_i : taux ou flux d'infiltration (par unité de surface) [$L.T^{-1}$] ;
- Q_i : capacité d'infiltration cumulée, soit le volume d'eau maximal qu'un sol peut accepter sur une période donnée (par unité de surface) [L].

La valeur de q_i varie dans le temps et avec l'évolution de la teneur en eau du sol. Lorsque un sol devient complètement saturé, q_i atteint une valeur critique $q_{i,c}$ égale à la conductivité hydraulique saturée ($q_{i,c} = k_{w,sat}$)(Delleur, 1999). Tant que q_p est inférieur à q_i, l'eau s'infiltre dans le sol. Quand q_p dépasse q_i, l'eau commence à s'accumuler à la surface du sol. Dans le cas d'une surface inclinée, l'excédent d'eau peut être dévié (ruissellement).

Les relations décrivant l'infiltration sont des équations aux dérivées partielles fortement non linéaires. Plusieurs solutions analytiques ont été développées pour des cas très simplifiés :

- solution de Green et Ampt (1911) ;
- solution de Philip (1957) ;
- approches de Swartzendruber (1987).

De nombreuses autres approches existent pour développer une solution analytique à l'équation générale d'infiltration (Parlange et al., 1982, 1985; Haverkamp et al., 1988, 1990). On note ainsi l'existence de solutions empiriques, basées sur des formulations du temps hyperboliques (Kostiakov, 1932), exponentielles (Horton, 1940) ou de puissance (Holtan, 1961). De nouvelles méthodes, basées sur des approches mixtes (analytiques et numériques) sont aujourd'hui préférées aux solutions analytiques simplifiées (Fala, 2008).

2.4.3 Evaporation

L'évaporation (E) [$L.T^{-1}$] est un mécanisme de transfert de l'eau du sol vers l'atmosphère. On distingue généralement l'évaporation de la transpiration (liée au couvert végétal). L'évaporation peut se produire à partir de la surface du sol ou de la surface libre de l'eau et est fonction de (Cui et Zornberg, 2008) :

- la chaleur latente d'évaporation,
- la température de l'air,
- l'humidité relative de l'air,
- radiations nettes à la surface du sol,
- la vitesse et de la direction des vents,
- la salinité de l'eau,
- la capacité de rétention d'eau du sol,
- la couleur du sol.

Il s'agit d'un phénomène difficile à mesurer et à modéliser (Cui et Zornberg, 2008). Il ne doit cependant pas être négligé dans la plupart des cas (Morris et Stormont, 2000), d'autant que les volumes concernés peuvent dépasser ceux des précipitations sous certains climats (Blight, 1997; Cui et Zornberg, 2008). Il existe plusieurs approches pour tenter d'en estimer l'importance ; certaines se basent sur les propriétés du sol, d'autres sur les bilans hydriques, les conditions atmosphériques et les bilans énergétiques à l'origine du phénomène.

La méthode la plus souvent employée consiste à réaliser un bilan énergétique sur le système. De tels modèles sont nombreux et leur complexité et précision varient. Nommons par exemple les méthodes de Penman (1948), Priestley-Taylor (1972), Makkink (1957), Turc (1961), Mahrt et Ek (1984), ou encore Penman modifiée par Wilson (1990 ; voir aussi Wilson et al., 1994). Cette dernière est notamment employée dans le logiciel Vadose/W. Elle s'écrit (Wilson et al., 1994) :

$$E = \frac{\Gamma R_n + \nu E_a}{\Gamma + A\nu} \tag{2.82}$$

avec : E : évaporation (flux) [$m.s^{-1}$]

Γ : pente de la courbe de la pression de vapeur saturante en fonction de la température moyenne de l'air ($kPa.°C^{-1}$)

R_n : bilan énergétique de surface ou énergie radiante nette [$W.m^{-2}$] (parfois noté Q)

ν : constante psychrométrique [$kPa.°C^{-1}$]

E_a : flux effectif d'énergie provenant du vent [$m.s^{-1}$]

A : inverse de l'humidité relative à la surface du sol [-]

La constante psychrométrique est définie par (Allen et al., 1998) :

$$\nu = \frac{C_p.P}{\varepsilon.L_e} = 6{,}65.10^{-4}.P_a \qquad (2.83)$$

avec : C_p : chaleur spécifique (1,013 $kJ.kg^{-1}.°C^{-1}$ pour des conditions normales pour l'air sec)

P_a : pression atmosphérique [kPa]

ε : rapport des poids moléculaires de la vapeur d'eau et de l'air sec (0,622) [-]

L_e : chaleur latente de vaporisation (2,45 $MJ.kg^{-1}$)

Une valeur généralement employée (conditions normales) est 0,054 kPa/°C (Allen et al., 1998).

Le bilan énergétique de surface R_n, qui peut être calculé ou mesuré (Blight, 2002), caractérise l'influence combinée des radiations solaires sur le réchauffement de la couche de sol sub-surface, et de la couche d'air au-dessus du sol, ainsi que sa contribution au flux de chaleur latente d'évaporation. On peut écrire (Wilson et al., 1994; Blight, 2002) :

$$R_n = G + H + L'_e \qquad (2.84)$$

avec : R_n : bilan énergétique de surface ($W.m^{-2}$)

G : flux de chaleur du sol (fine couche sous la surface) ($W.m^{-2}$)

H : flux de chaleur sensible (couche d'air au-dessus du sol) ($W.m^{-2}$)

L'_e : flux de chaleur latente d'évaporation ($W.m^{-2}$)

G et H sont en général petits par rapport à L_e (Blight, 2002) et ne constituent pas le mécanisme principal de l'évaporation.

L'effet du vent sur l'évaporation (E_a) peut être estimé, à partir de sa vitesse, en flux d'évaporation en mm/j, par la formule (Allen et al., 1998) :

$$E_a = 0{,}35.(\alpha + 0{,}15.U_a).P_v.(B - A) \quad (2.85)$$

avec : E_a : évaporation due à l'effet du vent (mm/j)

U_a : vitesse du vent (km/h)

P_v : pression de vapeur au-dessus de la surface d'évaporation (kPa)

B : inverse de l'humidité relative de l'air [-]

α : paramètre fonction de la surface du sol (km/h)

Dans Vadose/W, il faut spécifier les températures (minimales et maximales), l'humidité relative (minimale et maximale), la vitesse du vent et la latitude ; les autres paramètres sont estimés automatiquement par le code.

D'autres approches existent pour estimer le taux d'évaporation dans un sol, comme par exemple la méthode de Hargreaves (Hargreaves et Samani, 1985) ou la méthode FAO24RD (Jensen, 1990).

2.5 Méthodes de prévention et contrôle du DMA

2.5.1 Généralités

Les méthodes de restauration généralement employées pour prévenir la génération du drainage minier acide (DMA) ont pour but de limiter les interactions entre l'eau, l'oxygène et les sulfures eux-mêmes (SRK, 1989; Aubertin et al., 2002). En isolant l'une ou l'autre de ces composantes, on peut empêcher la formation d'eaux acides. Une autre approche consiste à contrôler les paramètres pouvant influer sur la réaction, comme la présence de bactéries ou le pouvoir de neutralisation des autres minéraux. Le tableau 2.4 présente une classification générale des différentes techniques employées.

Le choix d'une méthode de prévention ou de restauration doit se faire selon une approche rigoureuse, alliant analyses de laboratoire, études de terrain et modélisations à plus ou moins long terme (Rykaart et al., 2006). Chaque site est un cas particulier et il n'existe pas de règles ou de méthodologies universelles (Khire et al., 2000; Aubertin et al., 2002; Scanlon et al., 2005, 2006; Gee et al., 2006). Quelques approches particulières sont décrites dans ce qui suit.

Tableau 2.4: Principales méthodes de prévention de génération de drainage minier acide, classées par approches (adapté d'Aubertin et al., 2002)

Exclusion de l'eau	Exclusion d'O_2	Conditionnement	Méthodes indirectes
Membranes étanches	Recouvrement en eau	Séparation des sulfures	Supp. de l'action des bactéries
Scellants, enduits	Recouvrement multicouche	Enrobage, traitements de surface	Neutralisation
Sols imperméables	Consommation d'O_2		Contrôle de T°
Mélanges (bentonite, ciments)	Couvertures étanches		

2.5.2 Exclusion de l'oxygène

Recouvrement en eau

La méthode du recouvrement en eau consiste à maintenir au sommet des rejets une épaisseur d'eau afin de limiter le passage de l'oxygène. Les méthodes de construction des couvertures hydriques sont variées (Aubertin et al., 2002) : déversement des résidus au fond de lacs ou d'anciennes fosses à ciel ouvert, construction de bassins artificiels ceinturés de digues, ou encore ennoiement de cuvettes naturelles.

Des critères de conception précis ont été développés pour déterminer l'épaisseur d'eau constituant le meilleur compromis entre stabilité, coûts et efficacité. Il convient de veiller à éviter les mélanges et la remise en suspension des particules de résidus sous l'effet de la houle (contrôle des débits et des écoulements latéraux, épaisseur d'eau minimale). Il est possible d'installer une fine couche de matériaux grossiers au sommet des résidus de telle sorte à les protéger des phénomènes d'érosion (Romano et al., 2003). Cette couche protectrice peut même être constituée de résidus miniers grossiers, réactifs mais non générateurs d'acide, qui, en plus de protéger les résidus sous-jacents permettent également de consommer le faible flux d'oxygène de diffusion (Romano et al., 2003).

L'efficacité des couvertures hydriques a pu être constatée (Atkins et al., 1997), notamment par l'observation de la diminution de la production du DMA par un facteur de 10 à 1000 (Elberling et Damgaard, 2001). Subsistent quelques problèmes, comme la question de la disponibilité de l'eau, la nécessité de construire des ouvrages capables de résister à des conditions météorologiques extrêmes, ou encore le problème de la stabilité à long terme (Aubertin et al., 1997, 2002).

Recouvrement multicouche

Le recouvrement multicouche est composé de plusieurs sols ou matériaux synthétiques superposés. Il a pour objectifs de (Aubertin et al., 2002) :

- contrôler la migration des gaz, vers l'intérieur ou l'extérieur du site,
- empêcher tout contact entre les rejets et le milieu environnant,
- limiter l'infiltration de l'eau jusqu'aux rejets.

Une couverture multicouche typique comprend jusqu'à cinq couches (Aubertin et Chapuis, 1991; Aubertin et al., 1995, 2002) (figure 2.6), mais des cas plus complexes existent, pouvant aller jusqu'à dix couches (Hutchison et Ellison, 1992; Aubertin et al., 1995). A l'inverse, il est possible de simplifier le système en regroupant plusieurs couches, afin de faciliter la construction de la couverture et d'en réduire les coûts. Selon le site (types de résidus, climat, bilan hydrique) et le type de matériaux employés, la configuration retenue peut varier (Aubertin et al., 1997).

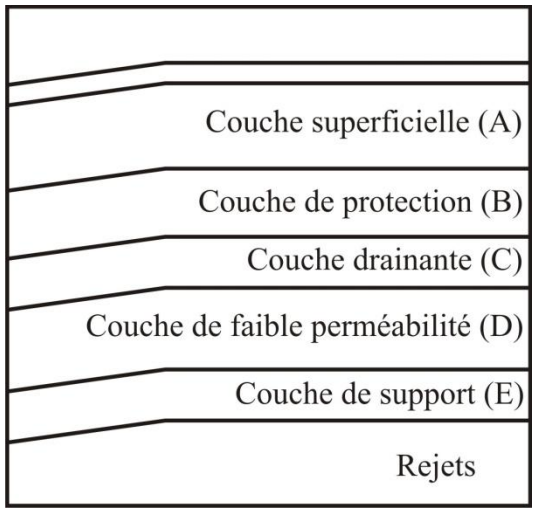


Figure 2.10: Principales composantes d'un système de recouvrement multicouche (adapté d'Aubertin et al., 2002)

La couche A, ou couche superficielle, sert à séparer les couches sous-jacentes du milieu environnant, ainsi qu'à réduire les effets des fluctuations de la température et de l'humidité dans la barrière. Son épaisseur est généralement de 15 à 20 cm, mais peut atteindre 90 cm. Elle doit être capable de résister à l'érosion tout en nécessitant un entretien minimal. On emploie des sols organiques (pour permettre une revégétalisation), des géosynthétiques perforés ou des lits de cailloux (pour empêcher les intrusions biologiques (Aubertin et al., 1995; Yanful et al., 1999; Nyhan et al., 1990; Pease et al., 2003)).

La couche B, ou couche de protection, sert à protéger les couches sous-jacentes des cycles gel-dégel et des biointrusions. Elle peut également servir de couche de stockage d'eau dans certains cas. D'une épaisseur de 30 à 50 cm (parfois 1 m), on emploie essentiellement du sol tout venant avec cailloux.

La couche C, ou couche drainante, sert à réduire le gradient hydraulique dans le recouvrement, à contrôler le débit d'infiltration (Daniel et Koerner, 1993; Aubertin et al., 1995), et à dissiper les pressions interstitielles. Généralement, les parcs sont construits avec une certaine pente (2 à 5%), favorisant ainsi les écoulements latéraux et évitant une trop importante accumulation d'eau. Son épaisseur est normalement supérieure à 30 cm. Elle est constituée en général de matériaux pulvérulents (sables, graviers) ou de synthétiques, dont la conductivité hydraulique doit être supérieure d'environ deux à trois ordres de grandeur à celle de la couche D (Aubertin et al., 1995, 2002). Elle permet également d'isoler la couche D en évitant les remontées capillaires (effet de bris capillaire).

La couche D, ou couche de faible perméabilité (ou couche de rétention), sert de barrière hydrogéologique. Sa principale fonction est de minimiser les infiltrations d'eau et de rester saturée pour empêcher au maximum le passage de l'oxygène. Son épaisseur typique est de l'ordre de 0,5 à 1 mètre de matériaux fins, avec une conductivité hydraulique saturée généralement inférieure à 10^{-7} m/s. On utilise aussi des géosynthétiques ou des géomembranes,

La couche E, ou couche de support, d'une épaisseur supérieure à 30 cm, sert à améliorer la capacité portante des résidus et à éviter les remontées capillaires de lixiviats contaminés produits par les rejets. Il est primordial pour le fonctionnement du recouvrement que sa conductivité hydraulique saturée soit au moins deux ou trois ordres de grandeur plus grande que celle de la couche D, soit généralement autour de 10^{-5} à 10^{-3} m/s.

Il existe de nombreuses variantes à cette configuration théorique, notamment dans les épaisseurs et les matériaux employés. Il est également possible de coupler certains couches, comme A, B et C en une seule couche de surface, ou encore E avec les résidus (s'ils sont suffisamment grossiers) ou les stériles (Wilson et al., 1997).

La méthode de la couverture multicouche peut être très efficace tel que montré sur les sites LTA (McMullen et al., 1997; Ricard et al., 1997; Bussière et al., 2001, 2004; Bussière, 2007), et Lorraine (Dagenais et al., 2002, 2005).

Recouvrement monocouche

Un recouvrement monocouche peut se voir comme une simplification de la couverture multicouche. Son comportement dépend fortement des résidus et de sa conception (Sjoberg et al., 2001, 2003).

- Si les matériaux sous-jacents sont assez grossiers, il peut servir de couche de rétention et permettre à un effet de barrière capillaire de se développer (Zhan et al., 2006).
- Si la couverture est constituée de matériaux plus grossiers, alors elle peut servir de couche de protection dans la méthode de la nappe surélevée (Dagenais et al., 2006; Ouangrawa, 2007).
- Si la couverture est constituée de matériaux assez fins pour la rendre très peu perméable, elle peut jouer le rôle de barrière contre l'infiltration d'eau.

La couverture monocouche est généralement employée dans le cadre d'une restauration par nappe surélevée. Cette dernière consiste à rehausser le niveau naturel de la nappe phréatique pour augmenter le degré de saturation au sein des résidus (Ouangrawa et al., 2005). On préconise en général une épaisseur de résidus au-dessus de la nappe inférieure à la moitié de la pression d'entrée d'air du matériau (Ouangrawa et al., 2006, 2007).

Il faut par ailleurs s'assurer d'une élévation maximale et constante de la nappe. Pour ce faire, il est possible de la surélever par (Day et al., 1996; Orava et al., 1997) :

- la modification du bilan hydrique dans le parc à résidus,
- l'augmentation de la capacité de rétention des résidus,
- la diminution de l'écoulement horizontal de l'eau souterraine.

Pour la construction de la couverture, on devrait choisir des matériaux assez grossiers et légèrement alcalins, afin de bénéficier de leurs propriétés à la fois hydriques et géochimiques. Leur granulométrie doit permettre de limiter les phénomènes d'évaporation et d'érosion et d'empêcher la remontée de l'eau depuis les résidus. Leur alcalinité peut permettre de neutraliser les eaux acides présentes sur le site.

Des travaux de modélisation physiques et numériques ont permis d'estimer la sensibilité de la méthode à la profondeur de la nappe. Il ressort clairement que plus le niveau d'eau est bas, plus le drainage minier acide sera important (Ouangrawa et al., 2007). Lorsque bien employée, la méthode de la nappe surélevée a démontré son efficacité dans les études détaillées réalisées sur le sujet (efficacité supérieure à 99% quand tous les critères sont respectés ; Dagenais, 2005; Ouangrawa, 2007).

2.5.3 Matériaux des couvertures

Pour concevoir une couverture, un large choix de matériaux est disponible. Les matériaux retenus doivent posséder certaines caractéristiques hydrauliques bien précises pour permettre le fonctionnement de la couverture. Ils doivent également être choisis pour être compatibles entre eux et éviter la migration des particules fines de certaines couches (selon les critères filtres). Les contraintes de coûts et de disponibilité des matériaux interviennent également dans ce choix (Sjoberg et al., 2001; Aubertin et al., 2002).

Les argiles compactées (Compacted Clay Liner, CCL) sont largement employées dans la conception des recouvrements (Albright et al., 2006a). Proposant d'excellentes propriétés hydriques et géotechniques, elles sont cependant sujettes à détérioration par la succession de cycles gel-dégel (Aubertin et Chapuis, 1991; Bussière et al., 2001; Adu-Wusu et Yanful, 2007), les cycles de mouillage-séchage et les fortes précipitations (Albright et al., 2006b). Certaines argiles peuvent servir d'ajouts pour améliorer les propriétés d'un sol (augmentation de la rétention d'eau et de la capacité de stockage, diminution de la conductivité hydraulique saturée). La bentonite est souvent employée à cet effet (Aubertin et al., 1995, 1999; Yanful et al., 2006; Adu-Wusu et Yanful, 2007; Song et Yanful, 2008), ainsi que des composés synthétiques (Aubertin et al., 2002; Adu-Wusu et Yanful, 2007; Alakangas et al., 2008).

Les tills (ou moraines) sont fréquemment employés dans la conception des recouvrements, notamment en raison de leur abondance sur de nombreux sites miniers (Caron, 2005). Leur efficacité comme couche de rétention est très variable selon leur granulométrie. Certains tills argileux ont l'avantage d'être auto-scellants (Yanful et al., 1999) et leur fraction grossière peut leur permettre de mieux résister à l'érosion et aux effets de l'évaporation et des cycles de mouillage-séchage.

L'emploi de résidus miniers non générateurs de DMA a pu faire ses preuves, autant pour des couvertures de type CEBC (couverture à effets de barrière capillaire) que monocouches (Nicholson et al., 1989; Aubertin and Chapuis, 1991; Aubertin et al., 1994, 1995; Bussière et al., 2001, 2004; Bussière, 2007; Ouangrawa, 2007). Il est également possible d'employer des résidus désulfurés qui présentent les mêmes caractéristiques hydrogéologiques (Bussière et al., 1997a,b; Benzaazoua et al., 1998; Sjoberg et al., 2001; Bussière et al., 2002a, 2004; Bussière, 2007). Leur traitement peut même éventuellement leur conférer un certain pouvoir tampon (Sjoberg et al., 2001).

Il peut aussi être envisageable d'employer des résidus miniers non générateurs d'acide mais faiblement réactifs, qui ont alors l'avantage, en plus d'avoir une perméabilité faible, de consommer le faible flux d'oxygène qui pourrait malgré tout traverser la couverture (Aubertin et al., 2000; Mbonimpa et al., 2000, 2002, 2003; Bussière et al., 2004). Certains résidus désulfurés rentrent dans cette catégorie (leur teneur en soufre est généralement inférieure à 1% ; Sjoberg et al., 2001). Des études ont pu montrer que l'emploi d'un matériau de couverture faiblement réactif pouvait faire décroitre le flux d'oxygène à travers une couverture de type CEBC comparativement à un matériel de même propriétés mais non réactif (Bussière et al., 2002a; Demers et al., 2010a). Des résultats en ce sens ont aussi été obtenus pour des couvertures monocouches (Sjoberg et al., 2001).

Si les résidus désulfurés employés sont non générateurs de DMA, il arrive cependant que l'on constate des concentrations en métaux supérieures aux normes environnementales (drainage neutre contaminé)(Bussière et al., 2002a), et les teneurs en sulfates peuvent être non négligeables (Bussière et al., 2004).

De nombreux autres matériaux ont été proposés pour la construction des recouvrements :

- les boues de désencrage (Cabral et al., 1997) ;

- les copeaux de bois (Tassé et al., 1996) ;
- les enduits de surface (caoutchouc, polymères, bitume)(Aubertin et al., 2002) ;
- le ciment ou les enduits bitumineux (notamment dans des mélanges avec de la bentonite) ;
- certaines boues de traitement d'eaux domestiques (Aubertin et al., 2002; Alakangas et al., 2008) ;
- les rejets de mines de marbre, riches en calcaire (Maqsoud et al., 2008) ;
- l'apatite (un phosphate de chaux) en grains fins (Alakangas et al., 2008) ;
- les cendres volantes (Yeheyis et al., 2008; Reynolds et Petrik, 2008).

Enfin, pour diminuer l'acidité des sites générateurs, il est possible d'amender les parcs à résidus avec de la chaux ou de la pierre calcaire ou dolomitique. Celle-ci peut permettre de faire remonter le pH et reprécipiter les métaux. Si cette méthode n'est pas efficace à long terme (obligation de réapprovisionner la quantité de matériaux alcalins), elle peut être utilisée dans des traitements ponctuels ou avant la mise en place d'une autre technique de restauration (neutralisation des eaux présentes sur le site afin d'éviter les phénomènes d'oxydation indirecte)(Catalan et al., 2002). La méthode a notamment été employée sur le site de Solbec-Cupra avant la mise en place d'une couverture en eau (Amyot et Vézina, 1997).

2.5.4 Evaluation de l'efficacité

L'efficacité E d'une couverture se mesure à la différence apportée par l'ajout du recouvrement comparativement à des résidus laissés exposés. La comparaison peut se faire sur la qualité de l'eau (concentrations), avec et sans couverture, ce qui permet d'avoir une estimation indirecte de la réduction de la quantité de drainage minier acide généré. On peut ainsi écrire (Aubertin et al., 1995, 1997) :

$$E(\%) = \left(1 - \frac{C_i^c}{C_i^0}\right).100 \qquad (2.86)$$

On peut aussi comparer les flux d'oxygène (Aubertin et al., 1999) :

$$E(\%) = \left(1 - \frac{F_C}{F_0}\right).100 \qquad (2.87)$$

avec : F_C : flux d'oxygène à travers la couverture [$M.L^{-2}.T^{-1}$]

F_0 : flux d'oxygène dans les résidus sans couverture [$M.L^{-2}.T^{-1}$]

On prend en compte avec cette seconde méthode le fait qu'une partie de l'oxygène peut être consommée par les matériaux de la couche de rétention (Sjoberg et al., 2003).

Une couverture est considérée comme efficace si le flux d'oxygène la traversant est inférieur à 50 g/m²/an (Aubertin et al., 1999; Dagenais et al., 2002). Dans les simulations (voir chapitre 7), afin de comparer le comportement des différents recouvrements alternatifs (section 7.5), l'efficacité relative sera évaluée par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an ; cela signifie qu'une couverture avec un flux inférieur à 50 g/m²/an aura une efficacité supérieure à 100%.

2.6 Modélisation numérique

2.6.1 Modèles hydrogéologiques

Il existe un grand nombre de codes numériques pour traiter les problèmes hydrogéologiques, tels :

- POLLUTE (Rowe et al., 1998; Aubertin et al., 1995; Yanful et al., 1999; Mbonimpa et al., 2002, 2003; Aachib et al., 2004; Martin et al., 2006),
- MODFLOW (Todd et Mays, 2005; Twarakavi et al., 2008; Furman, 2008; Poirier, 2008),
- HELP (Fayer et al., 1992; Benson et al., 1993; Dwyer, 1993; Scanlon et al., 2002; Adu-Wusu et al., 2007),
- TOUGH (Pruess, 1991, 2004; Lefebvre, 1994; Pruess et al., 1999; Lefèbvre et al., 2001a,b; Doughty, 2007; Liu et Illangasakere, 2008; Wu et Forsyth, 2008; Finsterle et al., 2008),
- HYDRUS (Simunek et al., 1999, 2005, 2008a,b; Fala, 2002; Henry, 2007; Fala, 2008; Simunek et al., 2008a; Furman, 2008, Dahwood et Aubertin., 2009),
- UNSAT-H (Fayer et Gee, 1997; Fayer, 2000; Dwyer, 2003; Scanlon et al., 2005; Shakelford et Benson, 2006; Adu-Wusu et al., 2007).=,
- HydroGeoSphere (Therrien et al., 2007).

Dans ce cas, il a été décidé d'employer la suite GeoStudio et plus particulièrement Vadose/W (GeoSlope Inc.). Il s'agit d'un logiciel de modélisation d'écoulements 2D en milieu non saturé par éléments finis qui incorpore les conditions environnementales de surface (précipitations, évapotranspiration, radiations nettes, vent), les échanges sol-atmosphère (diffusion, mouvement de vapeur) et les effets de la neige et du gel au sol (Choo et Yanful, 2000; Shakelford et Benson, 2006; Cissokho, 2007).

D'un point de vue hydrogéologique, les calculs d'écoulements d'eau sont semblables à ceux proposés par le programme Seep/W de la même suite. Seep/W a été validé à plusieurs reprises, en milieu saturé et partiellement saturé et en régime permanent et transitoire (Chapuis et al., 1993, 2001; Crespo, 1994; Aubertin et al., 1996). Vadose/W combine les caractéristiques de plusieurs autres modèles, en particulier SoilCover (Wilson, 1990; Wilson et al., 1999, 2003) qui a été souvent utilisé (en 1D) et validé (Scanlon et al., 2002; Yanful et al., 2002; Shuniark, 2003; Swanson et al., 2003; Weeks et Wilson, 2004, 2005). L'équation de Penman modifiée par Wilson (1990 ; équation 2.82) est employée par Vadose/W pour estimer l'évaporation sur le site. Le tableau 2.5 (adapté des travaux sur Seep/W de Fala, 2002) synthétise les principales caractéristiques numériques du code.

Tableau 2.5: Principales caractéristiques numériques du code Vadose/W (GeoSlope, 2007)

Propriétés	Vadose/W
Méthode de résolution	Résidus pondérés (Galerkin)
Eléments	Quadratiques et triangulaires (avec ou sans nœuds secondaires)
Fonction d'interpolation	Linéaire ou quadratique
Intégration dans l'espace	Intégration numérique de Gauss (d'ordre 4 ou 9 pour des éléments quadratiques, et d'ordre 1 ou 3 pour des éléments triangulaires)
Intégration dans le temps	Différences arrières
Résolution matricielle	Elimination gaussienne
Convergence	Tolérance sur la norme du vecteur pression

Vadose/W prend en compte l'effet des pentes et du ruissellement et il intègre les taux de réaction (K_r) de certains matériaux pour calculer les flux gazeux (oxygène et radon) traversant un profil de sol (Mbonimpa et al., 2008). Le code calculerait les succions, les capacités de rétention et l'évapotranspiration avec plus de précisions que UNSAT-H (Benson et al., 2005; Song et Yanful, 2008). Vadose/W permettrait également de prédire le comportement à long terme des couvertures de façon un peu plus précise que les autres modèles (UNSAT-H, HELP, HYDRUS-2D ; selon Christensen et al., 2002). Comme tous les autres codes, Vadose /W est très sensible aux courbes de rétention d'eau et fonctions de perméabilité. De petites variations sur ces propriétés peuvent avoir d'importantes répercussions sur les calculs (Adu-Wusu et al., 2007). Par contre, Vadose /W semble ne pas faire preuve d'une trop grande sensibilité aux conductivités thermiques et aux chaleurs spécifiques volumétriques (Adu-Wusu et al., 2007).

D'autres paramètres ne sont pas pris en compte par le modèle, comme l'hystérésis ou les écoulements préférentiels (Adu-Wusu et al., 2007; Song et Yanful, 2008).

2.6.2 Modèles géochimiques

Le suivi des contaminants dans le sol est particulièrement complexe à mesurer et à modéliser en raison des nombreux processus impliqués. Il existe plusieurs modèles statiques, qui reproduisent les réactions chimiques à l'équilibre (e.g. Perkins et al., 1995; Joanes, 1999), dont le plus utilisé est MINTEQA2. Il s'agit d'un modèle de spéciation et d'équilibre géochimique doté d'une large base de données thermodynamiques (Allison et al., 1991). Le logiciel a souvent été employé dans des études ayant trait au drainage minier acide (Yanful et al., 1999; Mayer et al., 2002; Bussière et al., 2004; Jurjovec et al., 2004; Maest et al., 2005; Alakangas, 2006; Molson et al., 2008; Demers et al., 2008b; Song et Yanful, 2008).

Parmi les modèles dynamiques décrivant les réactions chimiques de façon transitoire, On note :

- PHREEQC (Parkhurst et Appelo, 1999),
- MINTRAN (Walter et al., 1994a, b),
- MINTOX (Wunderly et al., 1996), et
- POLYMIN (Gerke et al., 1998; Bain et al., 2001; Molson et al., 2005).

Le logiciel Min3P est employé dans le cadre de ce projet. Il s'agit d'un modèle de transport et d'écoulement 3D (Mayer, 2000; Mayer et al., 2002). Il considère simultanément les réactions chimiques et les processus de transport, en milieu saturé et non saturé. Il prend également en compte le transport des gaz (diffusion et advection). Les réactions géochimiques considérées par le code sont l'hydrolyse, la complexation, l'oxydo-réduction, la dissolution et la précipitation, les échanges ioniques et la dissolution de gaz dans l'eau. Min3P peut être utilisé pour simuler la génération, le traitement et le contrôle de la production du drainage minier acide.

L'équation de l'écoulement de l'eau en milieu variablement saturé est basée sur l'équation de Darcy. D'après les hypothèses posées par Neuman (1973) (fluide incompressible, pas d'effet d'hystérésis, l'air est considéré comme une phase passive), on peut écrire (Mayer et al., 2002) :

$$S_r S_s \frac{\partial h}{\partial t} + n \frac{\partial S_r}{\partial t} - \nabla x\left[k_{w,r} \bar{k} \nabla h\right] - Q_w \qquad (2.88)$$

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

$\bar{k}$: tenseur des conductivités hydrauliques saturées [$L.T^{-1}$]

Q_w : paramètre de débit (source ou fuite) [$L^3.T^{-1}$]

L'équation de transport devient alors :

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(S_r \mathrm{n} T_j^w\right) + \frac{\partial}{\partial t}\left(S_g \mathrm{n} T_j^g\right) + \nabla\left(q_w T_j^w\right) - \nabla\left(S_r \mathrm{n} D_\mathrm{w} \nabla T_j^w\right) - \nabla\left(S_g \mathrm{n} D_\mathrm{g} \nabla T_j^g\right) - \sum Q_j^{w,} = 0 \qquad (2.89)$$

avec : T_j^w : concentration du composé j dans l'eau [$M.L^{-3}$]

T_j^g : concentration du composé j dans la phase gazeuse [$M.L^{-3}$]

D_w : coefficient de dispersion dans l'eau [$L^2.T^{-1}$]

D_g : coefficient de dispersion dans la phase gazeuse [$L^2.T^{-1}$]

$Q_j^{w,}$: paramètres de débit (source ou fuite) [$L^3.T^{-1}$]

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

$$\frac{\partial \varphi_k}{\partial t} = V_k^m \cdot R_k^m \qquad (2.90)$$

avec : φ_k : fraction volumique du minéral k [-]

V_k^m : volume molaire du minéral k [-]

R_k^m : taux de dissolution (de précipitation ou d'oxydation) du minéral k [$M.L^{-3}.T^{-1}$]

Le code Min3P représente le taux d'oxydation des sulfures selon le modèle du noyau réactif; celui-ci s'écrit:

$$R_k^m = -10^3 S_k D_k \left(\frac{r_i^p}{(r_i^p - r_i^r)\cdot r_i^r}\right) \cdot \left(\frac{[O_2]_w}{\upsilon_k}\right) \tag{2.91}$$

avec : R_k^m : taux de réaction (ou d'oxydation) [$M.L^{-3}.T^{-1}$]

S_k : surface de réaction du minéral k [$L^2.M^{-1}$]

D_k : coefficient de diffusion à travers la couronne d'oxydation [$L^2.T^{-1}$]

r_i^p : rayon du grain [L]

r_i^r : rayon du noyau non oxydé [L]

$[O_2]_w$: concentration d'oxygène dissout à la surface du grain [$M.L^{-3}$]

υ_k : coefficient stœchiométrique de l'oxygène dans la réaction d'oxydation (ex : 3,5 pour la pyrite)

Les minéraux non-sulfureux, soumis à des réactions de dissolution-précipitation essentiellement, suivent une loi de réaction de surface qui s'écrit de deux façons (selon les minéraux) :

$$R_k^m = -k_k^{\mathrm{m,eff}}(1 - IAP_k/K_k) \tag{2.92}$$

$$R_k^m = -S_k k_k^m \left[T^i\right]^n \tag{2.93}$$

avec : R_k^m : taux de dissolution-précipitation [T^{-1}]

$k_k^{\mathrm{m,eff}}$: coefficient de réaction effectif [$M.L^{-3}.T^{-1}$]

IAP : produit d'activité ionique [-]

K_k : constante d'équilibre [-]

k_k^m : coefficient de réaction spécifique [$M.L^{-3}.T^{-1}$]

T^i : concentration (en phase aqueuse) du composant i contrôlant la réaction de dissolution-précipitation [$M.L^{-3}$]

n : ordre de la réaction (n = 1 si taux constant, n = 2/3 pour certaines réactions à taux variables)

Le modèle de transport réactif Min3P fait un certain nombre d'hypothèses sur le contrôle des réactions (Mayer et al., 2002) :

- les réactions de dissolution-précipitation étant souvent lentes, on considère qu'elles sont contrôlées cinétiquement,
- les réactions aqueuses peuvent être contrôlées cinétiquement ou par les lois d'équilibre,
- toutes les autres réactions sont supposées très rapides comparativement aux vitesses d'écoulement et sont donc contrôlées par les lois d'équilibre.

Le modèle Min3P a été employé dans plusieurs études et les résultats obtenus correspondaient bien aux mesures expérimentales de laboratoire et de terrain (Bain et al., 2001; Mayer et al., 1999, 2000, 2002; Jurjovec et al., 2002, 2004; Molson et al., 2004, 2008; Ouangrawa et al., 2006, 2007, 2010; Demers et al., 2010b).

CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE DE L'ÉTUDE : NATURE DES MATÉRIAUX ET PROTOCOLES EXPÉRIMENTAUX

La méthodologie employée pour répondre à la question de recherche se divise en trois volets :

- l'étude en laboratoire au moyen de modèles physiques (petites et grandes colonnes) s'appuyant sur la caractérisation des propriétés (hydrogéologiques, géochimiques, minéralogiques) des résidus ;
- des travaux de terrain visant à étudier *in situ*, à plus grande échelle et sous conditions climatiques réelles, le comportement des résidus et de leur couverture ;
- la modélisation numérique des résultats expérimentaux et leur extrapolation à des échelles de temps et d'espace plus larges.

3.1 Résidus miniers étudiés

3.1.1 Origine des résidus

Les résidus miniers étudiés et les matériaux de couverture respectifs proviennent de deux parcs à résidus générateurs d'acide situés en Abitibi-Témiscamingue.

3.1.1.1 Parc à résidus Manitou

Le site minier Manitou est situé à une douzaine de kilomètres à l'Est de Val-d'Or (Québec). La mine a été exploitée de 1941 à 1979 pour son minerai de cuivre, de zinc, d'argent et d'or. A partir de 1970, ses installations ont été employées pour le traitement de minerais provenant d'autres mines. Les rejets de concentrateur ont été déposés dans deux parcs (nommés A et B), sans qu'aucune véritable mesure de mitigation ne soit mise en place. Suite à une période de déversement non contrôlé, des digues de confinement ont été construites au début des années 1950 afin de protéger les installations des épanchements de résidus. A partir de 1972, des ruptures de digues se sont produites, entrainant le déversement d'une partie des résidus dans le lit du ruisseau Manitou, puis jusqu'au ruisseau Bourlamaque (Tassé et Germain, 1999).

Les résidus recouvraient (au début des travaux de restauration) une surface de 191 ha, dont 42 ha pour les parcs A et B, sur une épaisseur moyenne de 13 mètres dans le parc A et de 6 mètres dans

le parc B. La zone d'épanchement s'étend sur le reste de la zone touchée avec une épaisseur maximale de 8 mètres à l'ouest du parc A. Le ruisseau Manitou prolonge la zone d'épanchement vers l'ouest sur près de 6,3 kilomètres. Les résidus qui s'y sont déposés recouvrent plus du quart de la zone touchée. Leur épaisseur est variable et la pente y est faible (Tassé et Germain, 1999).

Au fil des années, le site Manitou est devenu l'une des plus importantes sources de pollution minière au Québec. Les premières mesures de contrôle appliquées consistent à traiter les eaux de la fosse par chaulage. Riche en cyanure en raison des déversements de résidus aurifères, celles-ci sont d'abord acheminées sur le parc A pour leur dégradation par photo-dissociation, puis déversées dans le parc B et neutralisées avec de la chaux avant d'être renvoyées vers le ruisseau Manitou. Suite à la faillite de la société propriétaire Norebec-Manitou en avril 2002, le site est devenu propriété de l'Etat.

Diverses études réalisées dans les années 1990 et 2000 (Aubertin et Chapuis, 1990; Aubertin et Bussière, 1991; Aubertin et al., 1995, 1997, 1999; Bernier, 1997; Tassé et Germain, 1999, 2003; Journeaux, Bédard et assoc., 2004, 2005, 2007; Teknika HBA, 2005) ont mené à l'établissement d'un plan de restauration. La solution retenue consiste à recouvrir les résidus Manitou par des résidus non générateurs d'acide provenant de la mine Goldex (dont l'exploitation a débuté en mai 2008 à Val-d'Or) et à remonter la position de la nappe phréatique. Les résidus Goldex sont transportés sous forme de pulpe à environ 55-60% solide par un pipeline de plus de 20 kilomètres. Les travaux de restauration ont débuté en juillet 2007. Aujourd'hui, la plupart des zones d'épanchement, ainsi que la fosse, ont été recouvertes de résidus Goldex. Les parcs A et B, en hauteur et sur lesquels d'importantes quantités de résidus ont été ramenées des zones d'épanchement, sont toujours en attente d'une décision pour le choix de la solution de recouvrement. L'étude menée ici devrait aider à apporter un éclairage sur les options envisagées.

Quelques photos du site sont présentées à la figure 3.1. Voir un plan général à la figure 4.11.

3.1.1.2 Site Selbaie

Situé à 140 km au nord-est de La Sarre, en Abitibi, le site des Mines Selbaie a été exploité à partir de 1974 pour son minerai de cuivre, de zinc, d'argent et d'or. La mine a été acquise par Billiton en 1992 et est aujourd'hui la propriété de Les Métaux Billiton, filiale de BHP-Billiton (Caron et al., 2005). L'exploitation s'est achevée en 2004, date à laquelle ont été entrepris les travaux de restauration, confiés en grande partie aux Services Environnementaux Denison Inc.



Figure 3.1: Site Manitou. a) Vue aérienne du parc à résidus et de la zone d'épanchement ; b) Parc B vu depuis le Parc A (été 2007) ; c) Parc A ; on notera la présence de nombreuses fentes de dessiccation (été 2009) ; d) Déversement des résidus Goldex sur le site (Nord du Parc B) (été 2010) ; e) Eau contaminée au pied des digues du Parc A (été 2009) ; f) Parc 1, recouvert de résidus Goldex ; on note la couleur orange au sommet des résidus, signe de la recirculation d'eau contaminée (été 2010)

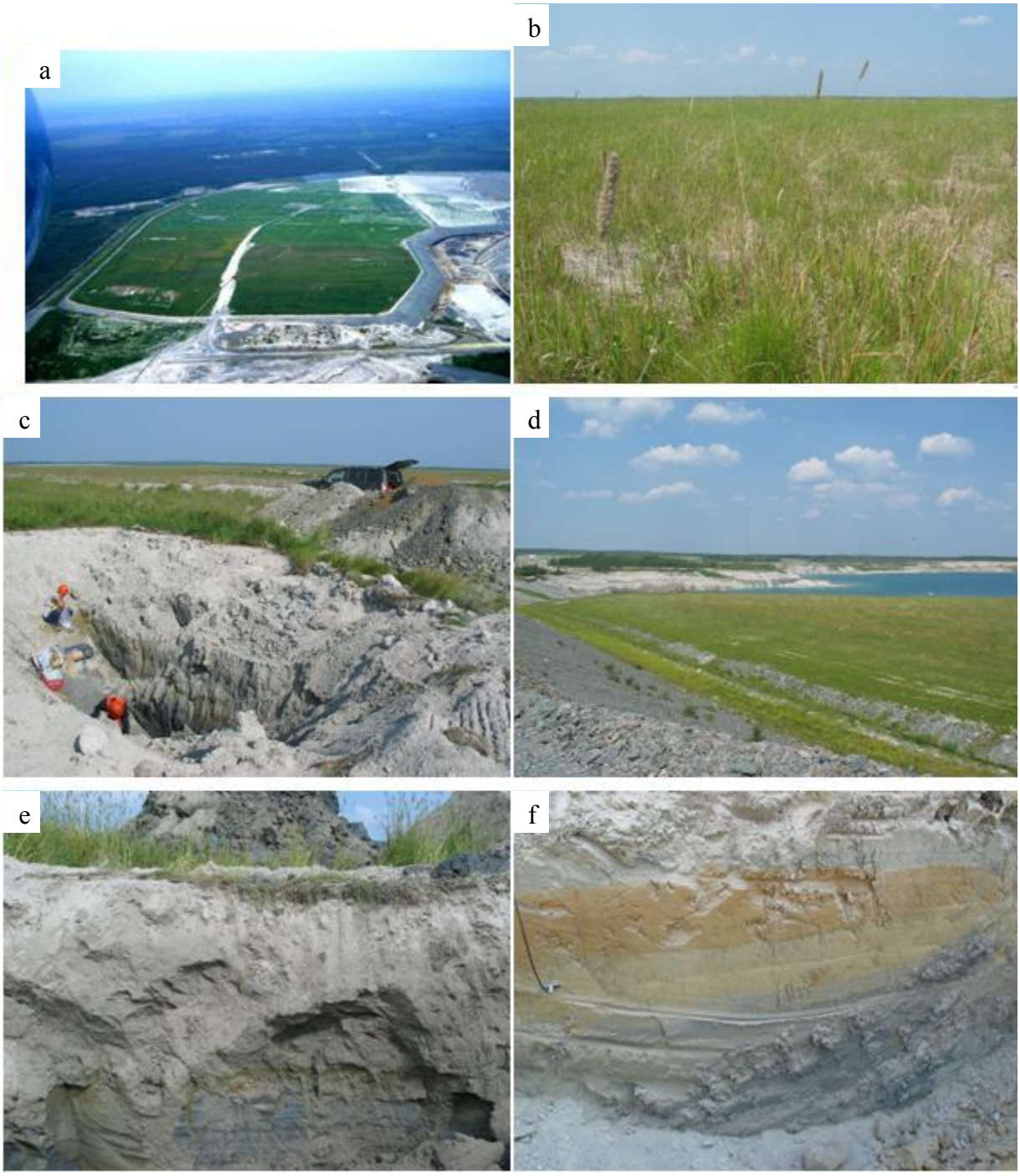


Figure 3.2: Parc à résidus Les Mines Selbaie. a) Vue aérienne du parc à résidus ; b) Surface du parc, revégétée (été 2008) ; c) Tranchée creusée sur le parc pour échantillonner les résidus et la moraine, réaliser des tests de consommation et installer les équipements de suivi ; d) Vue de la fosse depuis le parc à résidus ; e) Détail de la couche de moraine (ici 1 m) ; f) Profil de résidus, avec front d'oxydation (orange) et résidus frais en profondeur (gris)

Le site des mines Selbaie s'étend sur une superficie de 575 hectares. Le parc à résidus est situé au Sud du site et de la fosse. Il couvre une surface d'environ 175 ha et est surélevé par rapport au reste du site (Caron et al., 2005). La restauration du parc à résidus minier a consisté à le ceinturer d'une digue faite de stériles et à recouvrir les rejets par une épaisseur d'au moins un mètre de moraine (ou till) prélevée à proximité. Sa surface a été revégétalisée par des graminées et des herbes hautes. Des épandages d'engrais et de graines sont normalement répétés chaque année. Un bassin de rétention et de polissage, qui récupère toutes les eaux ayant circulé sur le parc, se situe à son extrémité Nord-Ouest. Une usine sur le site traite le lixiviat à la chaux et la boue produite est envoyée dans la fosse ; les caractéristiques géotechniques de cette boue ont été étudiées par Pedroni (2011).

Quelques photographies du site Selbaie sont présentées à la figure 3.2. Un plan du site est également présenté à la figure 4.18.

3.1.2 Échantillonnage et préparation des échantillons

Les échantillons de résidus et de matériaux de couverture (qui sont utilisés pour le montage des modèles physiques en laboratoire) ont été prélevés directement sur les sites concernés (sauf pour les résidus Goldex, fournis directement par la mine) et placés sous une couverture d'eau dans des contenants hermétiquement clos pour leur transport. Pour chaque type de résidus, l'objectif était de prélever un échantillon partiellement oxydé et un autre non (ou peu) oxydé, avec comme objectif d'étudier les différences (physiques et géochimiques) entre ces deux types de matériaux. La sélection des matériaux, « frais » ou oxydés, s'est faite directement sur le terrain, selon de la couleur des résidus et de leur position relative (plus on creuse en profondeur, moins les résidus devraient être oxydés). Les points de prélèvement sont indiqués aux figures 4.11 et 4.18 (section sur les travaux de terrain).

Au laboratoire, les matériaux ont été homogénéisés dans une petite bétonnière, répartis de façon homogène dans des contenants et remis sous eau pour limiter leur oxydation jusqu'à leur usage ultérieur. Des analyses granulométriques, hydrogéologiques et chimiques ont été réalisées (selon les protocoles décrits plus bas) pour s'assurer que les matériaux dans chaque contenant pouvaient être considérés comme homogènes.

Au total, on considère 6 échantillons correspondant à 6 types de matériaux (4 pour les résidus et 2 pour les matériaux de couverture). Les dénominations des échantillons employées dans la suite de ce document, avec les emplacements où ils ont été prélevés, sont :

- MNO (Manitou Non Oxydé) : résidus prélevés dans une tranchée au centre-Nord du Parc A, environ 80 cm sous l'interface avec les résidus oxydés (19 juin 2007) ;
- MO (Manitou Oxydé) : résidus prélevés dans une tranchée sur le Parc A, près des digues (fraction plus grossière) (automne 2007) ;
- Goldex : résidus reçus dans un baril de la mine Goldex (été 2007) ; prélevés au début du traitement minéralogique de la mine ;
- SNO (Selbaie Non Oxydé) : résidus prélevés dans une tranchée à proximité du piézomètre PO-02-04, à plus de deux mètres de profondeur, environ 1 mètre sous ce qui semblait être un front d'oxydation (25 juillet 2007) ;
- SO (Selbaie Oxydé) : résidus prélevés dans une tranchée à proximité du piézomètre PO-02-04 (à une dizaine de mètres au Nord de la tranchée SNO), relativement en surface (entre la moraine et des résidus visiblement plus frais) (25 juillet 2007) ;
- Moraine : sol naturel prélevé dans la tranchée SO (25 juillet 2007).

La moraine a été tamisée à 2,50 mm pour permettre une caractérisation précise des propriétés du matériau sans avoir à appliquer de facteurs correctifs (la plupart des essais décrits plus bas nécessitent une fraction de sol inférieure à 4,75, mais la fraction < 2,50 mm est mieux adaptée aux essais en colonne). Les résidus étaient tous plus fins que 2,50 mm.

3.2 Caractérisation physique, hydrique et géochimique des résidus

La caractérisation des matériaux prélevés sur le terrain a été réalisée dans les laboratoires de l'Ecole Polytechnique de Montréal et de l'UQAT (Rouyn-Noranda). Les résultats expérimentaux ont été comparés à des modèles prédictifs, lorsque c'était possible. La plupart des essais de caractérisation font l'objet de normes, lesquelles ont parfois dû être adaptées en fonction des propriétés des matériaux et des conditions de laboratoire. Ces modifications sont détaillées ci-après.

3.2.1 Granulométrie

Les courbes granulométriques ont été obtenues :

- par tamisage "sec" (BNQ 2560-040) et sédimentométrie (ASTM D422), avant le montage des essais en colonne, au laboratoire de l'Ecole Polytechnique[1]. Ces essais ont été réalisés sur chaque contenant de matériaux (entre 6 et 8 selon les matériaux) ;
- par granulométrie laser (Malvern, type Mastersizer), lors du démontage des essais en colonne, au laboratoire de l'UQAT ; 5 ou 6 échantillons par colonne ont été testés afin de vérifier si une modification notoire de la granulométrie s'était produite au cours des 22 mois de tests.

La sédimentométrie se base sur la densité relative des grains (leur masse) pour déterminer indirectement leur taille (en les supposant sphériques) ; le granulomètre laser utilise les propriétés de diffraction des grains. Les deux méthodes de mesure donnent généralement des résultats similaires (e.g. Plante, 2004; Gosselin, 2007)

3.2.2 Densité relative des grains

La densité relative des grains a été obtenue :

- par pycnomètre à eau (ASTM D854) avant le montage, au laboratoire de l'EPM. Ces tests ont été réalisés sur chacun des contenants de matériaux ;
- par pycnomètre à hélium (Micromeritics Accupyc 1330) au démontage des essais en colonne, au laboratoire de l'UQAT. Comme pour la granulométrie, 5 ou 6 échantillons ont été caractérisés afin d'évaluer si des modifications de densités relatives s'étaient produites au cours des essais.

Les deux méthodes donnent généralement des résultats comparables (e.g. Gosselin, 2007) et la norme ASTM D854 considère comme acceptables des différences de 0,16 entre les résultats obtenus par les deux méthodes.

---

1 Quand aucune précision n'est donnée, il est sous-entendu que les essais ont été réalisés par ou sous la direction de l'auteur, au laboratoire de la Chaire industrielle CRSNG Polytechnique-UQAT, à l'EPM.

3.2.3 Indice des vides

L'indice des vides des matériaux en place (sur le terrain ou au démontage des colonnes) a été mesuré :

- par essai au cône (ASTM 1556) sur le site Selbaie ;
- par la méthode dite de l'anneau (volumique). Elle consiste à prélever un échantillon de sol non remanié dans un anneau métallique de volume connu. On mesure la masse et la teneur en eau massique de l'échantillon, ainsi que la densité relative des grains, et on peut en déduire l'indice des vides du matériau et son poids volumique en place.

Les mesures de l'indice des vides, tant au cône que par anneau, sont relativement imprécises. Aussi, dans les simulations de terrain, les plages de résultats employées couvriront l'ensemble des résultats obtenus (voir aussi section 7.4.2).

3.2.4 Conductivité hydraulique saturée

La conductivité hydraulique saturée des matériaux employés a été principalement déterminée par des essais à charge variable effectués en cellule triaxiale (ASTM D5084). Quelques essais complémentaires ont également été réalisés dans des moules à parois rigides, également par des tests à charge variable (ASTM D5856 et D5887, voir aussi ASTM D2434).

Les valeurs mesurées de la conductivité hydraulique saturée ont été comparés aux valeurs prédites au moyen des modèles de Kozeny Carman (KC)(Chapuis et Aubertin, 2003) et Kozeny-Carman modifié (KCM ; Mbonimpa et al., 2002), présentés au chapitre 2 (voir section 2.2.4).

3.2.5 Essais de compactage et de consolidation

Des essais de compactage ont été réalisés selon les normes de l'essai Proctor Modifié (ASTM D1557 - Méthode A). La détermination de l'optimum Proctor a également servi de guide lors de la préparation des essais en grandes colonnes afin de pouvoir mieux planifier et suivre le comportement des résidus lors de leur consolidation (temps de charge, indice des vides visé etc.).

Dans la même optique, des essais de consolidation ont également été réalisés, de façon plus informelle, en utilisant le matériel destiné au montage des colonnes (voir Ouangrawa, 2007). On a ainsi pu déterminer le temps de charge requis pour atteindre l'indice des vides visé.

3.2.6 Courbe de rétention d'eau

Les courbes de rétention d'eau des différents résidus et matériaux de couverture ont été déterminées au moyen d'essais en cellules Tempe modifiées (adaptés de la norme ASTM D3152). Le protocole détaillé, rédigé et modifié en partie par l'auteur, est présenté à l'annexe 3.1. Selon la réactivité des matériaux, et afin d'éviter d'éventuelles réactions d'oxydation dans les cellules, les tests ont été réalisés par l'application d'une pression d'azote ou d'air.

Les résultats des essais ont été interprétés au moyen du logiciel RETC (version 6.0, van Genuchten et al., 1991), qui permet de déterminer les paramètres du modèle de van Genuchten (1980) décrivant au mieux les résultats expérimentaux (voir section 2.2.3). Ces résultats sont par la suite adaptés selon les résultats expérimentaux obtenus dans les colonnes (voir section 7.2.1.1).

Les résultats expérimentaux ont été comparés aux CRE estimées par le modèle de Kovacs modifié (MK)(Aubertin et al., 1998, 2003), employé pour prédire les courbes de rétention d'eau des matériaux étudiés et éventuellement corriger les courbes selon les indices des vides en cellule Tempe et dans les colonnes.

3.2.7 Analyses chimiques et minéralogiques

Lors du montage et du démontage des essais en colonnes, diverses analyses chimiques et minéralogiques ont été réalisées, soient :

- des analyses par diffraction des rayons X (DRX), au laboratoire de l'UQAT (Bruker A.X.S. Advance D8), afin d'identifier les principaux minéraux présents dans les résidus et matériaux de couverture (Villeneuve, 2004) ;
- des analyses à la fournaise LECO (CS-400), à l'Ecole Polytechnique, pour déterminer les quantités de soufre et carbone totales dans les matériaux (sans distinction de leur nature et origine). Dans cet essai, un petit échantillon (~1 g) est introduit dans un four à induction et chauffée à plus de 1650°C. Une telle température cause la volatilisation des molécules de carbone et de soufre qu'une cellule spectrométrique à infrarouge quantifie par absorption selon les longueurs d'onde.

Ces analyses ont été réalisées sur quelques grammes de matériaux préalablement pulvérisés.

3.2.8 Coefficient de diffusion d'oxygène et constante du taux de réaction

3.2.8.1 Essais au laboratoire

Des essais en cellules de diffusion (autour de cinq par échantillon) ont été réalisés pour déterminer la variation du coefficient de diffusion effectif (D_e) de l'oxygène en fonction du degré de saturation et de la porosité des matériaux. Le coefficient D_e est utilisé dans les lois de Fick (voir section 2.3). L'essai a été décrit en détail par Gosselin (2007). De façon simplifiée, on installe dans une cellule de plexiglas un échantillon de 1 à 2 cm d'épaisseur, avec, en haut et en bas, deux réservoirs remplis de gaz. Avant de débuter l'essai, on purge le système à l'azote puis on remplit le réservoir du haut avec de l'air ayant une concentration d'oxygène de 20,9% (conditions atmosphériques normales). L'échantillon et le réservoir du bas sont alors remplis d'azote uniquement (concentration d'oxygène nulle présumée). On ferme ensuite la cellule de façon hermétique, et on laisse l'oxygène diffuser du réservoir du haut vers le réservoir du bas, au travers de l'échantillon partiellement saturé en eau. Des capteurs d'oxygène, placés dans chaque réservoir, permettent de suivre les variations de la concentration en oxygène. Au cours des essais, deux types de senseurs ont été employés (avec des résultats similaires) :

- les senseurs modèle Teledyne Oxygen Sensor C06689-B1, reliés à un lecteur type Portable Oxygen Analyzer Teledyne Analytical Instruments (ces capteurs ont également été employés pour les essais de consommation/diffusion sur le terrain, avec des voltmètres standards). Ces capteurs sont de nature chimique et produisent un courant électrique par réaction avec l'oxygène (un courant proportionnel à la quantité d'oxygène disponible ; le lecteur convertit ces données en pressions partielles d'oxygène [0% ; 20,9%], i.e. la pression d'oxygène sur la pression totale). Leur inconvénient majeur est de consommer une petite quantité d'oxygène (ce qui peut s'avérer problématique pour les essais à long terme) et d'avoir une durée de vie assez limitée ;
- les senseurs type Dipping Probe de PreSens. Il s'agit de capteurs optiques, capables de mesurer l'oxygène gazeux et dissout (les résultats sont donnés en pourcentage de la quantité totale d'oxygène que le milieu peut contenir). Bien que fragiles, ils peuvent être utilisées longtemps et permettent un suivi automatisé. Ces capteurs ont également été installés dans les grandes colonnes (voir plus bas).

Les résultats des mesures expérimentales sont interprétés au moyen d'un modèle numérique (indispensable pour résoudre les équations différentielles des deux lois de Fick). Ont été employés dans le cadre de ce projet :

- Pollute (version 6.3.5, Rowe et al., 1998) ;
- Vadose/W (version 2007, GeoStudio Inc.).

L'interprétation a été réalisée en suivant la méthode proposée par Aubertin et al. (1995, 1999, 2000) et modifiée par Mbonimpa et al. (2003), Aachib et al. (2004) et Gosselin (2007). Ces résultats ont été comparés au modèle prédictif d'Aachib et al. (2002, 2004)(voir section 2.3.3).

La constante du taux de réaction (K_r) des résidus réactifs (qui apparait dans la 2nde loi de Fick modifiée, voir section 2.3.3) est déterminée au moyen d'essais de consommation d'oxygène en cellule fermée (à un réservoir). La procédure expérimentale est décrite par Gosselin (2007).

L'essai de consommation d'oxygène est assez similaire à l'essai de diffusion avec seul réservoir supérieur. L'échantillon est le plus mince possible pour minimiser l'impact de la diffusion sur le mouvement de l'oxygène. Le suivi des concentrations d'oxygène et l'interprétation des résultats expérimentaux se fait de la même manière que pour l'essai de diffusion. Les données expérimentales ont ensuite été comparées au modèle prédictif de Collin (1987), modifié par Mbonimpa et al. (2003)(voir aussi Gosselin, 2007).

3.2.8.2 Essais sur le terrain

Les essais de consommation/diffusion *in situ* (on ne peut séparer les deux phénomènes comme on le fait au laboratoire) ont été décrits en détails par Mbonimpa et al. (2002), Bussière et al. (2002), Dagenais (2005), Martin et al. (2006) et Gosselin (2007) et légèrement adaptés ici (nouveaux senseurs, suivi automatique des mesures, enregistrement des variations de température, mesure d'un « blanc »). Ils consistent à enfoncer un tube en aluminium, de 14,5 cm de diamètre intérieur et d'environ 1 m de hauteur, dans les résidus en laissant au sommet un espace d'environ 2 cm. Un couvercle métallique est installé à son sommet pour former un réservoir hermétique d'air. Un senseur Oxygen Sensor G-cell 33-200 (GC Industries ; i.e. le même type que ceux employés pour certaines cellules de consommation/diffusion au laboratoire) permet de suivre la variation de la concentration d'oxygène à l'intérieur du volume clos. Initialement, la teneur en oxygène de l'air atmosphérique est d'environ 20,9% (ou 280 mg/L). Sachant que la réaction se produit

essentiellement sur les premiers centimètres de résidus, et que le tube métallique empêche le passage latéral de l'oxygène, la géométrie du problème du mouvement de l'oxygène est ramenée à une dimension seulement, ce qui en facilite l'interprétation. Cette dernière est réalisée, comme pour les essais de laboratoire, au moyen d'un logiciel de modélisation numérique (Pollute et Vadose/W dans ce cas), en ajustant les paramètres D_e et K_r pour obtenir les concentrations mesurées.

Il est également possible d'installer le tube à travers une couverture ou les résidus déjà oxydés (e.g. Dagenais, 2005). Dans ce cas, l'oxygène est consommé par les résidus sous-jacents (i.e. plus en profondeur) et la diffusion devient alors le facteur limitant le flux d'oxygène.

Plusieurs tests ont été réalisés sur les sites Selbaie et Manitou directement dans les résidus non oxydés, ainsi qu'à travers les couvertures respectives (voir chapitre 7).

3.2.9 Bactériologie

Des études complémentaires de bactériologie (dénombrement de bactéries et caractérisation de leur influence sur la réaction d'oxydation directe) ont également été réalisées dans le cadre des travaux d'un autre étudiant (Toussaint, 2010). Le lecteur intéressé pourra se reporter à ses conclusions pour plus de détails sur les tests réalisés et les protocoles suivis.

3.3 Essais en grandes colonnes

L'objectif des essais en grandes colonnes est d'évaluer le comportement hydrogéologique et géochimique des résidus et de leur couverture pendant une série de cycles de mouillage et de drainage. Ils servent aussi à évaluer et à calibrer les modèles numériques (voir chapitres 7 et 8). Cet essai est un compromis entre les conditions de terrain et un test dont la durée et les caractéristiques sont compatibles avec un projet de cette envergure. En complément des mesures de laboratoire présentées plus haut, des modèles prédictifs ont également été employés pour concevoir au mieux ces colonnes.

Deux paramètres en particulier ont dû être analysés au départ. Tout d'abord, la hauteur des colonnes doit être à la fois :

- suffisamment importante pour dépasser la pression d'entrée d'air des matériaux afin que ceux-ci puissent éventuellement se désaturer et réagir avec l'oxygène, pour montrer un

comportement géochimique représentatif du terrain (temps de résidence) ; mais également,

- la plus faible possible pour accélérer les réactions et les écoulements.

Le choix de l'épaisseur de la couverture a dû se faire en considérant d'autres contraintes que le respect des conditions de terrain. En raison de la taille maximale des colonnes autorisées par l'espace disponible dans le laboratoire, ainsi que les temps d'écoulement, les couvertures dans les colonnes sont moins épaisses que ce que l'on retrouve *in situ*.

Une fois ces conditions de travail établies, les colonnes ont pu être montées. On décrit ci-après les principales caractéristiques ainsi que les différents essais réalisés.

3.3.1 Caractéristiques des colonnes

Les quatre grandes colonnes montées dans le cadre de ce projet sont faites de pvc et ont une hauteur totale de 230 cm : 170 cm de résidus, 30 à 40 cm de couverture, et le reste (> 20 cm) laissé vide pour permettre l'ajout d'eau. Les colonnes sont constituées de 4 sections (figure 3.3) avec un diamètre interne de 14 à 15 cm, et une hauteur de 50 cm (à la base) ou 60 cm (les trois sections supérieures). De manière plus détaillée, les quatre colonnes sont constituées de la manière suivante (voir aussi tableau 3.1) :

- MNOG : 170 cm de résidus Manitou Non Oxydés et 40 cm de résidus Goldex (montée les 14 et 15 avril 2008) ;
- MOG : 170 cm de résidus Manitou Oxydés et 33 cm de résidus Goldex (13 - 14 janvier 2009) ;
- SNOG : 170 cm de résidus Selbaie Non Oxydés et 30 cm de moraine (30 avril - 2 mai 2008) ;
- SOG : 170 cm de résidus Selbaie Oxydés et 34 cm de moraine (12 - 14 mai 2008).

Les colonnes et leur montage sont également présentés en détail par Saavedra (2008) et Cosset (2009).

Les variations du diamètre entre les sections seront (partiellement) prises en compte dans les modélisations (voir chapitre 7).

La base des colonnes est surélevée, de sorte que l'on puisse appliquer une succion allant jusqu'à 1 mètre à la base des résidus. La succion est appliquée par l'intermédiaire d'un tube en U (diamètre interne de 1/8 de pouce) fait de PVC flexible transparent. Une céramique poreuse saturée (SoilMoisture, AEV = 0,5 bar, k_{sat} = 3,11.10^{-7} m/s, 15 cm de diamètre, 7,5 mm d'épaisseur) est installée à la base de chaque colonne pour éviter le passage de l'air et la désaturation du tube en U (et ainsi assurer la continuité hydraulique).

Les colonnes sont recouvertes de papier aluminium pour empêcher le développement de bactéries photolithotrophes et autres moisissures sensibles à la lumière (Dagenais, 2005).

La figure 3.3 présente le schéma de montage d'une colonne type. Des photos des colonnes sont présentées à la figure 3.4.

Tableau 3.1: Caractéristiques géométriques des colonnes

Sections (de haut en bas)	Diamètre intérieur			
	MNOG	MOG	SNOG	SOG
Section 4 h = 60 cm	14,4 cm	14,4 cm	14,4 cm	14,4 cm
Section 3 h = 60 cm	14,4 cm	14,4 cm	14,4 cm	14,4 cm
Section 2 h = 60 cm	14,4 cm	15,2 cm	15,3 cm	14,4 cm
Section 1 h = 50 cm	15,3 cm	15,2 cm	15,2 cm	15,2 cm

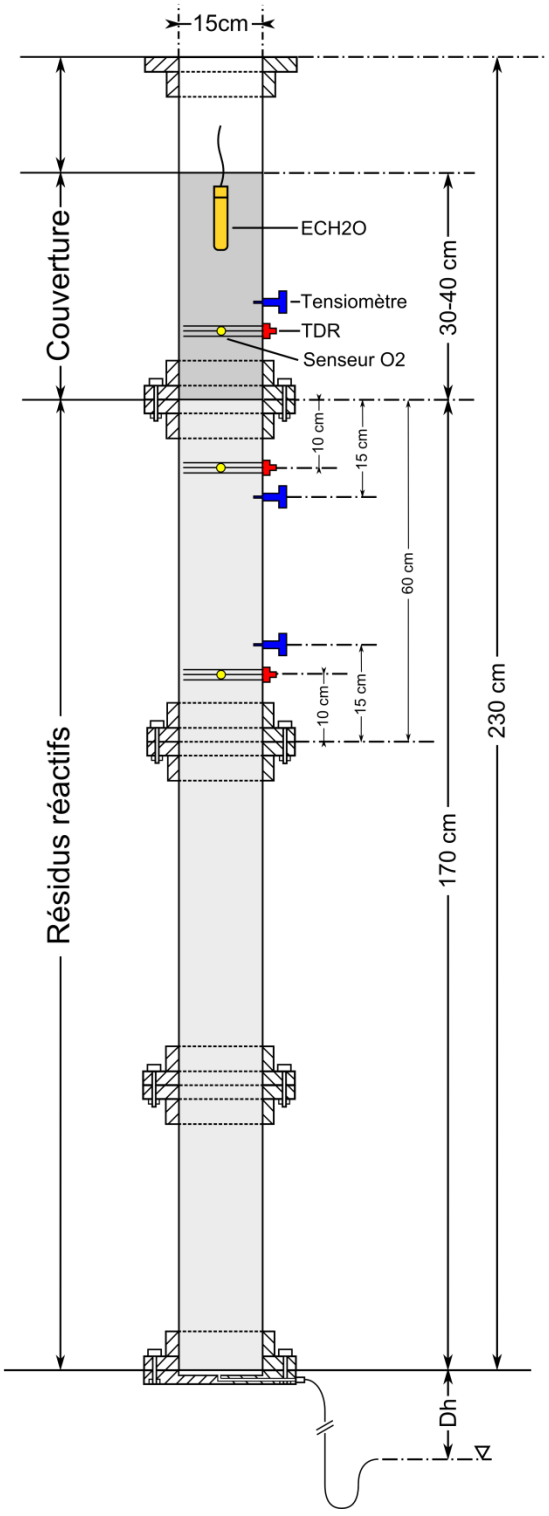


Figure 3.3: Schéma du montage et de l'instrumentation d'une grande colonne



Figure 3.4: Grandes colonnes montées au laboratoire (EPM). 1 : Capteurs Sup ; 2 : Capteurs Mil ; 3 : Capteurs Inf ; 4 : Base des colonnes et sortie d'eau ; 5 : colonnes entourées de papier aluminium

3.3.2 Montage des colonnes

Le montage des colonnes s'inspire des travaux réalisés par Dagenais (2005) et Ouangrawa (2007) et a été décrit en détail par Saavedra (2008) et Cosset (2009).

Les résidus et matériaux de couverture sont placés directement dans les colonnes à l'état saturé, par couches de 15 cm. Ils sont consolidés au moyen d'un piston et d'un bras de levier (rapport de 3,3 en considérant le poids de l'équipement) sur lequel on vient installer une charge de 32 kg (soit 58 kPa)(avec des paliers de charge de 8 kg (14,5 kPa) d'une durée de 8 à 15 minutes selon les matériaux et les colonnes). Entre chaque couche, on laisse également un peu de temps au matériau pour rebondir après le chargement (quelques minutes suffisent généralement). Les sections sont ajoutées au fur et à mesure que la hauteur de matériau s'élève dans la colonne.

Le tassement est suivi au moyen d'un capteur de déplacement (comparateur). Au total, entre 13 et 15 couches ont été nécessaires pour monter chaque colonne. Le compte rendu du montage des colonnes est fourni à l'annexe 3.2. Deux photos du montage sont présentées à la figure 3.5.



Figure 3.5: Etape du montage d'une grande colonne, avec à gauche la consolidation de la première couche dans la première section et à droite la consolidation dans la troisième section (les grandes colonnes comportent 4 sections au total). 1 : Capteur de déplacement ; 2 : Charge sur bras de levier ; 3 : Piston ; 4 : Instruments (TDR et connecteur pour tensiomètre)

3.3.3 Instrumentation des colonnes

3.3.3.1 Installation des équipements

Au cours des essais de mouillage-drainage, on souhaite suivre l'évolution des teneurs en eau, des pressions d'eau, ainsi que des concentrations d'oxygène au sein des matériaux. A cet effet, les instruments suivants ont été installés dans chaque colonne (l'instrumentation est identique pour les quatre grandes colonnes) :

- 3 sondes TDR (3 branches, 20 cm de longueur)(SoilMoisture) pour mesurer la teneur en eau volumique à 120, 160 et 180 cm de la base. Deux de ces sondes sont gainées et ont été installées dans les résidus ; la troisième est non gainée et a été placée dans la couverture. Les sondes gainées, qui ont la branche centrale recouverte d'une céramique isolante, sont conçues spécifiquement pour mieux résister aux conductivités électriques élevées (eaux contaminées par exemple, comme c'est le cas ici). Les lectures de teneurs en eau se font au moyen d'un appareil SoilMoisture Trase 6050X1. La partie des sondes dépassant de la colonne sont isolées avec du ruban adhésif en silicone. Les sondes ont été calibrées (voir section 3.3.3.2) sur les 15 cm de pénétration dans la colonne, permettant ainsi de corriger directement la mesure de la constante diélectrique et de la convertir en teneur en eau volumique réelle. Les sondes TDR sont installées horizontalement (i.e. les barres métalliques sont alignées suivant le plan horizontal), donnant ainsi la teneur en eau volumique aux élévations où elles sont installées ;
- 3 tensiomètres (Omega PX243-15BG) pour mesurer les pressions d'eau (positives et négatives), dont 2 à +5/-5 psi installés à 120 et 160 cm de la base (dans les résidus) et un +15/-15 psi installé à 180 cm (dans la couverture). Ces capteurs sont du type tensiomètre saturés en eau (*water filled tensiometer*). Ils sont branchés directement sur des bougies de céramique poreuse (Soilmoisture, 0,5 bar) en contact avec les résidus. Le système (bougie + connexion métallique + tensiomètre) est saturé avec de l'eau désaérée. Les capteurs ayant tendance à se désaturer au cours des essais (cavitation, osmose, diffusion d'oxygène à travers la céramique...), ils sont resaturés régulièrement à chaque début de cycle avec de petites quantités d'eau désaérée. Les capteurs ont été calibrés à 8 V (voir aussi section 3.3.3.2), avant le début des essais et lors du démontage (à fins de vérifications), et les mesures ont été réalisées avec un voltmètre pour une tension d'entrée de 8,00 V ±0,01 V ;
- 2 (ou 3 pour SNOG et SOG) senseurs à oxygène optiques (Presens Dipping Probe) pour mesurer les concentrations en oxygène dissout et gazeux, installés à 160 et 180 cm (plus 120 cm pour SNOG et SOG). Il s'agit des mêmes capteurs que ceux utilisés pour les cellules de consommation et de diffusion (voir section 3.2.7.) ;
- 1 sonde à capacitance (ECH_2O EC-10, Decagon) pour mesurer la teneur en eau volumique au sommet des colonnes. La sonde est installée verticalement à 5 cm de

profondeur sous la surface (longueur de 10 cm) et donne donc la moyenne de la teneur en eau sur cette épaisseur. Devant l'inconnue que représentait l'utilisation de ces nouvelles sondes dans des matériaux hautement réactifs, il a été décidé de ne les employer que dans les couvertures.

La position des capteurs est montrée aux figures 3.3 et 3.4.

Le couplage des mesures de teneur en eau et de pression d'eau vise à évaluer la courbe de rétention d'eau des matériaux dans les colonnes, pour des indices des vides sensiblement différents de ceux mesurés en cellule Tempe, ainsi que les phénomènes d'hystérésis pouvant apparaitre lors des cycles de mouillage-drainage.

En plus de ces mesures instrumentées, les volumes récupérés à la base des colonnes sont mesurés afin de déterminer les débits de sortie. Les flux d'infiltration au sommet des colonnes en début de cycle ont également été mesurés à plusieurs reprises.

Les lectures de teneur en eau (TDR) et de pression sont prises manuellement. La fréquence des relevés est de l'ordre de deux mesures par jour au début de chaque cycle. Lorsque l'écoulement s'arrête, ces dernières se font plus espacées (d'abord tous les jours, puis tous les deux ou trois jours à la fin du cycle). Les capteurs d'oxygène et sondes ECH_2O prennent des mesures automatiquement toutes les heures.

Un capteur de température et d'humidité relative (Omega OM-62) mesure les conditions atmosphériques de la pièce toutes les heures. Un essai d'évaporation en petite cuvette d'évaporation est lancé simultanément aux essais en colonne pour estimer l'évaporation potentielle (EP). Cette dernière peut également être estimée à partir des données de températures et d'humidité relative (voir section 2.4.3).

3.3.3.2 Calibration des senseurs

Tensiomètres

Les tensiomètres sont alimentés par une source de courant de tension comprise entre 0 et 12 V et renvoient un signal électrique lié à la pression (positive ou négative) appliquée sur leur membrane interne. Le signal n'est pas le même selon le capteur et la source (générateur), et ils doivent donc être calibrés individuellement.

Les tensiomètres utilisés ici ont tous été calibrés à 8V avec une quinzaine de points, autant en pression qu'en succion, et l'interpolation des résultats s'est faite au moyen d'une fonction affine (coefficient de régression R^2 supérieur à 0,99). Les résultats détaillés sont présentés à l'annexe 3.3.

Les calibrations ont été réalisées avant et après les essais pour s'assurer qu'aucune altération n'aurait pu fausser les résultats au cours des cycles de mouillage-drainage. Aucune variation notable n'a été mesurée.

Sondes TDR et ECH2O

Les sondes TDR et ECH2O nécessitent d'être calibrées pour obtenir la teneur en eau volumique réelle des matériaux. Les appareils employés (respectivement le Trase II de SoilMoisture et l'ECM5 de Decagon) interprètent automatiquement les signaux électriques envoyés et reçus par les sondes pour donner une valeur de teneur en eau volumique. Néanmoins, ces instruments n'ont pas été calibrés (initialement, en usine) pour les sols et les chimies d'eau analysés ici. Il a donc été nécessaire de corréler les valeurs mesurées et les teneurs en eau volumiques réelles.

A cet effet, divers contenants (cylindres de matières (plastique, PVC) et de diamètres différents), divers matériaux (sables, résidus, moraine) et diverses qualités d'eau (diverses salinités notamment) ont été employés. Les sondes TDR ont été calibrées pour une profondeur d'enfoncement de 15 cm (pour reproduire leur configuration dans les colonnes). Les sondes ECH2O et TDR sont interchangeables selon les fabricants (i.e. la mesure dans un sol avec une sonde ou une autre du même type est sensée donner le même résultat ; ceci a été vérifié expérimentalement).

La calibration des sondes TDR (gainées et non gainées) s'est basée sur la forme du modèle de Topp et al. (1980). Les valeurs mesurées présentant un certain décalage vis-à-vis de la calibration de base, on a retracé une courbe de tendance sous la forme d'une équation polynomiale d'ordre 3 (voir figure 3.6).

$$\theta_w = 0{,}00004.K_a^3 - 0{,}0021.K_a^2 + 0{,}0481.K_a - 0{,}05 \ (R^2 = 0{,}85) \qquad (5.1)$$

avec : θ_w : teneur en eau volumique [-]
K_a : constante diélectrique mesurée par le Trase II [-]

Le coefficient de corrélation R² est de 0,85 et la dispersion peut atteindre jusqu'à 0,10 (en valeur absolue). Le nombre de mesures permet d'être assez confiants dans ce résultat.

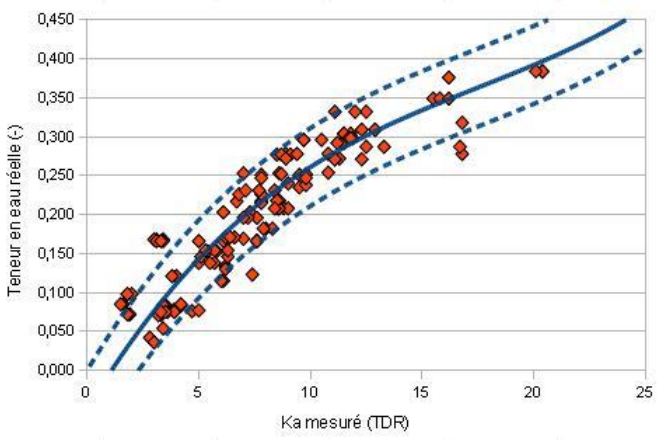


Figure 3.6: Calibration des sondes TDR et courbe de tendance (trait plein ; voir équation 5.1) avec intervalle à ±0,05 (courbes en pointillés)

On note qu'aucune différence ou tendance n'a pu être observée entre les divers matériaux employés, ni entre les sondes gainées et non gainées, ni entre des eaux interstitielles dont la conductivité électrique allait de presque 0 à plus de 8 mS/cm (l'intervalle mesuré dans les eaux de drainage à la base des colonnes).

La calibration des sondes ECH2O a été réalisée de la même manière. La courbe de corrélation est une fonction affine (voir figure 3.7) dont l'équation est :

$$\theta_w = 0.548.\theta_{w,ECH2O} + 6{,}592 \ (R^2 = 0{,}90) \qquad (5.2)$$

Le coefficient de corrélation R² de l'équation 5.2 est de 0,90. Comme pour les sondes TDR, aucune tendance n'a été observée concernant le type de sol ou la qualité de l'eau employée.

En complément de la calibration des senseurs, une correction affine a ensuite été employée pour faire coïncider les résultats des sondes TDR et ECH_2O avec les mesures de teneurs en eau volumiques mesurées au montage et au démontage (système de deux équations à deux inconnues).

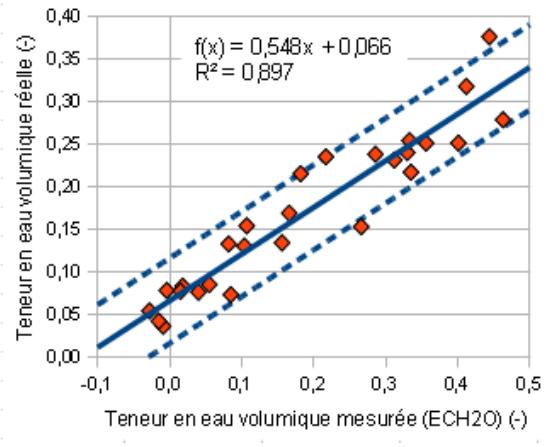


Figure 3.7: Calibration des sondes ECH$_2$O et courbe de tendance (trait plein) avec intervalle à ±0,05 (pointillés)

La dispersion des mesures de calibration engendre une certaine incertitude sur les résultats, en particulier sur l'estimation des CRE des matériaux dans les colonnes. En raison du nombre de tests de calibration réalisés, il est néanmoins possible de demeurer relativement confiants dans les résultats et de juger que les tendances sont respectées. Afin d'améliorer la représentativité des mesures, on a également callé ces résultats sur des mesures directes réalisées au démontage des colonnes. L'estimation de la CRE dans les colonnes sera également corrigée lors de la calibration des modèles numériques (voir section 7.1.3), où l'on mettra d'avantage l'emphase sur la représentation des tendances observées.

Capteurs d'oxygène

Les capteurs optiques à oxygène (DP Probe Oxy10, PreSens) nécessitent également d'être calibrés en raison de variations selon le lecteur et le capteur employés. Comme l'interprétation des données de réfraction se fait de manière linéaire entre 0 et 100% (représentant la fraction d'oxygène présent en fonction de la quantité d'oxygène admissible dans le milieu), on a mesuré (selon les spécifications du fabriquant) :

- 0% d'oxygène dans une solution d'eau désaérée mélangée avec du sulfite de sodium (Na_2SO_3)(1g/100mL) ;

- 100% d'oxygène dans une eau sursaturée en air au moyen d'un bulleur puis laissée à l'air libre pendant quelques minutes pour qu'elle retrouve un équilibre avec la concentration atmosphérique.

Les capteurs sont également fonctions de la température. Les calibrations et les mesures ont été réalisées pour une température d'environ 22°C (température moyenne du lixiviat mesurée sur quelques cycles à la sortie des colonnes).

3.3.4 Essai de mouillage-drainage

Environ tous les 30 jours (mais parfois plus lorsque l'on souhaitait évaluer les effets d'une sécheresse prolongée), de l'eau est ajoutée au sommet des grandes colonnes pour simuler une précipitation. On a utilisé :

- 10 cm d'eau de procédé (surnageant des chaudières de résidus Goldex) pour les 5 premiers cycles dans la colonne MNOG ;
- 10 cm d'eau déionisée pour tous les autres cycles et colonnes.

Le tableau 3.2 synthétise les caractéristiques chimiques des eaux ajoutées (décrites ci-dessus ; une seule analyse a été réalisée sur chacune). Dans le cas de l'eau de procédé des résidus Goldex, le bilan ionique est de +2,2% ce qui indique que l'analyse est valide. Dans le cas de l'eau déionisée, on n'a pas mesuré d'anions, mais les concentrations des autres éléments sont faibles.

Les volumes d'eau ajoutés au sommet des grandes colonnes équivalent à environ un mois de précipitation sur les sites étudiés (selon le climat moyen de l'Abitibi) et correspondent à une valeur généralement employée dans des essais du même type (e.g. Aubertin et al., 1995, 1999; Aachib, 1997; Dagenais, 2005). Ils correspondent à un volume d'eau compris entre 0,11 et 0,14 fois le volume des vides dans la colonne, soit typiquement entre 0,15 et 0,22 fois le volume d'eau contenu dans la colonne à la fin de chaque cycle. En d'autres termes, à la fin des essais, on devrait avoir ajouté entre 1 et 3 fois le volume des vides et entre 1,8 et 4,2 fois le volume d'eau résiduelle dans les colonnes. Le volume d'eau nécessaire pour lessiver des contaminants dans un milieu poreux dépend de nombreux facteurs (qualité de l'eau, vitesse d'écoulement et surtout propriétés d'adsorption de chaque contaminant ; Appelo et Postma, 1993). Il y a de bonnes raisons de penser que la contamination initiale dans les colonnes a un effet sur la qualité du lixiviat prélevé à leur base pendant certain nombre de cycles.

Tableau 3.2: Caractéristiques des eaux de mouillage ajoutées au sommet des colonnes à chaque cycle. Les valeurs de concentrations sont données en ppm

	Goldex Proc.	Eau déionisée
pH (-)	~6,2	~6
Cond. Elect.	2,82 µS/cm	1,30 µS/cm
SO_4	1500	< 0,01
Fe	0,02	< 0,01
K	31,6	1,58
Mg	24,7	< 0,01
Ca	490	0,48
Mn	< 0,01	< 0,01
Al	0,1	< 0,1
Zn	0,017	< 0,01
Ni	0,02	< 0,01
Na	122	< 0,01
Si	4,0	< 0,1
Pb	0,12	0,02
Cu	< 0,01	< 0,01
Co	0,04	< 0,01
Cd	< 0,01	< 0,01

Au début de chaque cycle, le tube en U placé à la base des colonnes est remonté à la hauteur de la céramique afin d'aider la saturation des connexions et l'application de la succion par la suite. Après une ou deux journées, on baisse la sortie d'eau à 90 cm sous la céramique pour le reste de l'essai. Durant toute la période de drainage, on s'assure que le tube en U demeure bien saturé, et on le remplit d'eau distillée au besoin (une fois les échantillonnages terminés).

Le sommet de la colonne est laissé à l'air libre pour permettre l'évaporation.

Un total de 19 cycles a été appliqué sur les colonnes MNOG, SNOG et SOG, et 12 cycles sur la colonne MOG. Le tableau 3.3 récapitule les dates de début de chaque cycle ainsi que les durées de chacun d'eux.

Tableau 3.3: Date et durée (en jours) des cycles de mouillage-drainage sur les grandes colonnes

Date	MNOG	MOG	SNOG	SOG
29 juillet 2008				
5 août	Cycle 1 55 jours		Cycle 1 (48j)	
19 août				Cycle 1 (34j)
22 septembre	C2 (28j)		C2 (28j)	C2 (28j)
20 octobre	C3 (28j)		C3 (28j)	C3 (28j)
17 novembre	C4 (21j)		C4 (21j)	C4 (21j)
8 décembre	C5 (31j)		C5 (31j)	C5 (31j)
8 janvier 2009	C6 (33j)		C6 (33j)	C6 (33j)
10 février	C7 (31j)	Cycle 1 (31j)	C7 (31j)	C7 (31j)
13 mars	C8 (32j)	C2 (32j)	C8 (32j)	C8 (32j)
14 avril	C9 (31j)	C3 (31j)	C9 (31j)	C9 (31j)
15 mai	C10 (28j)	C4 (28j)	C10 (28j)	C10 (28j)
12 juin	C11 (45j)	C5 (45j)	C11 (45j)	C11 (45j)
27 juillet	C12 (35j)	C6 (35j)	C12 (35j)	C12 (35j)
31 août	C13 (28j)	C7 (28j)	C13 (28j)	C13 (28j)
28 septembre	C14 (30j)	C8 (30j)	C14 (30j)	C14 (30j)
28 octobre	C15 (33j)	C9 (33j)	C15 (33j)	C15 (33j)
30 novembre	C16 (50j)	C10 (50j)	C16 (50j)	C16 (50j)
19 janvier 2010	C17 (35j)	C11 (35j)	C17 (35j)	C17 (35j)
23 février	C18 (48j)	C12 (44j)	C18 (48j)	C18 (48j)
12 avril	C19 (71j)		C19 (38j)	C19 (36j)
Total en cycles Total en jours	19 cycles (692j)	12 cycles (422j)	19 cycles (653j)	19 cycles (637j)

3.3.5 Analyses chimiques du lixiviat

On analyse deux fois par cycle le lixiviat récupéré à la sortie du tube en U.

On laisse toujours s'écouler au moins 25 mL (soit deux fois le volume du tube en U) avant de récupérer le lixiviat pour analyse, afin de diminuer les risques de mélanges et autres effets parasites.

Les échantillons sont prélevés dans de petites bouteilles en plastique (type 2) opaques, sur lesquelles on installe un bouchon pour limiter l'évaporation. Les volumes sont mesurés par masse (directement dans leur bouteille), lorsqu'il s'agit d'échantillon à analyser (afin d'éviter toute contamination), ou au moyen d'une éprouvette graduée le reste du temps.

Les volumes prélevés pour analyse chimique sont de l'ordre de 100 à 200 mL, récoltés sur une période pouvant aller de quelques heures à deux ou trois jours. Un certain effet de mélange pourrait donc se produire (on en tiendra compte dans les calibrations, voir section 8.2). Sur chaque échantillon de lixiviat récupéré, on réalise les mesures suivantes :

- pH (pH-mètre Oakton pH11) ;
- conductivité électrique (Accumet AP85) ;
- composition chimique (absorption atomique ; Aanalyst 200 PerkinElmer Instruments, au laboratoire de géochimie de l'EPM) ;
- concentrations en sulfates (spectrophotomètre Smartspectro Lamotte) ;
- concentrations en fer II et en fer total (spectrophotomètre Smartspectro Lamotte).

Les potentiels d'oxydo-réduction ont été mesurés mais dans de mauvaises conditions (sonde défectueuse) de telle sorte que ces résultats ne sont pas exploitables. On pourra toutefois estimer les valeurs de Eh à partir des simulations géochimiques présentées au chapitre 8.

Les analyses sont toujours réalisées le plus rapidement possible après avoir récupéré l'échantillon afin d'éviter que la géochimie de la solution n'évolue. Pour les sulfates et le fer, les mesures sont faites sur les premiers millilitres récupérés dans les bouteilles d'échantillonnages (soit quelques minutes après que le lixiviat se soit écoulé hors du tube en U). Le pH et la conductivité électrique sont mesurés lorsque les bouteilles sont remplies, soit entre un et deux jours après le début de l'échantillonnage. En raison de la durée du prélèvement, un certain effet de mélange est anticipé. Enfin, les analyses par absorption atomique sont habituellement réalisées dans le mois suivant l'échantillonnage.

Dans tous les cas, les échantillons de lixiviat sont conservés au froid (5°C) dans les bouteilles en plastique hermétiquement fermées (pas d'évaporation ni d'apport d'oxygène). Pour s'assurer de la mise en solution des éléments chimiques avant les analyses (absorption atomique), une petite

quantité (2 mL, soient des quantités négligeables) d'acide chlorhydrique concentré est ajoutée aux échantillons (après la mesure du pH). Ainsi, même si des précipitations se sont produites lors du stockage, celles-ci sont re-dissoutes avant les mesures. Les échantillons n'ont cependant pas été filtrés, ce qui pourrait causer une légère surestimation des concentrations en éléments dissouts.

Des analyses complémentaires ont aussi été réalisées sur l'eau (déionisée) ajoutée au sommet des colonnes, au début des cycles 6, 12 et 18, pour s'assurer que la qualité de l'eau était toujours la même tout au long des essais.

Le choix des éléments à analyser par absorption atomique a été fait sur la base du surnageant récupéré lors de la consolidation des colonnes, qui a été analysé exhaustivement par ICP-AES afin de déterminer les espèces prédominantes. Il a été décidé de mesurer à chaque cycle les concentrations en fer, potassium, magnésium, calcium, manganèse, aluminium, zinc, nickel, sodium, silicium, plomb, cuivre, cobalt et cadmium.

3.3.6 Démantèlement des colonnes

Le démontage a été réalisé par couche de 7 à 8 cm (parfois un peu plus selon l'état du matériau, notamment s'il était très fracturé et plus ou moins friable). Les colonnes ont d'abord été démontées par section puis démoulées (figure 3.8) en appliquant une force sur le sommet de chacune d'elle avec le même outil (piston perforé) qui a servi à les consolider. La force appliquée n'a pas produit de tassement notable des matériaux (du moins visuellement).

Les dimensions de chaque couche ont été mesurées (hauteur, diamètre) et l'échantillon a été pesé. Une ou deux mesures d'indice des vides e (volumes mesurés avec de petits anneaux métalliques) ont été réalisées sur chaque couche. On a mesuré également la teneur en eau massique w, et des prélèvements ont été réalisés pour mesurer la densité relative des grains D_r, la minéralogie (DRX), la teneur en carbone et soufre totaux (LECO), ainsi que pour obtenir leur courbe granulométrique. Ces résultats seront comparés aux mesures réalisées avant le montage (voir chapitres 5 et 6).



Figure 3.8: Exemple du démoulage d'une section de grande colonne (SOG) et découpage en plusieurs tranches pour caractérisation

On n'a constaté au démontage aucune altération notable des instruments de mesure.

3.4 Essais en petites colonnes

Le but des essais en petites colonnes est principalement d'étudier le comportement géochimique des résidus en l'absence de couverture et avec un faible degré de saturation. Ces colonnes de résidus désaturés représentent en quelque sorte le modèle du pire cas pour l'exposition et la production de DMA. Les propriétés hydrogéologiques sont suivies à titre indicatif, mais l'emphase est mise sur les analyses géochimiques qui sont semblables à celles menées sur les grandes colonnes. Le principe général de l'essai reste identique à celui mené sur les grandes colonnes (voir aussi Aachib, 1997 et Ouangrawa, 2007 qui ont employé des essais semblables).

3.4.1 Caractéristiques des colonnes

Quatre petites colonnes cylindriques, constituées de plexiglas ont été montées. Elles mesurent 40 cm de haut, pour 10,0 ou 10,1 cm de diamètre interne. Elles sont remplies de 34,1 à 36,5 cm de résidus, le reste étant laissé vide pour ajouter de l'eau à chaque cycle. Après quelques essais, il a été décidé d'ajouter une couche de sable pour limiter l'évaporation et la dessiccation des surfaces et éviter que des passages préférentiels ne se forment.

De manière plus détaillée, les caractéristiques des petites colonnes sont :

- MNOP : 34,4 cm de résidus Manitou Non Oxydés avec 2,3 cm de sable ; diamètre de 10,1 cm et hauteur totale de 45,2 cm (montée du 27 avril au 5 mai 2009) ;
- MOP : 34,1 cm de résidus Manitou Oxydés avec 2,7 cm de sable ; diamètre de 10,0 cm et hauteur totale de 44,3 cm (21 - 25 janvier 2009) ;
- SNOP : 36,5 cm de résidus Selbaie Non Oxydés avec 3,8 cm de sable ; diamètre de 10,1 cm et hauteur totale de 44,8 cm (juin 2008) ;
- SOP : 36,2 cm de résidus Selbaie Oxydés avec 3,5 cm de sable ; diamètre de 10,1 cm et hauteur totale de 45,7 cm (juin 2008).

La figure 3.9 montre les caractéristiques géométriques de ces colonnes.

L'application de la succion se fait, comme pour les grandes colonnes, par l'intermédiaire d'un tube flexible transparent en PVC. Deux cas se présentent :

- MNOP : une céramique (SoilMoisture, AEV = 0,5 bar, $k_{sat} = 3{,}11.10^{-7}$ m/s) est installée à la base de la colonne pour éviter le passage de l'air et la désaturation du tube en U. La céramique devrait demeurer saturée malgré l'effet de l'évaporation (plus forte ici que dans les grandes colonnes). La continuité hydraulique étant assurée, il est possible d'appliquer une succion au cours de l'essai (jusqu'à 2 mètres sous la base de la colonne) ;
- MOP, SNOP et SOP : montées sans céramique, le tube en U est directement en contact avec les résidus (via un filtre à cigarette pour éviter la migration des particules et le colmatage des connexions). Il était prévu que l'AEV élevé des résidus permettrait de maintenir la succion dans le tube, mais cela s'est avéré être une hypothèse erronée. Lorsque la succion dans le tube devient trop importante, ou après quelques jours de sécheresse, celui-ci a tendance à se désaturer. La succion est alors appliquée par les phénomènes d'évaporation (avec un drainage libre à la base de la colonne). Les tubes en U demeurent cependant partiellement saturés dans leur partie basse, permettant ainsi de limiter les reflux d'oxygène à la base des petites colonnes.

Les petites colonnes sont, comme les grandes, recouvertes de papier aluminium (figure 3.10).

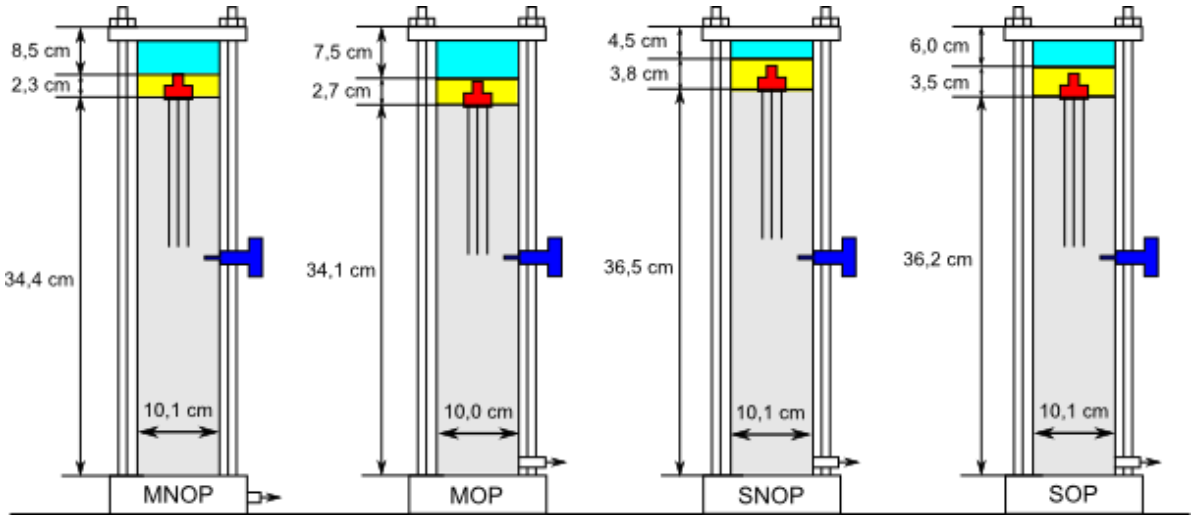


Figure 3.9: Schéma du montage des petites colonnes. Les caractéristiques géométriques de chacune d'entre elles sont indiquées, ainsi que les positions des capteurs ; on voit les résidus en gris, la couche de sable en jaune, et l'espace laissé vide (pour ajouter de l'eau à chaque cycle de mouillage) en bleu. Le sommet des petites colonnes demeure ouvert à l'atmosphère en tout temps

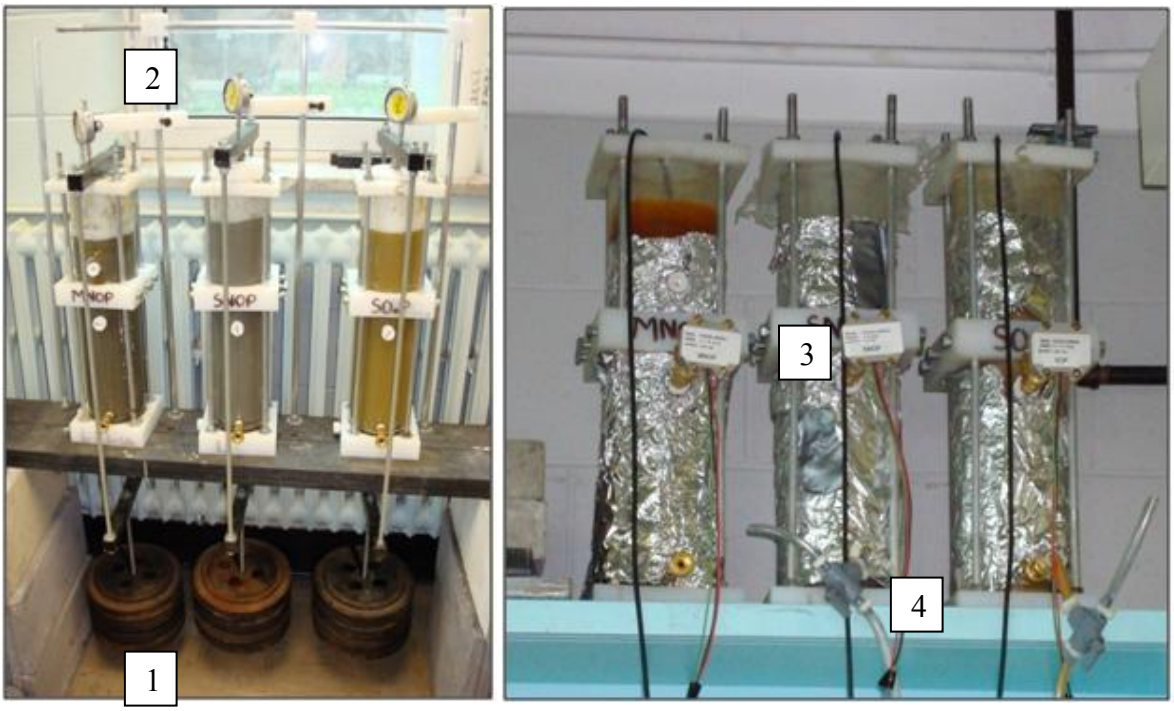


Figure 3.10: A gauche : consolidation de la seconde couche dans les petites colonnes MNOP, SNOP et SOP. A droite : Petites colonnes en place, recouvertes de papier aluminium. 1 : Charge ; 2 : Capteurs de déplacement ; 3 : Tensiomètre ; 4 : Sortie d'eau

3.4.2 Montage des colonnes

Les résidus, initialement saturés, sont directement consolidés dans les petites colonnes (figure 3.10), en deux couches d'environ 15 cm. On applique une charge (directe, sans bras de levier) de 32 kg (+ masse de l'équipement de consolidation, soit 36,5 kg au total), soit 45 kPa par paliers de 8 kg (10 kPa). Les paliers ont une durée d'environ 2 jours. On suit le déplacement des résidus au moyen d'un comparateur. Lorsque celui-ci est stabilisé, on ajoute la masse suivante. On procède de la même façon pour la seconde couche de résidus.

La couche de sable (couche jaune dans la figure 3.9) a été ajoutée (16 février 2009) à la main et sans consolidation, de la manière la plus lâche possible, afin d'optimiser son rôle de barrière capillaire à l'évaporation.

3.4.3 Instrumentation des colonnes

Comme précisé plus haut, l'objectif de ces essais est avant tout d'évaluer le comportement géochimique des résidus. On réalise aussi quelques mesures de teneurs en eau et de pressions d'eau à chaque cycle. Les instruments suivants ont été installés :

- une sonde TDR gainée de 20 cm plantée verticalement au sommet des colonnes. Les calibrations ayant été effectuées pour une profondeur d'enfoncement de 15 cm, les sondes dépassent des résidus (cette partie est isolée avec du ruban adhésif). La teneur en eau volumique mesurée est donc une moyenne sur la partie supérieure des colonnes ;
- un tensiomètre Omega PX243-15BG +5/-5 psi installé au centre de chaque petite colonne pour mesurer la pression d'eau (positive et négative) dans les colonnes. Comme pour les grandes colonnes, le système doit être saturé en eau désaérée au début de chaque cycle.

En raison de l'éloignement des deux capteurs (une dizaine de centimètres), il n'est pas souhaitable d'utiliser ces résultats directement dans l'estimation de la courbe de rétention d'eau des matériaux dans les colonnes.

3.4.4 Essai de mouillage-drainage

On ajoute régulièrement (normalement tous les trente jours, ou plus, en même temps que les grandes colonnes ; voir tableau 3.3) un certain volume d'eau déionisée au sommet des petites

colonnes. L'épaisseur d'eau ajoutée est limitée par l'espace libre au sommet de la couche de sable. Il a été décidé de réduire les volumes d'eau au cours de l'essai, après l'ajout des couches de sable, afin d'accélérer la désaturation des colonnes et ainsi de favoriser les réactions chimiques. Les volumes ajoutés au sommet des petites colonnes au début de chaque cycle sont synthétisés au tableau 3.4.

Tableau 3.4: Volume d'eau ajouté au sommet des petites colonnes au début de chaque cycle (en mL)

Date	MNOP	MOP	SNOP	SOP
29 juillet 2008			550	550
5 août			550	550
19 août			550	550
22 septembre			550	550
20 octobre			550	550
17 novembre			550	550
8 décembre			550	550
8 janvier 2009			550	550
10 février		550	550	550
13 mars		700	500	600
14 avril		700	500	600
15 mai	500	500	400	500
12 juin	500	500	400	500
27 juillet	500	500	400	500
31 août	500	500	400	500
28 septembre	500	500	400	500
28 octobre	500	500	400	500
30 novembre	500	500	400	500
19 janvier 2010	500	500	400	500
23 février	500	500	400	500
12 avril	500	500	400	500

Au début de chaque cycle, on ajoute donc un volume d'eau correspondant à environ 0,4 fois le volume des pores, soit environ 0,7 à 0,9 fois le volume d'eau restant dans les petites colonnes à la fin de l'essai. Au terme des essais, on aura donc ajouté un volume d'eau total de 4 à 7,6 fois le volume des pores ou encore 7 à 17 fois le volume d'eau résiduelle dans les colonnes.

Au début de chaque cycle, le tube de sortie en U est remonté environ 20 cm au-dessus de la base de la colonne. Une fois saturé, il est graduellement descendu à son élévation finale (-200 cm sous la base de la colonne pour MNOP, - 45 cm pour MOP, -30 cm pour SNOP et -35 cm pour SOP).

Le sommet des petites colonnes est laissé ouvert à l'air libre pour permettre l'évaporation et le développement de succions maximales dans les résidus.

3.4.5 Analyses chimiques du lixiviat

L'analyse géochimique du lixiviat récupéré à la sortie du tube en U est réalisée une fois par cycle.

On laisse s'écouler au moins 15 mL (soit deux fois le volume du tube en U) avant de récupérer le lixiviat pour analyse. Les échantillons sont prélevés dans de petites bouteilles en plastique opaques, sur lesquelles on installe un bouchon pour empêcher l'évaporation.

Les volumes prélevés sont généralement de l'ordre de 50 mL, sur une période pouvant aller de quelques heures à trois ou quatre jours. On mesure aussi le débit de sortie.

On réalise les mêmes mesures que pour les échantillons des grandes colonnes sur chaque échantillon de lixiviat récupéré (voir section 3.3.5 pour plus de détails).

3.4.6 Démantèlement des colonnes

Au démontage, les colonnes sont d'abord démoulées (avec le même outil qui a servi à les consolider) puis découpées en 4 tranches.

La dimension de chaque tranche est mesurée (hauteur, diamètre) et l’échantillon est pesé. On fait sécher pour obtenir la teneur en eau massique, et des prélèvements sont réalisées pour mesurer la densité relative des grains, la minéralogie, la composition en carbone et soufre totaux, ainsi que pour déterminer leur courbe granulométrique. Les mesures de l'indice des vides n'ont pu être réalisées en raison de la friabilité des matériaux ou de leur trop faible teneur en eau (les échantillons se défaisaient à la moindre force appliquée). L’indice des vides dans les petites

colonnes est donc estimé de façon globale sur chaque tranche (dont on connait la masse et les dimensions). Ces résultats sont comparés aux mesures réalisées lors du montage, pour évaluer si des changements notables sont survenus dans les colonnes aux cours des cycles de mouillage-drainage (voir section 5.1.1).

Il est à noter qu'aucun précipité, de sels ou de produits d'oxydation, n'a été observé à la surface des colonnes au démontage.

CHAPITRE 4 RÉSULTATS DE LA CARACTÉRISATION DES MATÉRIAUX AU LABORATOIRE ET *IN SITU*

Afin de mieux comprendre les phénomènes observés dans les essais en colonne et sur le terrain, il est impératif de réaliser une caractérisation précise et relativement exhaustive des matériaux étudiés. Les différentes méthodes d'essais ont été décrites au chapitre 3. On présente ici les résultats des mesures réalisées sur les résidus et les matériaux de couverture, avant le début des essais en colonnes et après leur démontage. On présente également les principaux résultats des mesures et essais réalisés sur le terrain.

4.1 Résultats des essais de laboratoire

4.1.1 Granulométrie

Les figures 4.1 et 4.2 présentent les courbes granulométriques des 6 matériaux étudiés dans le cadre de ce projet. Les courbes moyennes sont comparées à la figure 4.3. On présente l'ensemble des courbes obtenues lors des analyses granulométriques réalisées sur un même matériau ainsi que la courbe moyenne. Il s'agit ici des analyses réalisées avant le montage des colonnes.

Le tableau 4.1 rassemble les caractéristiques importantes de ces courbes, soit :

- les valeurs de D_{10}, D_{50} et D_{60}, qui représentent les diamètres correspondant à un pourcentage passant cumulatif de 10%, 50% et 60% ;
- le coefficient d'uniformité ($C_U = D_{60} / D_{10}$) qui est un indicateur de l'uniformité (ou de l'étalement) de la granulométrie d'un matériau ;
- la fraction passant le tamis de 80 μm (taille généralement admise pour distinguer les sables (grossiers et fins) des silts) ;
- la fraction inférieure à 2 μm (taille généralement admise pour les argiles).

Ces six matériaux peuvent être considérés comme des silts peu plastiques (ML, selon la classification USCS). Les valeurs du D_{10} et du pourcentage passant 2 μm sont à peu près semblables (±0,9 μm et ±1,2% respectivement)

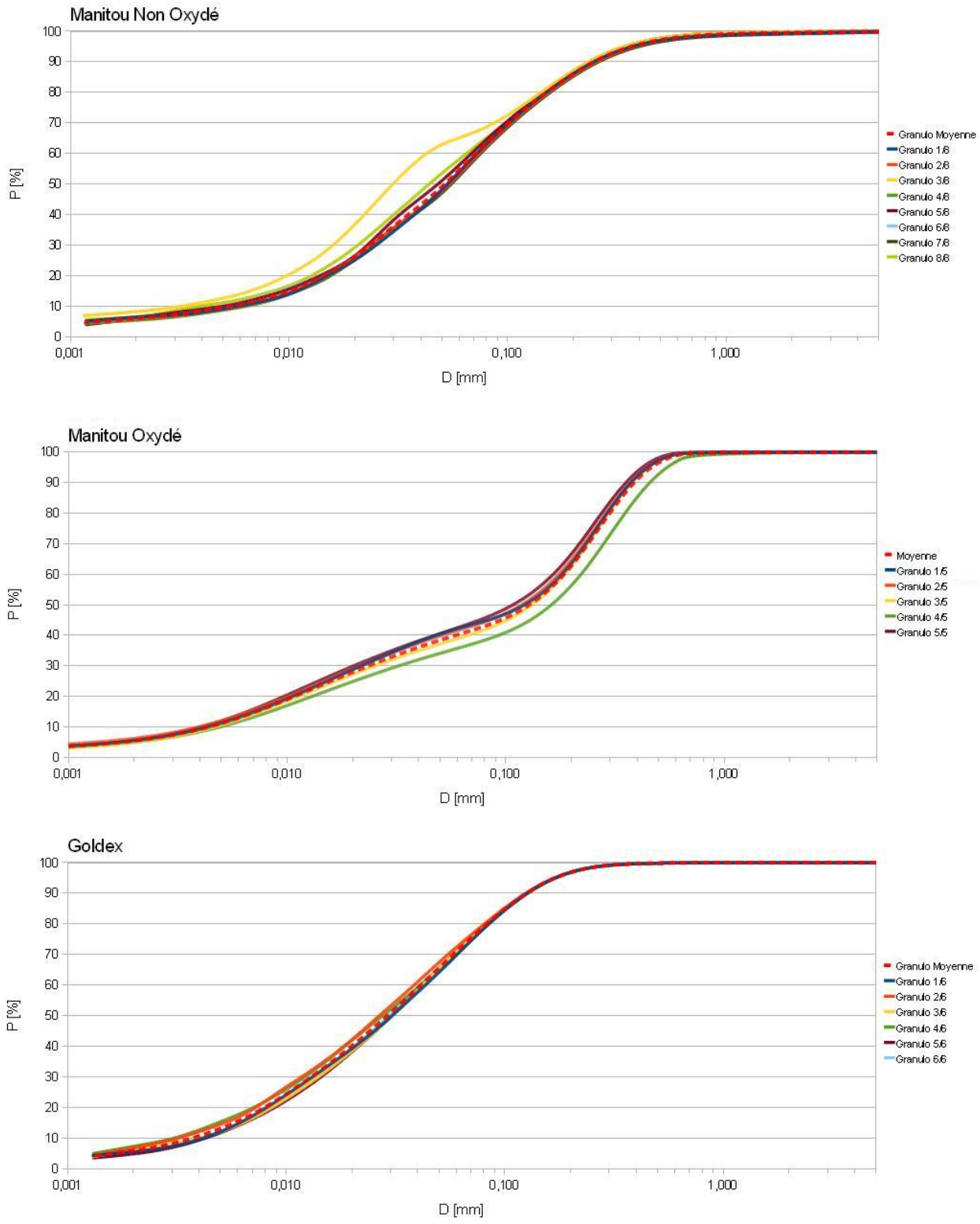


Figure 4.1: Courbes granulométriques des résidus Manitou et Goldex

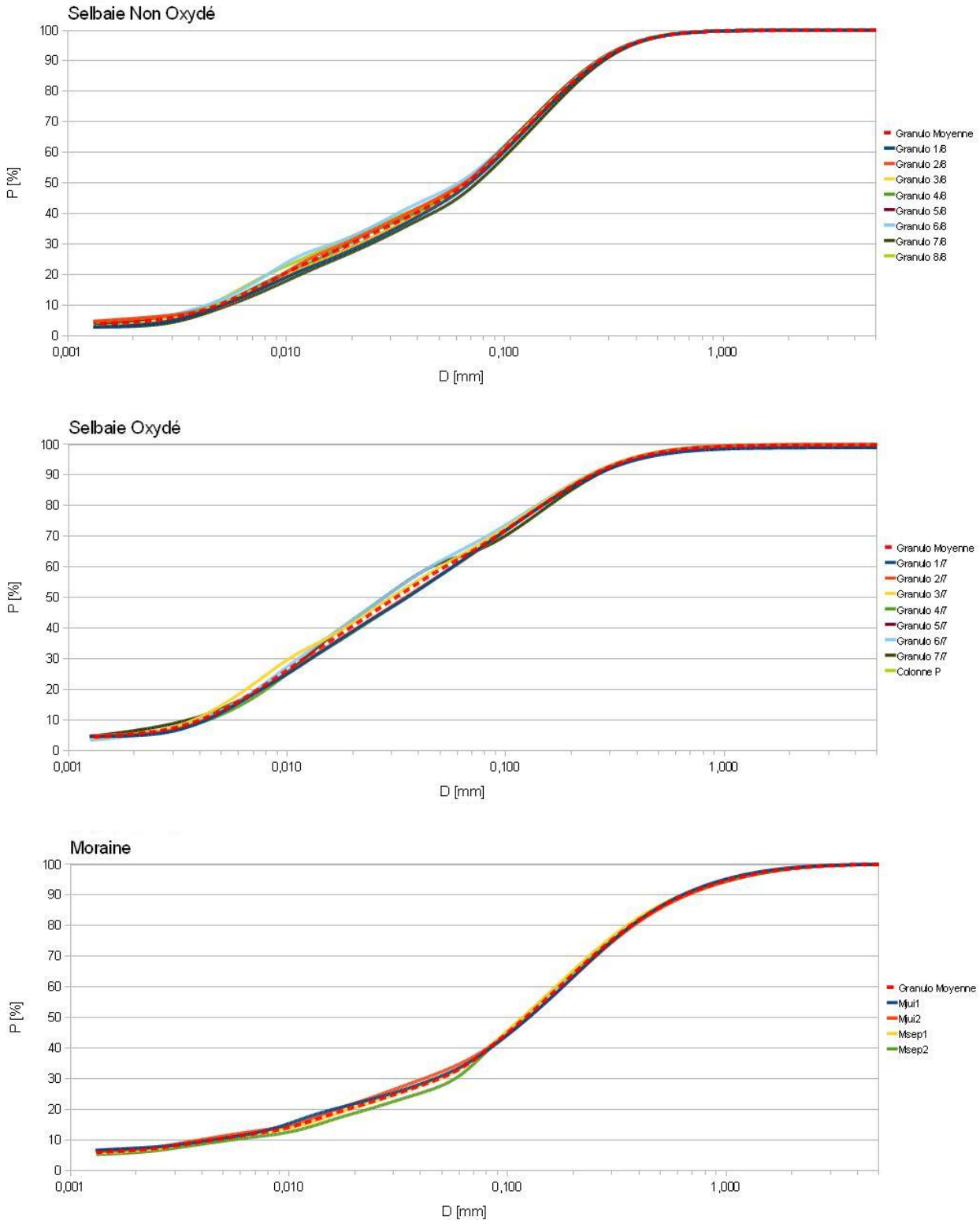


Figure 4.2: Courbes granulométriques des résidus Selbaie et de la moraine

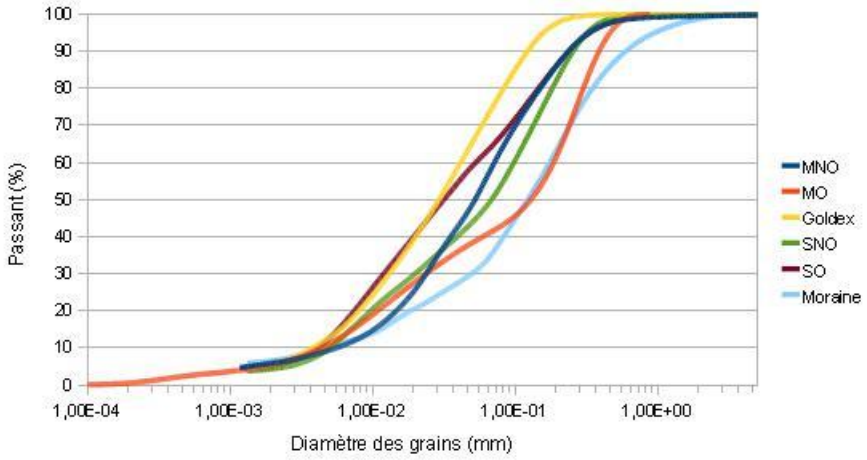


Figure 4.3: Courbes granulométriques moyennes des matériaux étudiés

Tableau 4.1: Caractéristiques des courbes granulométriques moyennes des divers matériaux étudiés

Matériaux	D_{10} (mm)	D_{50} (mm)	D_{60} (mm)	C_U (-)	< 80 µm (%)	< 2 µm (%)
MNO	0,0056	0,0534	0,0717	12,7	64,5	5,9
MO	0,0044	0,1292	0,1870	42,4	42,9	5,4
Goldex	0,0038	0,0292	0,0418	10,9	79,3	5,7
SNO	0,0051	0,0695	0,1038	20,4	53,3	4,2
SO	0,0042	0,0304	0,0522	12,4	66,6	5,1
Moraine	0,0046	0,1296	0,1837	40,0	39,4	6,5

Les résidus MO et la moraine sont les matériaux les plus grossiers, avec respectivement des D_{60} de 0,1870 mm et 0,1837 mm, et des pourcentages passants 80 µm de 42,9% et 39,4%. Ils sont également les plus étalés (C_U respectivement de 42,4 et 40,0).

Les résidus Goldex sont les plus fins, avec un D_{60} de 0,0418 mm et un pourcentage passant 80 µm de plus de 79%. Il est aussi le plus uniforme avec un C_U de 10,9.

Les résidus MNO et SO sont relativement semblables : D_{60} de 0,0717 mm et 0,0522 mm respectivement, pourcentage passant 80 µm de 64,5% et 66,6%, et C_U de 12,7 et 12,4.

Les résidus SNO sont également plutôt fins avec un D_{60} de 0,1038 mm et un pourcentage passant 80 µm de 53,3% (comparables à MNO et SO), mais le C_U est plus élevé que pour MNO et SO (20,4).

Les granulométries des matériaux testés sont semblables à celles habituellement rencontrés pour les résidus miniers de divers sites au Québec (e.g. Aubertin et al., 2002; Bussière, 2007).

La figure 4.4 présente les courbes granulométriques mesurées au démontage des colonnes à différentes hauteurs. Les courbes granulométriques initiales moyennes (présentées à la figure 4.3) sont également montrées à titre de comparaison.

On constate que, pour la plupart des matériaux, aucune différence notoire n'est observable entre les courbes granulométriques obtenues avant et après les essais en colonnes. La plupart des courbes se situent dans un intervalle de ±5%. A titre de comparaison, les courbes granulométriques obtenues sur un même matériau (figures 4.1 et 4.2) sont aussi dispersées que ces résultats.

Les granulométries n'évoluent pas significativement avec l'élévation dans la colonne.

On note néanmoins à la figure 4.4 quelques résultats inattendus, mais ceux-ci peuvent trouver une explication simple :

- la courbe granulométrique SNOG - Moraine, obtenue à 190 cm, présente une forme improbable, et est probablement le résultat d'une erreur expérimentale ;
- la courbe granulométrique SNOG - Selbaie Non Oxydé obtenue à 165 cm, est passablement plus grossière qu'attendu, mais la proximité avec l'interface résidus-couverture laisse penser qu'un mélange a pu se produire avec la moraine sus-jacente (laquelle est plus grossière que les résidus).

On peut donc considérer que la granulométrie des matériaux employés n'a pas évolué de manière notable au cours des essais.

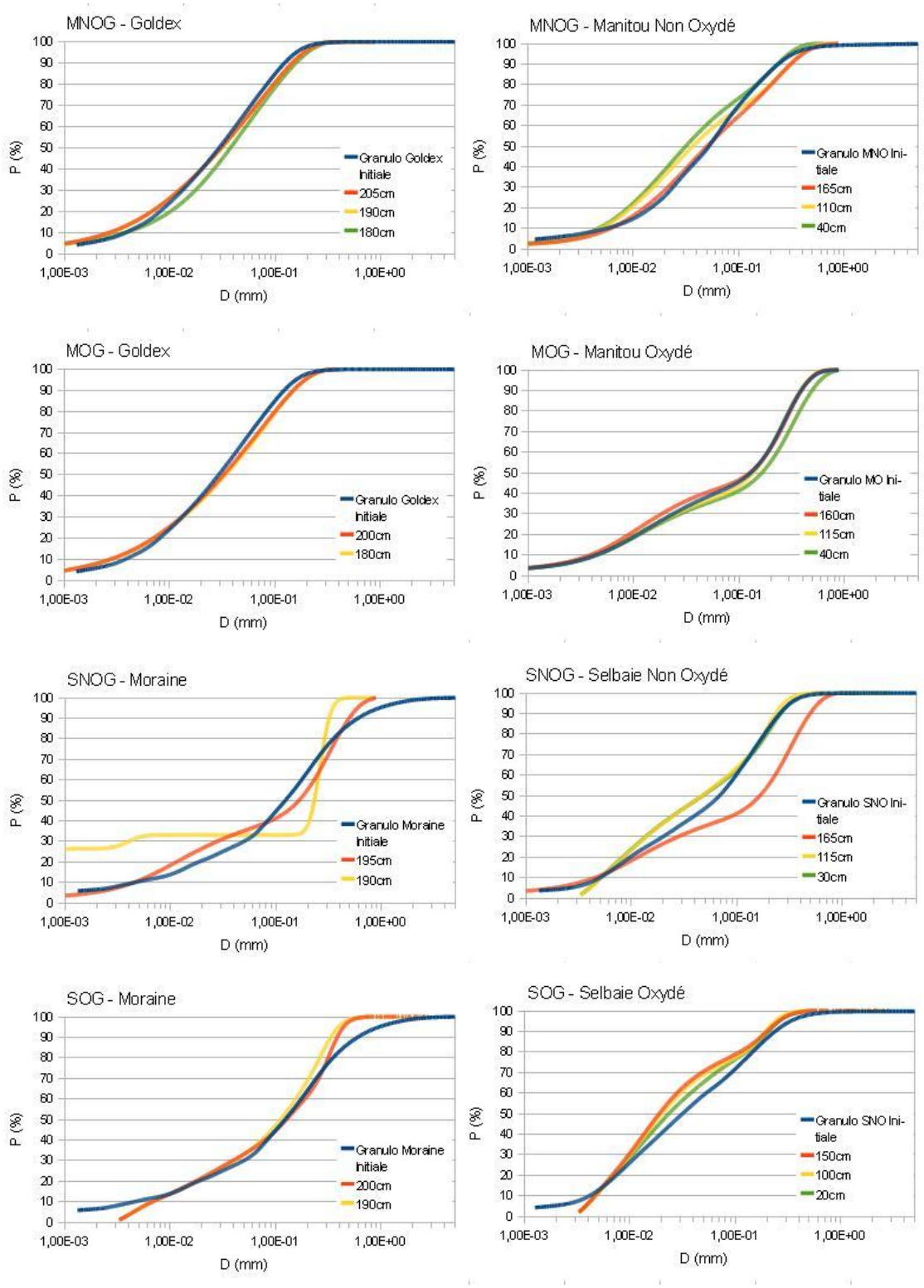


Figure 4.4: Comparaison des granulométries au début et à la fin des essais en colonnes. Les élévations (mesurées par rapport à la base des colonnes) auxquelles ont été prélevés les échantillons analysés sont indiquées sur les graphiques

4.1.2 Densité relative des grains

Le tableau 4.2 donne les valeurs des densités relatives de chacun des matériaux, mesurées avant le début des essais en colonnes. Il s'agit de valeurs moyennes pour l'ensemble des mesures au pycnomètre réalisées sur un même matériau.

La figure 4.5 synthétise les valeurs de densités relatives mesurées au démontage des colonnes pour différentes élévations. Afin de visualiser les éventuelles différences, elles sont présentées graphiquement en superposant (comme c'est le cas dans les colonnes) les matériaux de couverture et les résidus. Les échelles employées dans chaque graphique sont différentes.

Tableau 4.2: Densités relatives des matériaux étudiés (mesures réalisées avant le début des essais en colonnes)

Matériel	D_r (-)	Plages D_r mesurées
MNO	3,136	[3,077 ; 3,173]
MO	2,766	[*une seule mesure*]
Goldex	2,769	[2,745 ; 2,783]
SNO	2,740	[2,719 ; 2,774]
SO	2,871	[2,839 ; 2,897]
Moraine	2,690	[2,639 ; 2,720]

La densité relative des grains est liée à leur minéralogie. Dans le cas de résidus miniers, on peut généralement relier l'augmentation du D_r à une plus grande quantité de minéraux sulfureux et/ou de métaux. Les résidus MNO ont le D_r le plus élevé (3,136), ce qui correspond bien au fait qu'il s'agit des résidus les plus riches en pyrite. Les résidus Goldex et MO ont des D_r presque identiques (environ 2,77). Le D_r de SNO est plus faible que celui de SO (2,740 comparativement à 2,871) ce qui tendrait à montrer que SNO contient moins de sulfures que SO (ce qui sera vérifié par la suite). Enfin, la moraine montre un D_r plus faible (2,690), ce qui est logique considérant qu'il s'agit d'un sol naturel ordinaire, dépourvu de toute trace de sulfures, et non d'un résidu minier.

Les valeurs de densité relative des grains mesurées pour les résidus rencontrés au Québec sont généralement comprises dans une plage allant de 2,6 à 4,0 (voire plus ; Aubertin et al., 2002). Les résultats sont comparables à ces mesures.

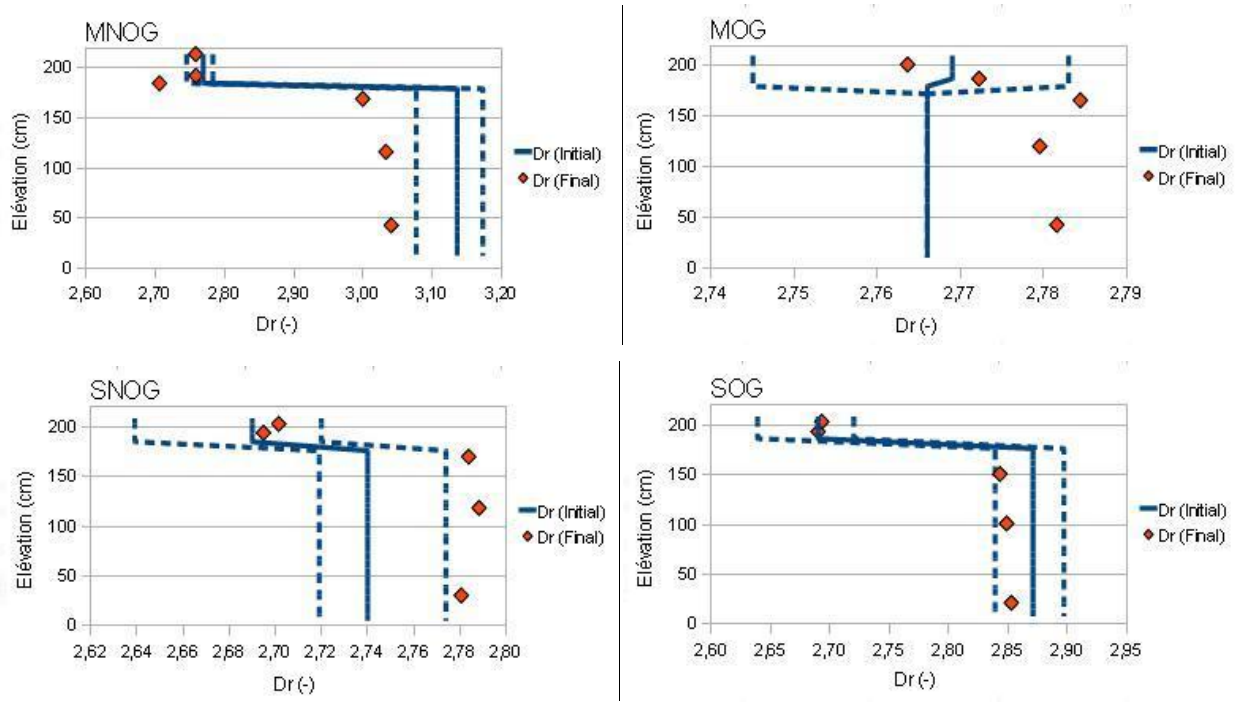


Figure 4.5: Densités relatives des matériaux au démontage des colonnes et pour différentes profondeurs comparées aux mesures réalisées avant le début des essais (trait plein : valeur moyenne ; pointillés : plage de mesures)

Les valeurs de D_r mesurées au démontage sont généralement proches des valeurs obtenues avant le début des essais en colonnes. Dans le plus extrême des cas, il n'a varié que de 0,07 (résidus SNO), ce qui est faible, compte tenu des incertitudes liées à l'essai lui-même, aux différences entre les deux méthodes employées (pycnomètre à eau et pycnomètre à hélium) et à la petite quantité de matériau utilisée (effet de l'échantillonnage).

4.1.3 Essais de compactage

Les résultats des essais Proctor sont présentés dans le tableau 4.3. En raison du manque de matériau, aucun essai Proctor n'a été réalisé sur les matériaux MO et moraine.

Les résultats indiquent que les résidus MNO et Goldex ont les indices des vides les plus élevés (0,502 et 0,479 respectivement) à la densité maximale. Les résidus SNO et SO montrent des valeurs optimales semblables.

Tableau 4.3: Résultats des essais de compactage Proctor sur les matériaux étudiés. e_{opt} : indice des vides à l'optimum Proctor ; w_{opt} : teneur en eau massique à l'optimum ; γ_d : poids volumique maximal du matériau sec (à l'optimum Proctor)

	e_{opt} (-)	w_{opt} (%)	γ_d (kg/m^3)
MNO	0,502	12,7	2080
Goldex	0,479	13,1	1875
SNO	0,340	9,8	2050
SO	0,387	10,2	2070

4.1.4 Conductivité hydraulique saturée

Les principaux résultats des essais de perméabilité sont présentés dans le tableau 4.4. Les résultats expérimentaux ont été comparés aux valeurs prédites avec les modèles KC (équation 2.55) et KCM (équation 2.56)(Figure 4.6). Le modèle KC nécessite le calcul des surfaces spécifiques, estimées à partir des courbes granulométriques présentées à la figure 4.3 (voir aussi équation 2.51).

La comparaison avec les modèles prédictifs indique que pour la plupart d'entre eux, ces modèles donnent d'assez bons résultats, excepté pour la moraine où KC et KCM sous estiment largement (plus d'un ordre de grandeur) la valeur de k_{sat}. Ceci pourrait s'expliquer par les propriétés particulières de cette moraine (un C_U très élevé notamment) pour lesquelles les modèles ne sont pas adaptés. La plasticité des particules fines pourrait aussi expliquer cet écart (les limites

d'Atterberg n'ont pas été utilisées ici pour estimer k_{sat} ; voir Mbonimpa et al., 2002 et Chapuis et Aubertin, 2003).

On note également que pour les résidus MNO, Goldex, SNO et SO, qui sont des résidus relativement fins, le modèle KC semble donner de meilleurs résultats que le modèle KCM. Pour les résidus MO, dont la granulométrie se rapproche plus d'un silt sableux, le modèle KCM semble plus adapté.

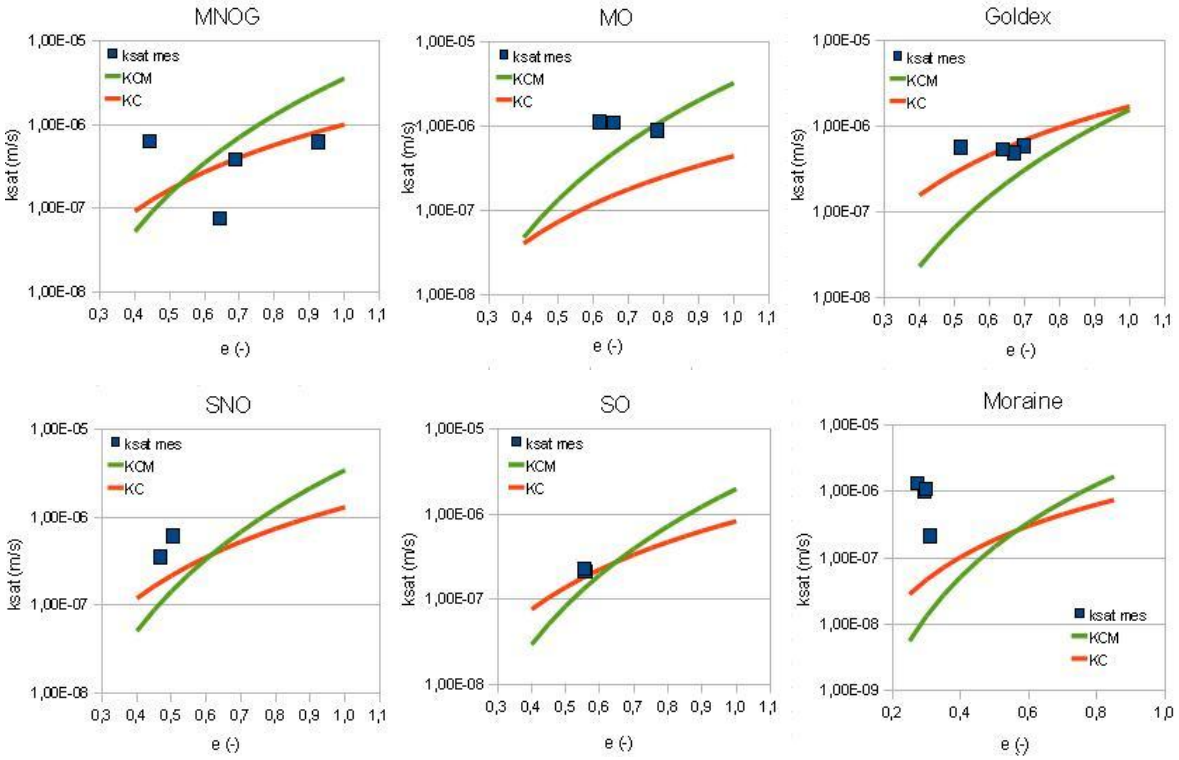


Figure 4.6: Comparaison des conductivités hydrauliques saturées mesurées et prédites avec les modèles KC et KCM

Les valeurs de k_{sat} mesurées sur les matériaux sont comparables aux valeurs usuelles pour les résidus miniers au Québec ([10^{-8} ; 10^{-5}] m/s ; Aubertin et al., 1996, 2002; Bussière, 2007).

Tableau 4.4: Résultats des essais de perméabilité sur les différents matériaux étudiés. Jusqu'à quatre essais par matériaux ont pu être réalisés, soient deux essais en cellules triaxiales et deux en cellules à parois rigides. Les essais ont été réalisés à charge variable. On indique également les indices des vides et les degrés de saturation (lorsque disponibles) pour chaque essai

	Triaxial 1	Triaxial 2	Parois rigides 1	Parois rigides 2
MNO	$k_{sat} = 3{,}81.10^{-7}$ m/s (e = 0,70 ; Sr = 96%)	$k_{sat} = 7{,}57.10^{-8}$ m/s (e = 0,65 ; Sr = 99%)	$k_{sat} = 6{,}22.10^{-7}$ m/s (e = 0,93)	$k_{sat} = 6{,}30.10^{-7}$ m/s (e = 0,44)
MO	$k_{sat} = 1{,}12.10^{-6}$ m/s (e = 0,62 ; Sr = 98%)	$k_{sat} = 1{,}10.10^{-6}$ m/s (e = 0,66 ; Sr = 98%)	$k_{sat} = 8{,}96.10^{-7}$ m/s (e = 0,78)	
Goldex	$k_{sat} = 4{,}87.10^{-7}$ m/s (e = 0,67 ; Sr = 95%)	$k_{sat} = 5{,}39.10^{-7}$ m/s (e = 0,64 ; Sr = 99%)	$k_{sat} = 5{,}93.10^{-7}$ m/s (e = 0,70)	$k_{sat} = 5{,}65.10^{-7}$ m/s (e = 0,52)
SNO	$k_{sat} = 6{,}14.10^{-7}$ m/s (e = 0,51 ; Sr = 99%)	$k_{sat} = 3{,}52.10^{-7}$ m/s (e = 0,47 ; Sr = 98%)		
SO	$k_{sat} = 2{,}11.10^{-7}$ m/s (e = 0,56 ; Sr = 112%)	$k_{sat} = 2{,}29.10^{-7}$ m/s (e = 0,55 ; Sr = 120%)		
Moraine	$k_{sat} = 9{,}87.10^{-7}$ m/s (e = 0,29 ; Sr = 97%)	$k_{sat} = 2{,}15.10^{-7}$ m/s (e = 0,31 ; Sr = 98%)	$k_{sat} = 1{,}35.10^{-6}$ m/s (e = 0,27 ; Sr = 103%)	$k_{sat} = 1{,}11.10^{-6}$ m/s (e = 0,30 ; Sr = 103%)

4.1.5 Courbes de rétention d'eau

De deux à quatre essais en cellule Tempe modifiée ont été réalisés pour chacun des matériaux étudiés, pour des succions comprises habituellement entre 0 et 1450 kPa. Les résultats sont présentés à la figure 4.7 (dans un plan S_r - log ψ). On montre aussi la courbe descriptive qui a été jugée la plus représentative parmi les résultats des essais selon le modèle de van Genuchten (1980)(équation 2.30). Celle-ci a été obtenue au moyen du logiciel RETC (version 6.0, van Genuchten et al., 1991). Dans ces calculs, la teneur en eau volumique à la succion ψ de 10^7 cm a été imposée égale à 0 (Fredlund et Xing, 1994; Aubertin et al., 2003), ce qui induit une teneur en eau résiduelle θ_r nulle. On présente également dans la figure 4.7 les courbes prédites au moyen du modèle MK (Aubertin et al., 2003 ; voir section 2.2.3).

Le tableau 4.5 présente les paramètres du modèle de van Genuchten pour les courbes de rétention d'eau de chaque matériau.

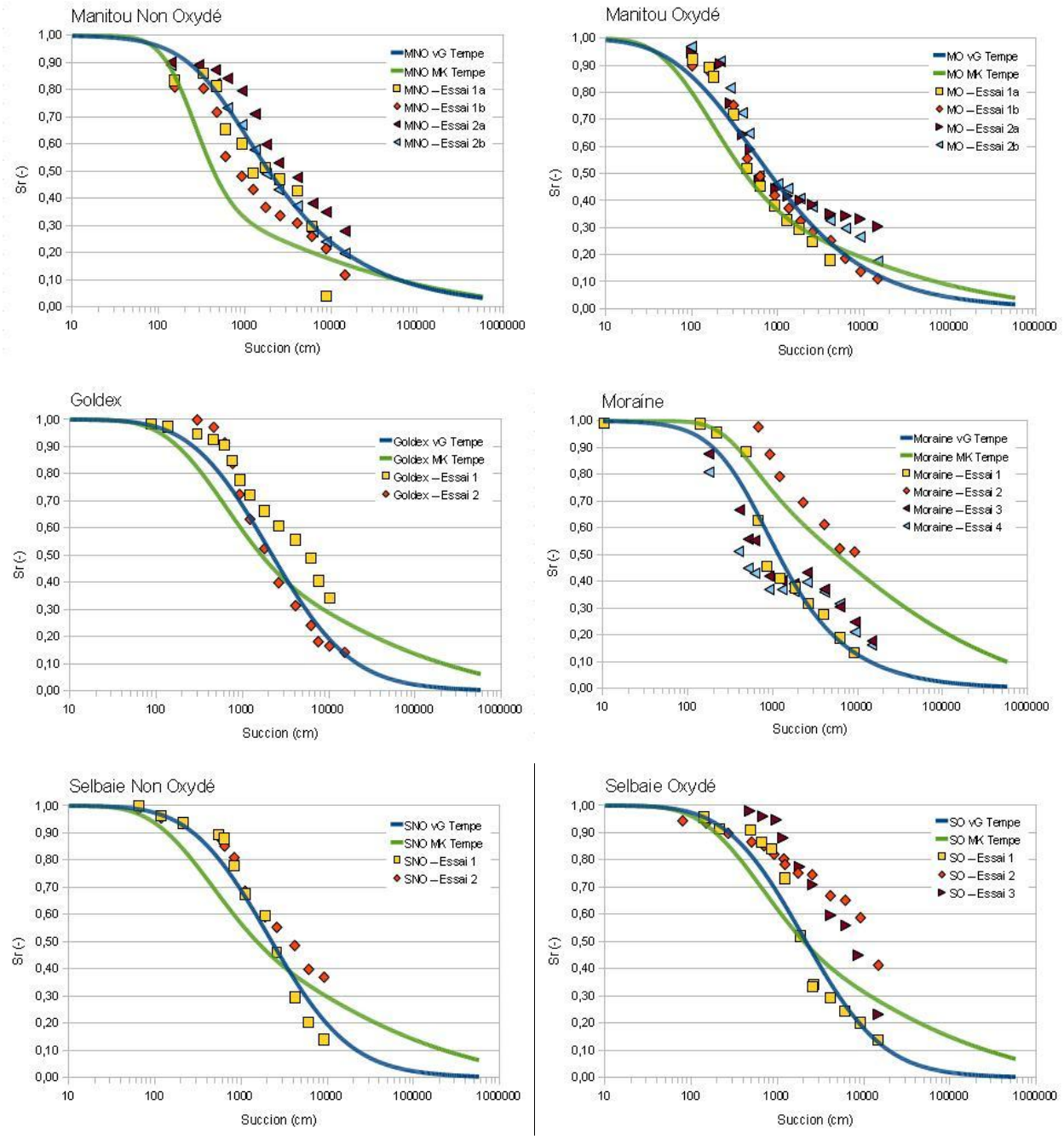


Figure 4.7: Résultats des essais de rétention d'eau en cellule Tempe présentés avec les courbes descriptives obtenues avec le code RETC pour le modèle de Van Genuchten (1980) ainsi que les courbes prédictives obtenues avec le modèle MK

De façon générale, les courbes de rétention d'eau des matériaux sont assez proches les unes des autres et elles sont typiques des silts peu plastiques (e.g. Aubertin et al., 2003; Bussière, 2007).

Pour les six matériaux étudiés, les pressions d'entrée d'air sont comprises entre 1 mètre (MO) et 5 mètres (Goldex) selon estimation graphique par la méthode des tangentes (e.g. Aubertin et al., 2002) qui est assez imprécise pour déterminer l'AEV. Le paramètre n_{vG} du modèle de van Genuchten est compris entre 1,37 (MNO) et 1,79 (SO). Le paramètre m_{vG} est calculé comme étant égal à 1 - 1/n (approximation usuelle, voir section 2.2.3).

Tableau 4.5: Paramètres des courbes de rétention d'eau selon le modèle de van Genuchten (1980) pour les matériaux étudiés

	e (-)	θ_s (-)	θ_r (-)	α_{vG} (m^{-1})	n_{vG} (-)	m_{vG} (-)
MNO	0,704	0,413	0,000	0,258	1,37	0,27
MO	0,672	0,402	0,000	0,519	1,50	0,33
Goldex	0,608	0,378	0,000	0,099	1,68	0,40
SNO	0,437	0,304	0,000	0,103	1,58	0,37
SO	0,511	0,338	0,000	0,092	1,79	0,44
Moraine	0,287	0,223	0,000	0,291	1,48	0,32

Les courbes obtenues avec le modèle MK sont en général assez proches des courbes obtenues expérimentalement et lissées avec le modèle de van Genuchten. Le modèle MK tend souvent (mais pas toujours) à sous-estimer l'AEV comparativement aux valeurs obtenues expérimentalement (peut-être en raison de l'effet osmotique qui n'est pas pris en compte par le modèle ; e.g. Hillel, 1998).

Ces courbes de rétention d'eau seront utilisées ultérieurement (avec corrections) pour analyser les mesures de teneur en eau volumique et de pression au sein des colonnes au cours des essais de mouillage-drainage (voir chapitre 7).

4.1.6 Analyses chimiques et minéralogiques

4.1.6.1 Analyse LECO

Les résultats des analyses à la fournaise LECO réalisées sur les différents matériaux avant le montage des colonnes sont présentés au tableau 4.6. 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 valeurs du PA et du PN des différents matériaux ont été estimées à partir de ces données (Lawrence et Wang, 1997 ; voir aussi section 2.1.9). Les résultats des calculs sont présentés au tableau 4.7.

Tableau 4.6: Résultats des analyses LECO sur les matériaux étudiés (mesures réalisées avant le début des essais en colonne)

Matériaux	C_{total} (%) [plage]	S_{total} (%) [plage]
MNO	0,04 [0,043-0,047]	12,44 [11,400-13,467]
MO	0,04 [-]	0,12 [-]
Goldex	0,80 [0,787-0,817]	0,07 [0,046-0,085]
SNO	0,20 [0,183-0,240]	1,50 [1,333-1,620]
SO	0,38 [0,370-0,410]	4,18 [3,677-4,603]
Moraine	0,91 [0,783-1,053]	0,13 [0,050-0,259]

Tableau 4.7: Calculs des potentiels de neutralisation PN et d'acidification PA à partir des résultats des analyses LECO, et estimation du potentiel net de neutralisation (PNN = PN – PA) ; les résultats sont donnés en kgCaCO3eq/t

Matériaux	PN	PA	PNN
MNO	3,7	388,4	-384,7
MO	3,4	3,7	-0,3
Goldex	66,7	2,1	64,6
SNO	16,7	46,8	-30,1
SO	32,0	130,4	-98,4
Moraine	75,6	4,1	71,5

On constate au tableau 4.7 que les résidus MNO, SNO et SO sont clairement générateurs d'acide (PNN << -20 $kgCaCO_3eq/t$). Les résidus MNO sont les plus réactifs avec un PA de 384,7 $kgCaCO_3eq/t$ et un PN faible (3,7 $kgCaCO_3eq/t$). Bien que partiellement oxydés, les

résidus SO ont un PA supérieur à celui de SNO (130,4 $kgCaCO_3eq/t$ contre 46,8 $kgCaCO_3eq/t$) et sont donc susceptibles de produire plus d'acide plus rapidement. Les deux possèdent un certain pouvoir tampon (PN de 16,7 $kgCaCO_3eq/t$ pour SNO et 32,0 $kgCaCO_3eq/t$ pour SO), mais insuffisant pour neutraliser l'acide produit (à long terme).

Les résidus MO ont un faible PA (3,7 $kgCaCO_3eq/t$) et un faible PN (3,4 $kgCaCO_3eq/t$). Bien que leur PNN se situe dans la zone d'incertitude (-0,3 $kgCaCO_3eq/t$), ces résultats suggèrent que les résidus MO ne produiront presque plus d'acide sulfurique.

Les résidus Goldex et la moraine sont non générateurs d'acide (PNN > 20 $kgCaCO_3eq/t$). Leur PA est faible (2,1 et 4,1 $kgCaCO_3eq/t$ respectivement) et leur PN élevé (66,7 $kgCaCO_3eq/t$ et 75,6 $kgCaCO_3eq/t$ respectivement), ce qui indique qu'ils sont susceptibles de neutraliser plus d'acide qu'ils n'en produisent. Dans le cas de la moraine, on ne s'attendrait pas à mesurer de minéraux sulfureux dans les échantillons. Le PA non nul pourrait s'expliquer par les hypothèses posées, i.e. on considère que tout le soufre provient des sulfures et on néglige la contribution des sulfates, du gypse etc.

Les mêmes analyses ont été réalisées lors du démontage des essais en colonne afin de confirmer les résultats précédents (au bas des colonnes) et pour observer les éventuels changements survenus au cours des essais de mouillage-drainage (surtout en haut des colonnes). Plusieurs échantillons ont été prélevés à différentes hauteurs dans les colonnes et leurs teneurs en carbone et soufre totaux ont été mesurées (LECO). Les résultats sont présentés graphiquement dans la figure 4.8. On y compare les résultats obtenus avant le début de l'essai (moyennes ; traits pleins) et les mesures ponctuelles réalisées au démontage (carrés).

Les analyses LECO effectuées au démontage des essais en colonnes ne semblent pas indiquer de variations notables au cours du temps. Les pourcentages de soufre et carbone totaux sont comparables, et aucune tendance n'est véritablement décelable. La colonne MOG montre une teneur en soufre dans les résidus qui semble diminuer vers le haut, comme si d'avantage de sulfures avaient été consommés (oxydés) en surface. Vues les très faibles concentrations concernées, et considérant que les sulfures dans les résidus MO sont presque totalement épuisés, cette tendance n'est pas nécessairement significative. On peut par exemple supposer que les teneurs en soufre mesurées correspondent aux précipitations de sulfates présents dans l'eau interstitielle et que par lixiviation, les concentrations sont plus élevées dans le bas de la colonne.

Les analyses LECO effectuées sur les petites colonnes au démontage (tableau 4.8) montrent que malgré des conditions favorables à une oxydation marquée, les teneurs en S et C des résidus n'ont pas été modifiées significativement sur la durée des essais (moins de 0,2% de variation).

Tableau 4.8: Résultats des analyses LECO réalisées au démontage des petites colonnes. Les chiffres entre parenthèses indiquent les variations par rapport aux valeurs initiales

Colonnes	C_{total} (%)	S_{total} (%)
MNOP	0,06 (+0,019)	12,2 (-0,24)
MOP	0,04 (-0,003)	0,11 (-0,013)
SNOP	0,10 (-0,099)	1,45 (-0,049)
SOP	0,16 (-0,229)	3,98 (-0,198)

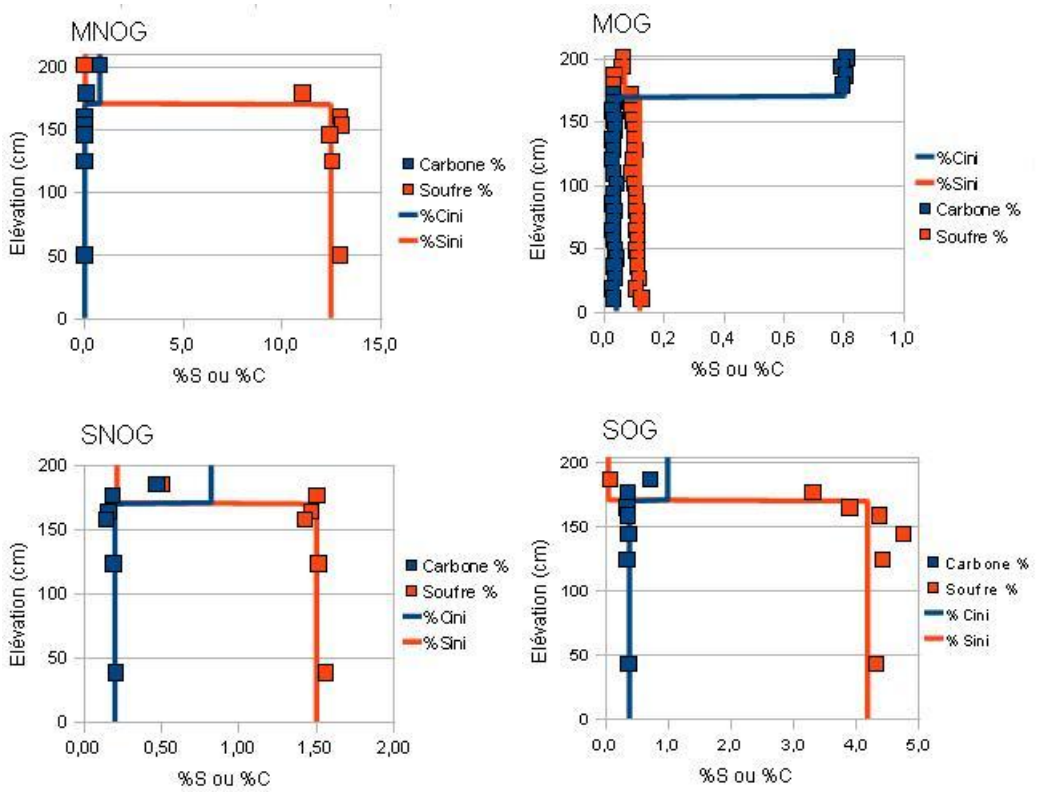


Figure 4.8: Profils de teneurs en soufre et carbone totaux dans les colonnes obtenues au LECO. Les trains pleins correspondent aux mesures réalisées avant le début des essais et les points sont les mesures ponctuelles réalisées sur les échantillons prélevés au démontage des colonnes

4.1.6.2 Analyses DRX

En complément des mesures à la fournaise LECO, on a analysé la minéralogie par diffractométrie de rayons X (DRX) des résidus et des matériaux de couverture à différentes élévations, lors du démontage des grandes colonnes. Entre 3 et 5 mesures ont été réalisées pour chaque matériau. Les résultats sont synthétisés aux tableaux 4.9 et 4.10. On indique également les plages des valeurs mesurées.

Une analyse DRX a été réalisée sur les résidus et les matériaux de couverture avant le début des essais, mais les résultats ont été jugés erronés et n'ont pas été employés par la suite. Ils sont présentés à l'annexe 4.1.

Tableau 4.9: Résultats des analyses minéralogiques (DRX) sur les résidus MNO, MO et Goldex (rapports massiques en pourcentage, avec plage de mesures)

Minéral	MNO	MO	Goldex
Pyrite	11,87 [10,96 ; 12,50]	0,47 [0,00 ; 1,41]	-
Quartz	54,10 [46,62 ; 61,56]	66,28 [65,99 ; 66,80]	18,88 [17,16 ; 19,72]
Calcite	0,78 [0,00 ; 2,33]	-	5,35 [4,33 ; 5,78]
Dolomite	-	-	1,97 [0,00 ; 2,33]
Chlorite	5,89 [3,25 ; 7,53]	19,84 [19,39 ; 20,34]	6,64 [5,35 ; 7,17]
Muscovite	22,21 [19,01 ; 25,21]	12,08 [11,36 ; 12,66]	7,40 [6,41 ; 8,84]
Albite	0,87 [0,00 ; 2,61]	-	47,22 [38,81 ; 48,67]
Anorthite	3,13 [0,00 ; 9,40]	0,51 [0,00 ; 1,53]	9,84 [9,19 ; 11,57]
Actinolite	-	-	2,68 [1,20 ; 2,95]
Gypse	0,21 [0,00 ; 0,63]	-	-
Rutile	-	0,55 [0,00 ; 0,91]	-
Boehmite	0,95 [0,00 ; 2,84]	-	-

On constate au tableau 4.9 que les résidus MNO et MO sont composés à peu près des mêmes minéraux, avec toutefois une différence dans la teneur en minéraux sulfureux. Ainsi, les résidus MNO contiennent beaucoup plus de pyrite (11,9%) que MO (0,5%). Les deux résidus sont composés de chlorite, muscovite et anorthite, qui, avec le quartz, représentent plus de 85% de la

masse des résidus. Les résidus MNO contiennent encore des traces de carbonates ce qui est assez surprenant au vu du pH de l'eau interstitielle. On y trouve aussi des traces de gypse et de boehmite qui sont des composés secondaires, produits par la précipitation des sulfates et de l'aluminium. Ceci est relativement inattendu considérant les pH faibles mesurés. Néanmoins, les très fortes concentrations en métaux dissouts peuvent expliquer ces précipitations.

Les résidus Goldex contiennent des carbonates (plus de 7% de la masse totale) et beaucoup d'albite (47%).

Tableau 4.10: Résultats des analyses minéralogiques (DRX) sur les résidus SNO, SO et la moraine (rapports massiques en pourcentage, avec plage de mesures)

Minéral	SNO	SO	Moraine
Pyrite	1,62 [1,27 ; 1,84]	4,03 [3,61 ; 4,35]	-
Quartz	74,87 [73,93 ; 75,36]	66,63 [64,95 ; 68,84]	37,56 [34,34 ; 41,90]
Calcite	-	-	2,05 [1,38 ; 2,57]
Chlorite	10,88 [9,90 ; 12,46]	6,59 [5,85 ; 7,03]	1,81 [0,26 ; 2,79]
Orthoclase	-	-	10,66 [7,53 ; 11,97]
Muscovite	9,65 [8,06 ; 10,97]	14,77 [13,91 ; 15,54]	1,89 [1,34 ; 2,41]
Albite	0,56 [0,00 ; 0,87]	1,81 [1,53 ; 1,97]	28,51 [22,46 ; 32,57]
Microcline	-	-	0,54 [0,00 ; 2,17]
Anorthite	0,36 [0,00 ; 1,09]	0,91 [0,00 ; 1,46]	5,79 [2,13 ; 8,75]
Actinolite	-	-	1,83 [1,15 ; 2,74]
Epidote	1,68 [0,00 ; 2,63]	4,17 [3,13 ; 5,44]	1,79 [0,00 ; 3,02]
Rutile	-	-	0,82 [0,00 2,17]
Biotite	-	-	0,46 [0,00 ; 1,02]
Enstatite	-	-	5,42 [3,55 ; 7,68]
Boehmite	-	-	0,94 [0,00 ; 1,88]

Les résidus SNO et SO sont composés essentiellement de quartz, de chlorite et de muscovite (plus de 85%), qui sont des silicates relativement stables. SNO contient 1,6% de pyrite et SO en contient 4,0%, ce qui signifie que SO serait plus réactif que SNO. La moraine est composée d'un

mélange minéralogique beaucoup plus hétérogène que les autres matériaux. On y trouve une grande variété de silicates, mais pas de minéraux sulfureux et peu de carbonates (2,1% de calcite). Il s'agit donc d'un matériau relativement neutre, dont le pouvoir tampon est limité.

A partir des mesures DRX présentées ici, on a estimé le PA et le PN de chaque échantillon (Lawrence et Wang, 1997). Les résultats sont présentés au tableau 4.11. Les conclusions sont les mêmes que pour l'analyse LECO (tableau 4.7) : les résidus MNO, SNO et SO sont générateurs d'acide, les résidus Goldex et la moraine sont neutralisants, et les résidus MO sont dans la zone d'incertitude, mais les faibles teneurs en pyrite laissent penser qu'ils ne généreront presque plus d'acide à l'avenir. On note que les analyses LECO et DRX n'aboutissent pas aux mêmes estimations du PN et du PA dans les échantillons. Généralement, l'analyse LECO donne un PA jusqu'à deux fois supérieur aux données du DRX. L'hypothèse que l'on peut formuler est la présence de sulfates précipités. Les minéraux secondaires amorphes ne sont pas identifiés par le DRX, mais ils devraient être présents, comme le laissent penser les conditions oxydo-réductrices simulées (voir chapitre 8). Les estimations du PN au moyen des résultats de l'analyse LECO peuvent aussi être majorées d'un facteur de 3 par rapport à celles calculées à partir des mesures DRX. L'analyse LECO mesure la quantité de carbone totale dans l'échantillon, mais tout le C ne provient pas nécessairement des carbonates. Le LECO a donc tendance à surestimer le pouvoir tampon des matériaux. A l'inverse, les carbonates peuvent se présenter sous forme amorphes et ne pas être détectés au DRX.

Tableau 4.11: Calculs des potentiels de neutralisation PN et d'acidification PA à partir des résultats des analyses DRX, et estimation du potentiel net de neutralisation (PNN = PN – PA) ; les résultats sont donnés en kgCaCO3eq/t

Matériaux	PN	PA	PNN
MNO	7,8	198,0	-190,2
MO	0,0	7,8	-7,8
Goldex	74,9	0,0	74,9
SNO	0,00	27,0	-27,0
SO	0,00	67,2	-67,2
Moraine	20,5	0,0	20,5

Deux échantillons de chaque résidu ont également été analysés par DRX au démontage des petites colonnes. Les résultats sont présentés au tableau 4.12.

Tableau 4.12: Résultats des analyses DRX au démontage des petites colonnes (rapports massiques en pourcentage, moyennes de deux mesures)

Minéral	MNOP	MOP	SNOP	SOP
Pyrite	11,45	-	1,11	2,86
Quartz	51,53	67,15	78,41	70,31
Chlorite	4,57	20,06	10,18	5,47
Muscovite	21,26	12,79	9,29	16,92
Albite	1,68	-	1,02	0,57
Anorthite	9,49	-	-	1,35
Actinolite	0,04	-	-	-
Gypse	-	-	-	0,41
Boehmite	-	-	-	2,08

Globalement, les résultats obtenus sur les petites colonnes sont comparables aux mesures sur les grandes colonnes. On observe une diminution des teneurs des minéraux réactifs (pyrite notamment). Par exemple, les teneurs en pyrite de SNOP et SOP semblent être plus faibles (respectivement -1,51% et -1,17%) que celles mesurées dans les grandes colonnes, pouvant ainsi laisser penser qu'une partie importante des sulfures a été oxydée. Pour la colonne MOP, toute trace de pyrite semble avoir disparu. D'autres silicates, plus solubles (anorthite notamment, albite aussi) voient leurs concentrations diminuer dans certains cas. Néanmoins, les teneurs en quartz, minéral parmi les plus stables, sont différentes de plus de 2,50% dans les résidus MNO ; d'autres minéraux relativement stables voient leurs teneurs varier de plus de 2%.

Même s'il semble qu'il y ait eu une forte oxydation dans les petites colonnes, avec la dissolution d'un certain nombre d’éléments, les imprécisions des mesures DRX ne permettent pas de quantifier les variations minéralogiques.

4.1.6.3 Chimie de l'eau interstitielle initiale

La chimie des eaux interstitielles initiales a été évaluée par analyse ICP-AES et par absorption atomique (voir chapitre 3). Elle permet de fixer une condition initiale aux modèles géochimiques (chapitre 8). Ces analyses ont été effectuées sur le surnageant prélevé lors du montage des grandes colonnes (mélange du surnageant pour chaque couche). Le tableau 4.13 présente les résultats obtenus. On ne montre ici que les éléments analysés par la suite, mais une analyse ICP permet de réaliser un balayage général (voir les résultats complets à l'annexe 4.2). Le pH n'a pas pu être mesuré (sonde alors en cours de remplacement), mais on estime que le pH mesuré dans le lixiviat au premier cycle devrait être assez proche des valeurs initiales dans la colonne.

Tableau 4.13: Chimie de l'eau interstitielle initialement présente dans les grandes colonnes, avant le début des essais de mouillage-drainage. Les concentrations sont données en ppm (ou mg/L)

Eléments	MNOG MNO	MNOG Goldex	MOG MO	MOG Goldex	SNOG SNO	SOG SO	Moraine
SO_4	11204	1851	2670	-	1049	1893	857
Fe	2170	0,161	250	0,70	0,007	0,117	0,204
K	-	-	9,03	26,8	-	-	-
Mg	328	45,0	256	40,6	145	110	43,9
Ca	444	616	233	450	233	667	325
Mn	19,1	2,47	8,47	0,20	2,69	1,69	0,060
Al	933	0,112	39,1	< 0,1	< 0,01	0,028	0,013
Zn	358	1,96	11,5	0,47	0,433	0,249	0,077
Ni	1,44	0,056	0,45	0,13	0,018	0,008	0,007
Na	-	-	7,62	69,4	-	-	-
Si	73,4	2,70	100,6	6,01	3,82	5,98	4,08
Pb	0,365	< 0,02	0,14	0,15	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Cu	150	0,020	1,49	0,02	0,036	0,008	0,036
Co	2,54	0,056	0,21	0,04	0,009	< 0,004	< 0,004
Cd	1,57	0,015	0,05	< 0,01	0,007	0,010	< 0,003

On constate que les concentrations en sulfates et fer sont particulièrement élevées dans les résidus MNO (plus de 11000 ppm et 2100 ppm respectivement), comparativement aux autres résidus où les concentrations de sulfates sont autour de 1500 ppm et celles de fer d'environ 0,1 ppm. Les concentrations en métaux sont également plus élevées dans la colonne MNOG, alors qu'elles sont généralement inférieures à 1 ppm (voire moins) dans les autres colonnes. Les concentrations en calcium et magnésium sont supérieures à 200 ppm et 100 ppm respectivement dans l'eau interstitielle des résidus réactifs, ce qui indiquerait la présence (et la dissolution) de carbonates ou la dissolution de certains silicates en raison notamment de la génération d'acide.

On observe également que la qualité de l'eau interstitielle dans les matériaux de couverture semble relativement indépendante de la qualité de l'eau dans les résidus (par exemple, les concentrations en fer dans l'eau interstitielle des résidus Goldex sont plus élevées dans le cas de MOG que pour MNOG alors que l'eau interstitielle dans MO contient moins de fer que dans MNO). Au moment du montage, peu de mélanges se seraient donc produits. On suppose qu'ensuite, grâce aux mécanismes de diffusion et de dispersion, une certaine homogénéisation des concentrations s'est produite sur toute la colonne.

4.1.7 Coefficient de diffusion de l'oxygène et constante du taux de réaction

La figure 4.9 présente la synthèse des résultats des essais de diffusion. Les résultats expérimentaux pour la valeur du coefficient de diffusion effectif D_e sont comparés aux valeurs prédictives obtenues avec le modèle d'Aachib et al. (2004)(voir section 2.3.3 pour les détails), calculées pour un indice des vides moyen (identifié sur chaque graphique).

On constate que le modèle d'Aachib et al. (2004) prédit assez bien les valeurs de D_e pour toute la gamme des degrés de saturation. Les différences les plus marquées apparaissent en général aux degrés de saturation les plus élevées, lorsque le facteur limitant devient la diffusion à travers l'eau. De petites variations sur la teneur en eau ou les dimensions de l'échantillon peuvent alors induire de fortes variations dans le degré de saturation et donc également sur le coefficient de diffusion.

Dans la suite des travaux, on utilisera les résultats prédictifs pour calculer le coefficient de diffusion des matériaux (et les flux d'oxygène correspondants). Le modèle Min3P a été modifié (Molson et al., 2008) pour inclure la valeur de D_e obtenue par le modèle d'Aachib et al. (2004)

dans les calculs. Vadose/W quant à lui utilise le modèle Colin et Rasmuson (1988), semblable au modèle d'Aachib et al. (2004).

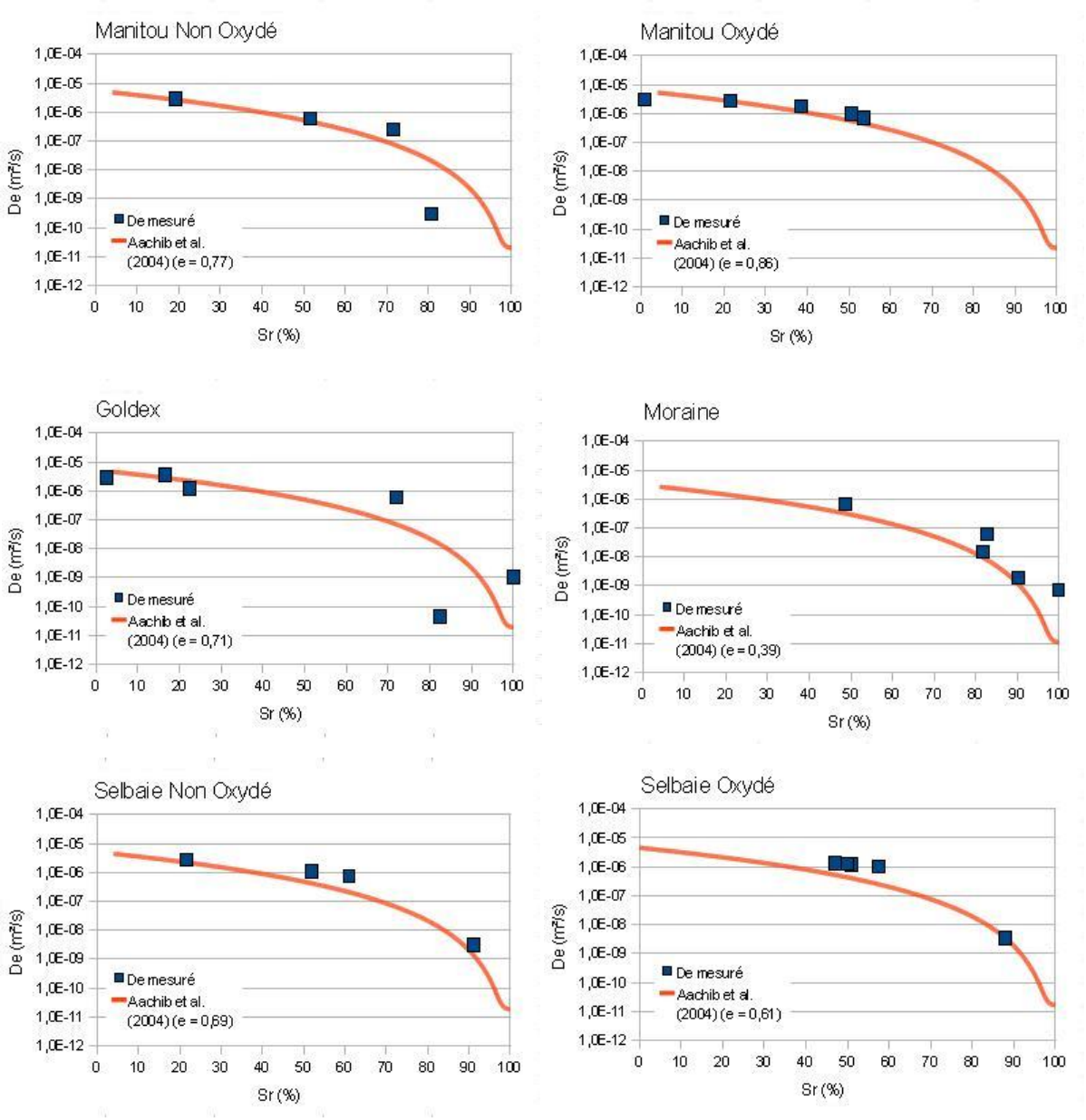


Figure 4.9: Résultats des essais de diffusion de l'oxygène (à deux réservoirs) interprétés au moyen du code Vadose /W et comparaison avec le modèle d'Aachib et al. (2004)

Les résultats des essais en cellule de consommation d'oxygène (à un réservoir) sont présentés dans la figure 4.10. Les valeurs de la constante du taux de réaction K_r (équation 2.17) sont comparées aux valeurs prédites par le modèle de Collin (1987)(équation 2.18). Pour ce dernier, on a employé les analyses DRX présentées aux tableaux 4.9 et 4.10.

On ne présente pas ici les résultats pour les résidus Goldex et la Moraine. Ils ne contiennent pas de matériaux réactifs, et les quelques essais réalisés n'ont pas permis de déceler la moindre consommation d'oxygène. On considérera donc que leur constante de réaction K_r est nulle.

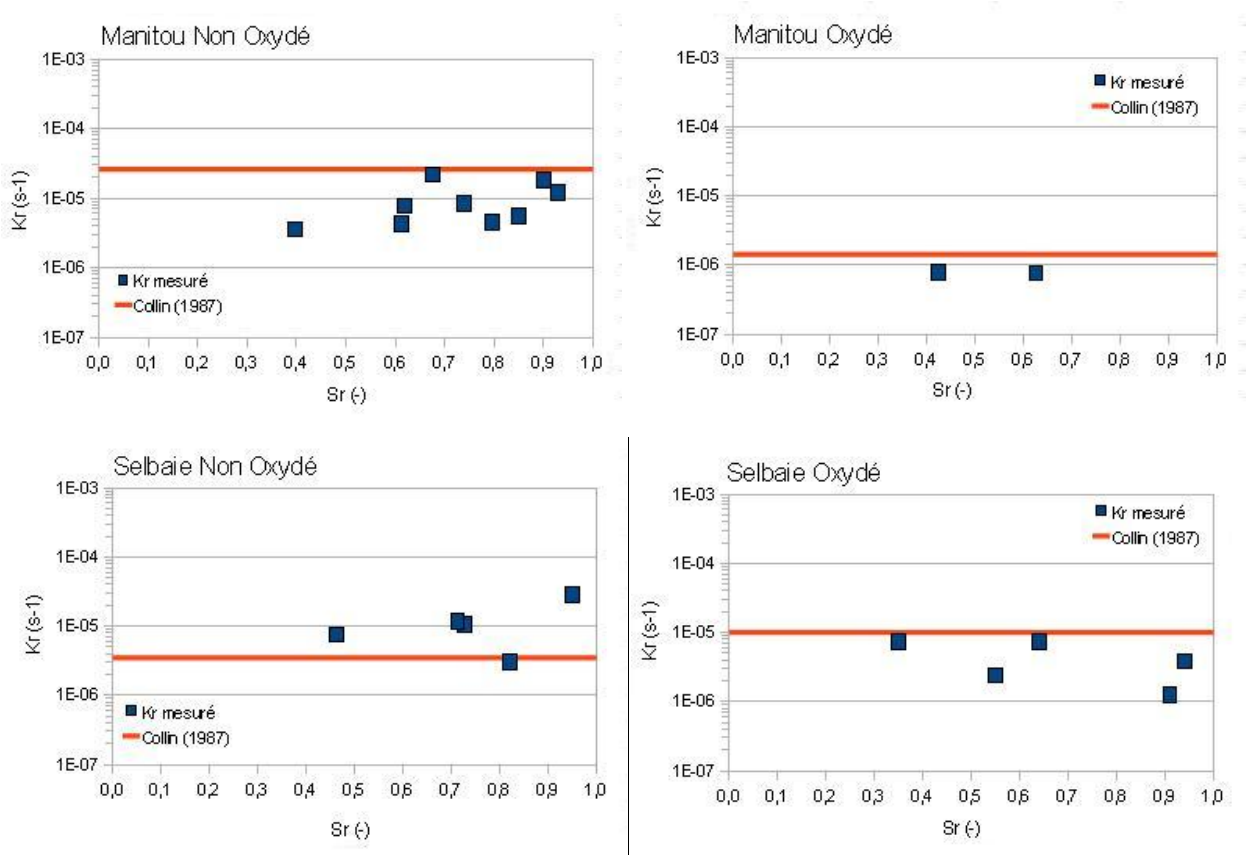


Figure 4.10: Valeurs de la constante du taux de réaction des résidus obtenues suite aux essais pour divers degrés de saturation et comparaison avec les prédictions du modèle de Collin (1987)(les calculs ont été effectués à partir des résultats des analyses DRX)

Comme prévu, les valeurs de la constante du taux de réaction augmentent avec la teneur en minéraux sulfureux. Les résidus MO, qui sont presque dépourvus de toute pyrite, montre un K_r

d'environ $9{,}5.10^{-7}$ s^{-1} (0,082 j^{-1} ; le plus faible). Les résidus SO et SNO ont des K_r à peu près similaires autour de $6{,}3.10^{-6}$ s^{-1} (0,54 j^{-1}). Les résidus MNO ont le K_r le plus élevé avec une moyenne autour de $9{,}6.10^{-6}$ s^{-1} (0,83 j^{-1}). Le lien entre la teneur en pyrite et la valeur de K_r obtenu expérimentalement n'est pas direct. Par exemple, les résidus MNO, qui contiennent trois fois plus de pyrite que les résidus SO et dix fois plus que les résidus SNO, montrent une valeur expérimentale de K_r 1,5 fois supérieur à ceux-ci. Par ailleurs, les résidus SO et SNO ont un K_r mesuré presque identique alors que leurs teneurs en pyrite varient d'un facteur de 4.

En général, le modèle de Collin (1987) prédit relativement bien les valeurs de la constante du taux de réaction (environ $\pm$ $3{,}2.10^{-6}$ s^{-1} pour SNO et SO et + $6{,}3.10^{-7}$ s^{-1} pour les résidus MO). Par contre, les résultats sont moins proches concernant les résidus MNO, avec le modèle de Collin qui surestime les résultats expérimentaux ($+1{,}74.10^{-5}$ s^{-1}). Les concentrations en sulfates et fer mesurées à la sortie des colonnes (voir chapitres 5 et 6) laissent penser que la réaction d'oxydation est en réalité plus intense que celle déduite ici.

Les résultats des analyses chimiques et minéralogiques seront comparés avec les données de la littérature dans les sections suivantes.

4.2 Résultats des essais de terrain

Entre 2007 et 2010, plusieurs campagnes de terrain ont été menées sur les sites Manitou et Selbaie afin de collecter des données spécifiques au terrain (hétérogénéités granulométriques et minéralogiques, profondeurs de nappe, réactivité des résidus en place...). Ces mesures aident à placer les résultats de laboratoire dans leur contexte, et à déterminer quels paramètres sont les plus susceptibles d'influencer le comportement des résidus en place.

Le but de ces campagnes est également de déterminer quelles conditions sont les plus réalistes pour les simulations à grande échelle du comportement des résidus et de leur couverture, en permettant notamment de faire varier les paramètres d'entrée des modèles numériques dans des intervalles représentatifs.

4.2.1 Travaux de terrain sur le site Manitou

4.2.1.1 Hétérogénéités des résidus

Plusieurs campagnes de terrain ont été organisées sur le site Manitou, avant et après le début des travaux de restauration (en juin 2007, en juin 2008, en juin 2009 ainsi qu'en juin 2010).

A ces occasions, de nombreux échantillonnages et mesures de terrain ont pu être réalisés. Le tableau 4.14 identifie les différents échantillons prélevés, leur localisation et la date des échantillonnages. La localisation des essais et points d'échantillonnage est représentée de façon approximative sur la figure 4.11.

Des campagnes de terrain ont également été organisées dans le cadre d'autres projets au cours des années précédant le début de ces travaux (e.g. Gosselin, 2007) et que des mesures de suivis et d'autres essais s'y poursuivent (Bussière et al., 2011).

Tous les échantillons décrits dans le tableau 4.14 ont été caractérisés au laboratoire (granulométrie, densité relative des grains, minéralogie). Des essais de consommation *in situ* ont été réalisés au niveau des points de prélèvement M-C1 à M-C5 ainsi que G-C1 à G-C5 (voir figure 4.11 pour leur localisation).

La figure 4.12 présente les courbes granulométriques de ces échantillons, comparées à celles obtenues pour les matériaux utilisés dans les colonnes. On dispose également des courbes granulométriques des résidus Goldex à différentes profondeurs (figure 4.12.c). Les caractéristiques granulométriques (D_{10}, D_{60}, C_U et pourcentage passant 75 μm) de chaque matériau sont présentées à l'annexe 4.3.

L'ensemble des mesures de caractérisation sur les résidus Manitou et Goldex sont présentés en annexe :

- l'annexe 4.4 synthétise l'ensemble des valeurs de densités relatives des grains mesurées sur les échantillons prélevés ;
- l'annexe 4.5 reprend l'ensemble des données minéralogiques obtenues sur ces mêmes matériaux ;
- l'annexe 4.6 synthétise les résultats des analyses LECO effectuées sur certains échantillons.

Tableau 4.14: Description des échantillons prélevés sur le site Manitou

Nom	Lieu	Date	Remarques / Observations
M-C1 (S et P)	Bas de la digue du Parc B	Juin 2007	Zone très hétérogène et bariolée, signe d'une succession de déposition de résidus oxydés et non oxydés sur plus de 1,5 mètre
M-C2 (S et P)	Bas de la digue du Parc B		
M-C3 (S et P)	Bas de la digue du Parc A		
M-C4 (S)	Parc B, près de la digue Ouest		Résidus de couleur grise, pas d'observation de la présence d'oxydes de fer
M-C5 (S)	Parc A, près du Parc B		Résidus fins très oxydés en surface (70 cm) surmontant des résidus frais et non saturés
M-E1	Zone d'épanchement, au niveau du ruisseau Manitou	Juin 2007	Résidus bariolés, ocres, rouges et gris, saturés
M-E2			Résidus grossiers et oxydés, saturés
M-E3			Résidus fins et oxydés, prélevés dans le ruisseau
M-E4			Résidus plus grossiers, oxydés et plus secs
M-B1	Parc A, le long de la limite avec le Parc B	Juin 2010	Résidus frais et saturés, prélevés après avoir retiré entre 50cm et 1m de résidus oxydés en surface
M-B2			
M-B3			
M-B4			
M-B5			
G-C1 à C5	Parc 1 (C2 et 15)	Juin 2010	Résidus Goldex déposés l'année précédente (2009) sur la zone d'épanchement

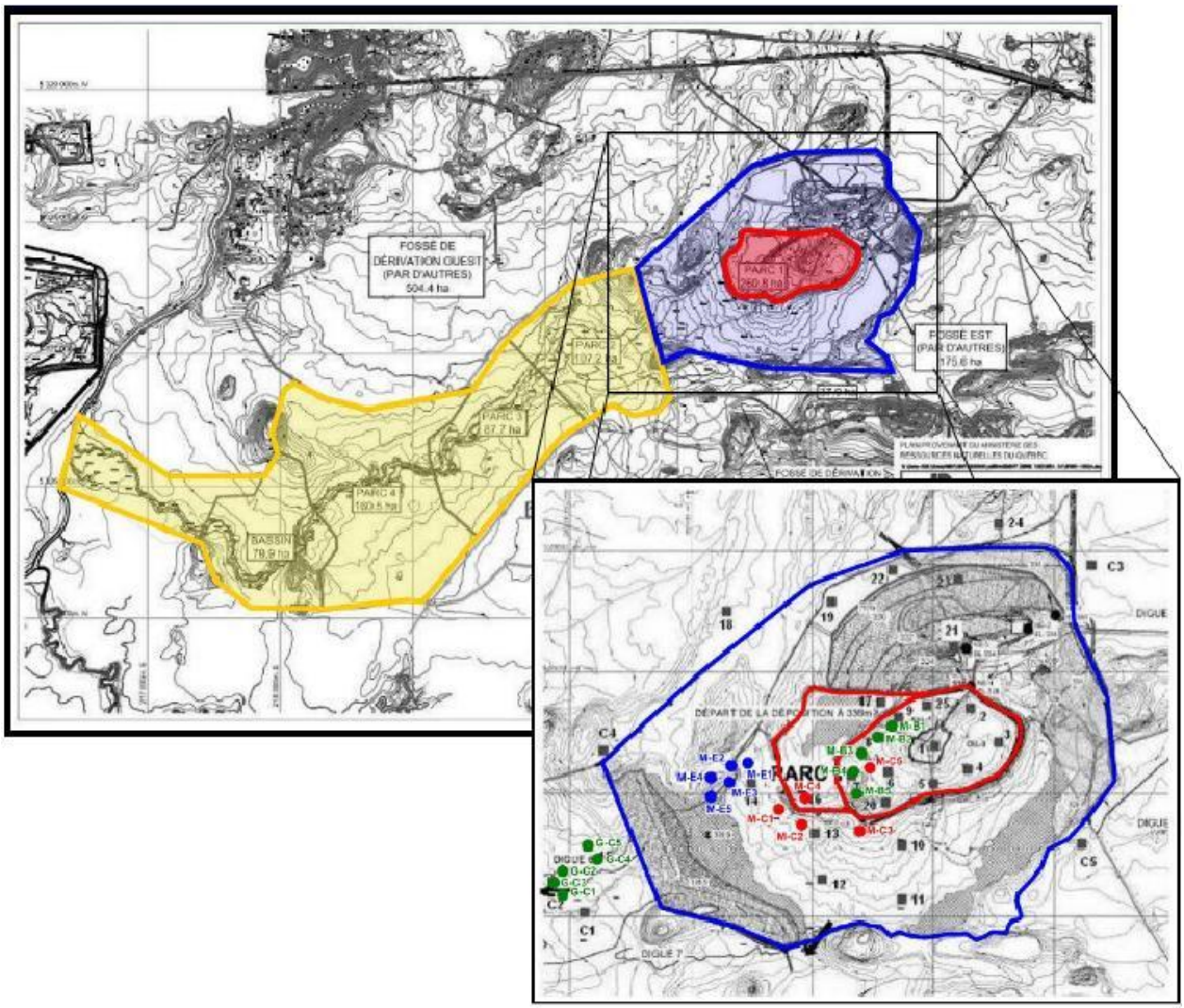


Figure 4.11: Carte générale du site Manitou (tirée de Bussière et al., 2001) avec localisation des essais et des points d'échantillonnage. En rouge : Parcs A et B (principales zones d'accumulation de résidus sur le site). En bleu : zone à proximité des Parcs, délimitée par des digues et dans laquelle des résidus Goldex ont commencé à être déposés. En jaune : ancienne zone d'épanchement contaminée par des résidus, aujourd'hui partiellement restaurée

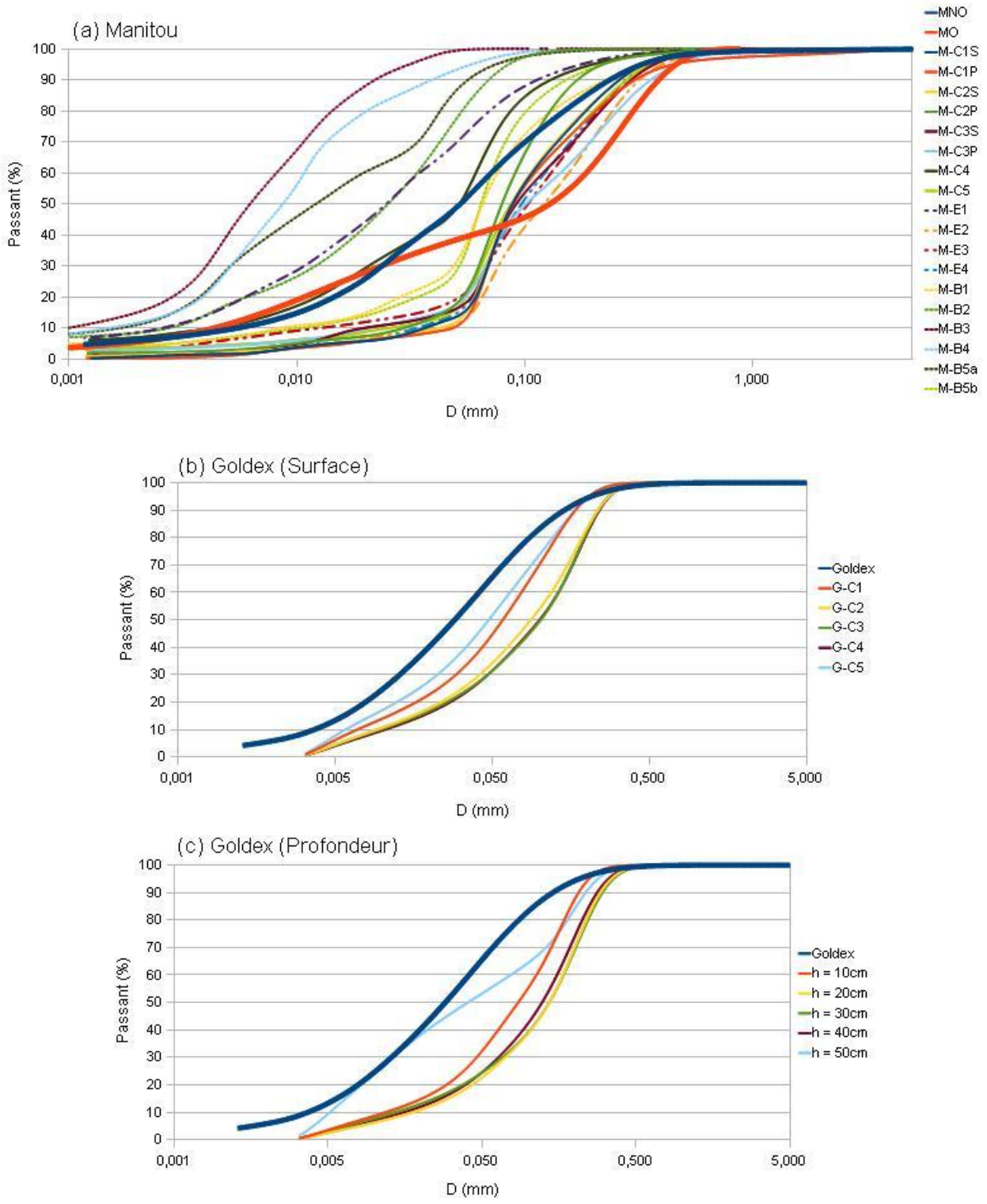


Figure 4.12: Fuseaux granulométriques mesurés sur des échantillons prélevés sur le site Manitou (résidus Manitou (a) et Goldex (b, c)). Les courbes (trait épais) MNO, MO et Goldex correspondent aux matériaux utilisés dans les essais en colonne, au laboratoire

De façon générale, ce qui ressort des résultats présentés à la figure 4.12 et aux annexes 4.3 à 4.6, c'est la très grande hétérogénéité des résidus Manitou, tant d'un point de vue granulométrique que minéralogique. Les résultats sont très différents les uns des autres et ils ne semblent suivre aucune tendance spatiale. Des échantillons semblables peuvent avoir été prélevés à des centaines de mètres de distance tout comme d'autres très différents peuvent avoir été échantillonnés à quelques centimètres l'un au-dessus de l'autre, et inversement.

Les courbes présentées dans la figure 4.12, ainsi que les données du tableau de l'annexe 4.3, montrent une gamme de granulométries très variée. Les coefficients d'uniformité des résidus Manitou varient de 2,2 à 12,7 avec une valeur extrême à 42,5. De façon générale, les courbes granulométriques des résidus sont relativement peu étalées (C_U < 12). On ne distingue pas vraiment de tendance, ni par rapport à la zone de prélèvement (au centre du parc, près des digues, en profondeur ou en surface...), ni par rapport à leur minéralogie ou leur état d'altération apparent. La valeur de C_U = 42,5 est mesurée pour les résidus MO utilisés dans les colonnes montées au laboratoire. Généralement, la plupart des échantillons contiennent moins de 50% de particules inférieures à 75 μm (tamis 200), mais quelques échantillons particulièrement fins peuvent en contenir jusqu'à 100%. Les valeurs de D_{10} des échantillons varient entre 1 μm et 50 μm. De manière générale, les résidus Manitou s'échelonnent du silt fin au silt sableux.

On retrouve dans la littérature un certain nombre d'études réalisées sur le site ou avec les résidus du site Manitou (e.g. Aubertin et al., 1995, 1997, 1999; Aachib, 1997; Bussière, 1999; Gosselin, 2007, Bussière et al., 2011). En comparant les caractéristiques des résidus présentées dans ces études, on constate la même hétérogénéité qu'observée ici. Les coefficients d'uniformité, par exemple, s'échelonnent de 8,0 (Bussière et al., 2011) à 26,8 (Aubertin et al., 1999; Gosselin, 2007) et peuvent même atteindre des valeurs autour de 32,0 (Bussière et al., 2011). Les valeurs du D_{10} vont de 2,3 μm (Aubertin et al., 1995) à 17 μm (Bussière et al., 2011). Les pourcentages de particules inférieures à 75 μm sont compris entre 20% et 80% (Aubertin et al., 1995, 1999, Tassé et Germain, 2003) ; des valeurs variant de 24% à 53% ont été mesurées par Gosselin (2007).

Les densités relatives des grains D_r présentées à l'annexe 4.4 s'échelonnent de 2,75 à 3,27, en fonction de la minéralogie des échantillons. On constate ainsi que plus les résidus Manitou contiennent de pyrite, plus leur densité relative est élevée (la pyrite est le minéral le plus dense

mesuré dans les échantillons). Dans la littérature, les valeurs de D_r des résidus Manitou sont généralement comprises entre 2,78 et 2,85 (Aubertin et al., 1999; Gosselin, 2007), mais on mesure ponctuellement des valeurs aussi grandes que 3,17 (Bussière et al., 2011).

On constate à l'annexe 4.5 que les compositions minéralogiques des échantillons de résidus Manitou sont également très variables. La teneur en pyrite des échantillons, notamment, varie de 0 à 18,5%. Là encore, on ne décèle pas vraiment de tendances spatiales : les matériaux prélevés en profondeur contiennent généralement plus de pyrite, mais des résidus en surface peuvent également être très riches en sulfures. La teneur en calcite est généralement nulle sur le site sauf dans certains échantillons (très fins, avec un fort degré de saturation, et ne présentant aucun signe d'altération) où des valeurs de 6% ont été mesurées. Les teneurs en silicates sont également assez variables : de 30% à 70% de quartz, de 0,3% à plus de 7% de chlorite, ou encore de 4% à 42% de muscovite.

Dans les publications portant sur les résidus Manitou, les teneurs en pyrite mesurées sont aussi très variables et peuvent être de l'ordre de 3% (Aubertin et al., 1995; Aachib, 1997), inférieures à 5% (Aubertin et al., 1999), comprises entre 0% et plus de 10% (Bussière et al., 2011), autour de 14% (Dagenais, 2005), de 5,5% (Bernier, 1997), ou de 7% (Gosselin, 2007). Les teneurs en calcite sont généralement nulles (Aubertin et al., 1995; Aachib, 1997; Dagenais, 2005) à l'état de traces (Aubertin et al., 1999) ou estimées à 0,14% (Gosselin, 2007).

Les analyses LECO, dont les résultats sont présentés à l'annexe 4.6 présentent les mêmes tendances que les analyses minéralogiques. Généralement les teneurs en carbone sont indétectables, excepté pour les échantillons dans lesquels de la calcite a été détectée et pour lesquels des pourcentages carbone de 0,05 à 0,07% ont été obtenus. Les teneurs en soufre total varient de 0% à près de 20% (ces valeurs incluent les sulfates ayant éventuellement précipité dans l'échantillon). On retrouve peu de résultats d'analyses LECO dans les rapports sus-cités. On note quand même des mesures de 4,9 %S et 0,1%C (Gosselin, 2007), 9,1%S et 0,0%C (Dagenais, 2005), ou encore [6,7 ; 10,2] %S et 1,0%C (Tassé et Germain, 2003), qui sont du même ordre de grandeur que les mesures. Cette variabilité des caractéristiques des résidus reflète un historique très chargé dans l'opération du site Manitou.

Les échantillons de résidus Goldex sont plus homogènes. Parmi les échantillons prélevés dans la zone fraîchement déposée (Parc 1), on ne note pas de tendances particulières, ni dans la

répartition spatiale, ni dans l'échelonnement vertical. Les valeurs de C_U varient de 9,5 à 15,0, ce qui indique qu'ils sont assez étalés. Les résidus Goldex utilisés pour le montage des colonnes, et fourni par la mine avant le début de son exploitation, sont un peu plus fins que ceux échantillonnés *in situ*. Dans les échantillons prélevés à l'été 2010, la proportion de particules inférieures à 75 μm est comprise entre 30% et 65%, et les D_{10} des échantillons sont de l'ordre de 6 à 18 μm. Les densités relatives des résidus Goldex sont proches de 2,7 (± 0,01).

Les résidus Goldex n'ont été analysés que dans une seule autre étude (Bussière et al., 2011), et les résultats moyens obtenus (C_U = 15,3, D_{10} = 2 μm, D_r = 2,76) indiquent une granulométrie un peu plus fine que celles mesurées ici, mais un étalement et une densité comparables.

La minéralogie de tous les échantillons est uniforme (variations de ±1%). On note l'absence de pyrite et des teneurs en carbonate relativement élevées pour des résidus (comprises entre 2,5% et 3,6%). Ces résultats sont comparables à ce qui a été mesuré par Bussière et al. (2011) : 0% de sulfures et moins de 10% de carbonates.

De façon générale, on en conclut donc que :

- les résidus Manitou, dont certains ont été entreposés pendant plusieurs décennies sur le parc, avec des origines diverses, sont très hétérogènes ; on ne décèle aucune tendance spatiale dans leurs caractéristiques ;
- les résidus Goldex, produits actuellement, ont des caractéristiques beaucoup plus homogènes.

4.2.1.2 Indices des vides

Quelques mesures d'indices des vides ont été réalisées sur le terrain (anneau volumique ; voir section 3.2.3), tant dans les résidus Manitou (oxydés et non oxydés) que sur la couverture de résidus Goldex fraîchement installée (Parc 1). Les résultats sont présentés à l'annexe 4.7.

On observe que les indices des vides des résidus Manitou mesurés sur le terrain sont plus grands que les valeurs obtenues dans les colonnes (voir sections 5.1 et 6.1). Certaines de ces mesures ont été obtenues dans la zone d'épanchement (avant restauration), au bas des digues des Parcs A et B, sur des matériaux relativement lâches comparativement au reste du parc (e > 1,20). L'essai 5

(e = 1,07) a été réalisé à proximité de l'endroit où ont été prélevés les échantillons pour la construction de la grande colonne MNOG.

D'autres campagnes de terrain sur le site Manitou ont permis de mesurer des indices des vides en place compris entre 0,7 et 1,3 (Gosselin, 2007). En général, les indices des vides sur les parcs à résidus varient de 0,6 à 1,7 (Aubertin et al., 2002).

Les valeurs d'indices des vides obtenues dans les résidus Goldex sont plus faibles et varient entre 0,7 et 0,9. Il semblerait que les résidus en profondeur soient légèrement plus denses qu'en surface. Mais on ne dispose pas ici de suffisamment de données pour vraiment pouvoir tirer des généralités. On note également à cet effet que les résidus Goldex dans le Parc 1 avaient été déposés quelques mois seulement auparavant et ne s'étaient donc peut-être pas consolidés complètement au moment des mesures. Les indices des vides pourraient donc encore diminuer au cours du temps. Par ailleurs, rien n'indique que ces valeurs soient transposables aux autres zones de déposition sur le site.

4.2.1.3 Niveaux piézométriques

A partir de 2009, les pressions d'eau ont été mesurées dans des piézomètres installés sur tout le site, au moyen de capteurs de pression automatisés (Bussière et al., 2011). Des mesures ponctuelles ont également été réalisées par l'auteur durant l'été 2008 (les niveaux piézométriques étaient alors à plus de 6 mètres de profondeur sur le parc A).

On constate que, pour une même période de l'année, le niveau piézométrique varie d'un point à l'autre du parc. Elle est affleurante près du lac du parc B, mais peut atteindre jusqu'à 11 mètres de profondeur dans d'autres piézomètres (Bussière et al., 2011).

Le suivi annuel des pressions d'eau dans le piézomètre permet également d'évaluer les fluctuations du niveau phréatique au cours d'une année. La figure 4.13 présente, à titre d'exemple, les fluctuations du niveau de l'eau mesurées dans le piézomètre F7 (à l'ouest du Parc A, près de là où ont été prélevés les échantillons utilisés dans les colonnes de laboratoire). Les précipitations apparaissent aussi sur le graphique.

On note dans la figure 4.13 que le niveau d'eau varie au cours de cette année (2010) de 60 cm. De façon générale, le niveau d'eau semble augmenter d'environ 40-50 centimètres au cours de l'automne, puis diminuer d'autant durant l'hiver, avant de réaugmenter de 60 cm au printemps

(fonte des neiges) et de rediminuer pendant l'été (juin-août). Les résultats des mesures sur les autres piézomètres du parc sont assez similaires (voir Bussière et al. 2011 pour d'avantage de détails).

On dispose également de données préliminaires relevées pendant et après les essais de déposition des résidus Goldex dans le coin sud-ouest du Parc A. Ces résultats indiquent que le niveau de l'eau remonte de 1 mètre (loin de la zone de dépôt) à 4 mètres (piézomètre 9, près de la source de déposition). Malgré cela, la nappe demeure relativement profonde (de -2 mètres sous la surface des résidus à l'ouest jusqu'à -6 mètres à l'extrémité est du Parc A).

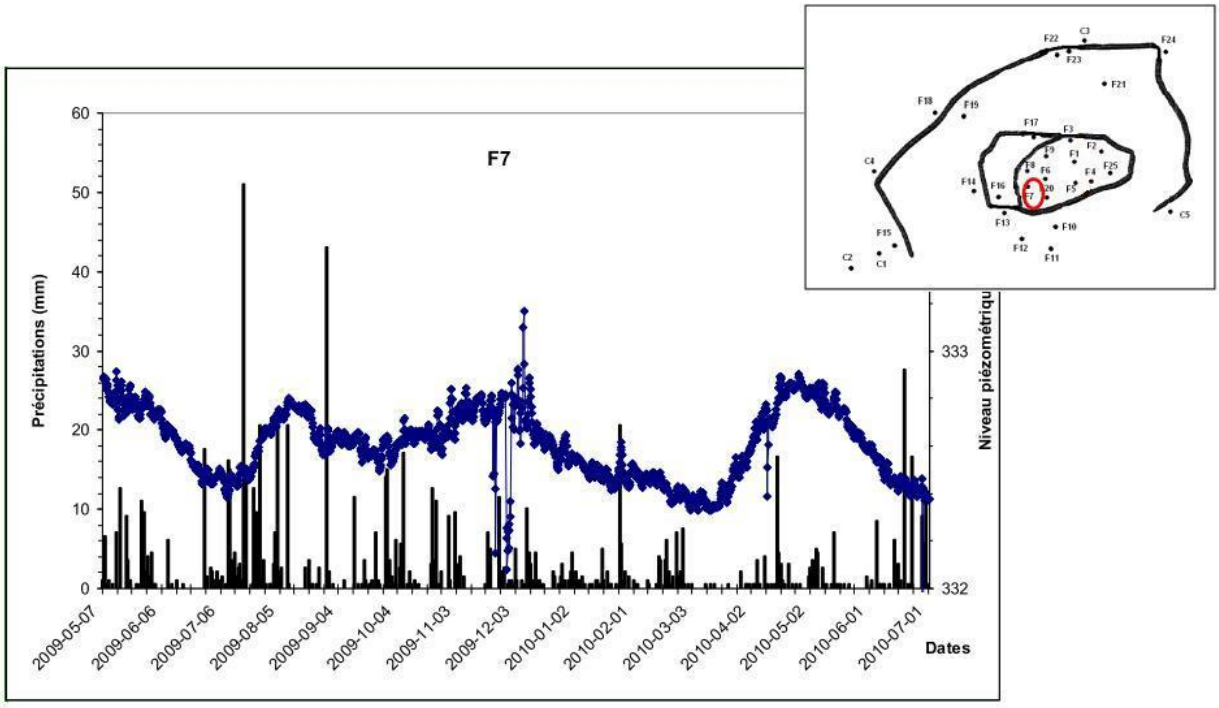


Figure 4.13: Fluctuations du niveau de la nappe dans le piézomètre F7 et précipitations mesurées entre mai 2009 et juillet 2010 (tiré de Bussière et al., 2011)

Dans le cadre de projets connexes, des échantillons d'eau ont été prélevés dans les piézomètres par la méthode du faible débit, faible rabattement, puis analysés par méthode ICP-AES. Ces résultats ne sont pas présentés ici ; on retiendra que, globalement, la conductivité électrique de l'eau interstitielle sur le Parc A est comprise entre 1,8 et 13,4 mS/cm, ce qui impliquerait une forte contamination. Le lecteur pourra se référer au rapport Bussière et al. (2011) pour d'avantage d'information.

4.2.1.4 Essais de consommation d'oxygène et réactivité des résidus

Quelques essais de consommation ont été réalisés sur le site Manitou (Essais C1 à C5), dans les résidus non oxydés et dans la zone d'épanchement, au cours de la campagne de terrain de l'été 2007 (voir figure 4.11 pour l'emplacement des tests). Les essais sont décrits au chapitre 3 (section 3.2.8). Les résultats sont présentés au tableau 4.15. Ils sont également reportés dans la figure 4.14, en comparaison des résultats obtenus pour les essais au laboratoire.

Tableau 4.15: Coefficients du taux de réaction des résidus Manitou estimés par des essais de consommation *in situ*

Essai	S_r (%)	K_r mesuré (an^{-1})
C1	54,5	1900
C2	48,0	1900
C3	30,0	1260
C4	31,3	1260
C5	50,7	315

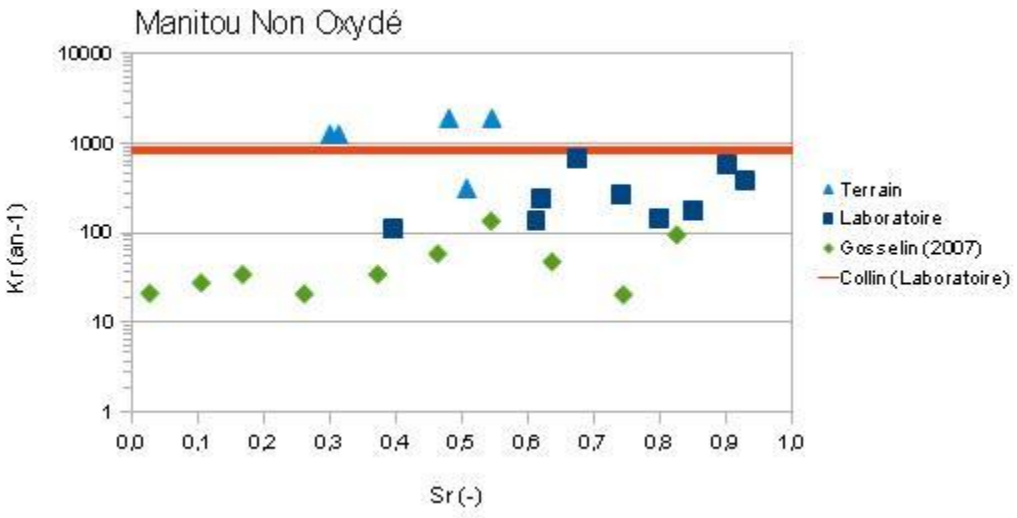


Figure 4.14: Coefficients du taux de réaction K_r estimées par des essais de consommation in situ, comparées aux résultats des mesures de laboratoire et au modèle de Collin (1987)(voir équation 2.18)

La figure 4.14 montre que les valeurs de K_r obtenues sur le terrain, sont comparables à celles mesurées au laboratoire, mais en général plus hautes. Ces valeurs sont assez élevées : on trouve généralement dans la littérature des valeurs de K_r aux alentours de 200 an^{-1} pour les résidus réactifs (e.g. Mbonimpa et al., 2003). On note par ailleurs que la réactivité mesurée ici n'est pas directement liée au contenu en pyrite des échantillons prélevés dans le tube de test (voir annexe 4.5). Ainsi, l'essai C5, normalement sensé être le plus réactif (il contient la plus grande fraction de pyrite), donne les valeurs de K_r les plus faibles. A nouveau, la très forte hétérogénéité complique l'interprétation, et le coefficient du taux de réaction estimé ici n'est qu'une moyenne sur toute la hauteur de résidus investiguée (d'autant plus que le degré de saturation des résidus est peu élevé dans ces essais). On constate aussi que la valeur de la constante de réaction estimée par le modèle de Collin pour les essais de laboratoire donne des résultats assez proches de ceux obtenus sur le terrain.

D'autres tests ont été effectués à travers les résidus Goldex, sur le Parc 1, dans le courant de l'été 2010. Les essais ont montré une consommation d'oxygène très faible (< 1%) au cours des 24 ou 48h d'essais, avec des fluctuations selon les variations de température. Le manque de données ne permet pas une interprétation complète de ces mesures. Les teneurs en eau étant élevées dans les résidus Goldex, il est fort probable que la couverture limite efficacement les flux d'oxygène. On a également mesuré des épaisseurs de résidus Goldex supérieures à deux mètres dans le Parc 1, ce qui pourrait remettre en cause l'hypothèse d'un essai de consommation 1D (le tube ne fait que 50 cm de long). Enfin, la couverture est ici installée sur l'ancienne zone d'épanchement, très hétérogène, tant et si bien qu'il parait difficile d'estimer la réactivité de ce mélange de résidus. Au final, ces essais ont surtout permis de confirmer que les résidus Goldex consommaient très peu d'oxygène (ce qui est en accord avec les essais de consommation au laboratoire et les mesures minéralogiques) et que la couverture en l'état était efficace pour limiter le passage de l'oxygène.

4.2.2 Travaux de terrain sur le site Selbaie

4.2.2.1 Hétérogénéités des résidus et de la moraine

Plusieurs campagnes de terrain ont été organisées sur le site Selbaie, en 2007, 2008, 2009 et 2010, parfois plusieurs fois par année (par l'auteur et le personnel de l'URSTM). Un certain nombre d'essais et d'échantillonnages ont été réalisés à ces occasions, principalement dans la couverture de Moraine mais aussi dans les résidus réactifs (voir aussi Cosset, 2009).

La figure 4.15 présente l'ensemble des courbes granulométriques obtenues dans des échantillons de moraine prélevés sur tout le site durant l'été 2008 et 2009. Les caractéristiques principales de ces courbes sont présentées à l'annexe 4.8.

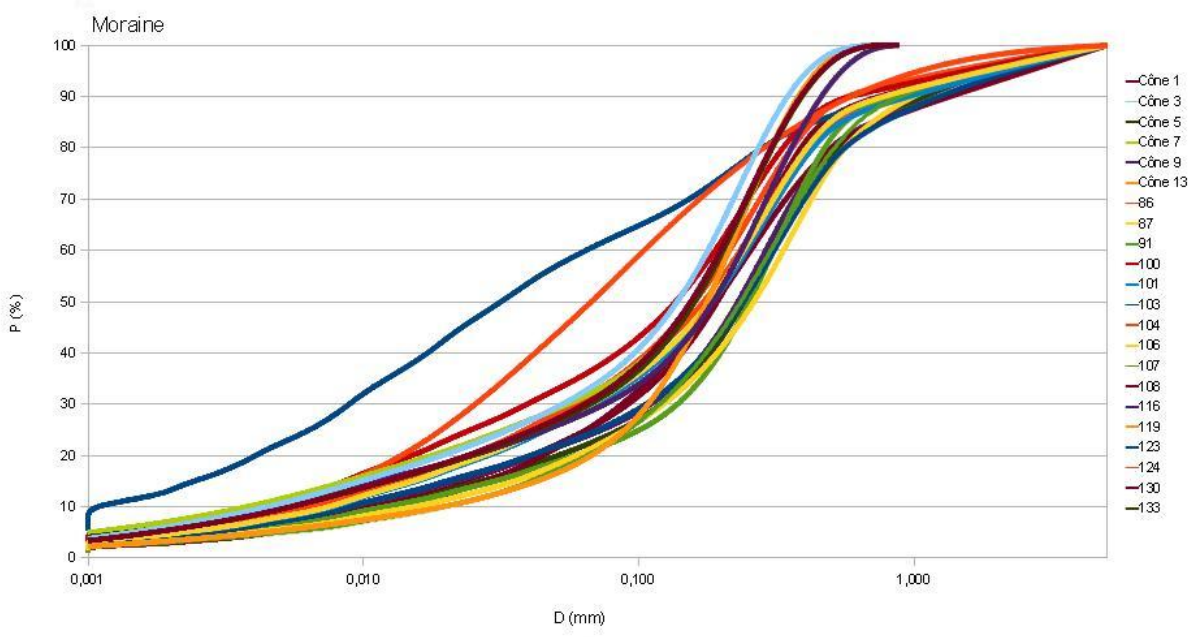


Figure 4.15: Courbes granulométriques mesurées sur divers échantillons de moraine prélevés sur le parc à résidus des Mines Selbaie

On constate sur la figure 4.15 et à l'annexe 4.8 que la granulométrie de la moraine est variable et plutôt étalée en général. Les coefficients d'uniformité C_U varient généralement entre 20 et 40, mais quelques échantillons sont plus étalés ($C_U > 50$) ou plus homogènes ($C_U < 15$). Les D_{10} sont généralement faibles, i.e. entre 1 et 10 μm, avec dans quelques cas des valeurs plus importantes

(20 µm). La fraction de particules inférieures à 75 µm est habituellement comprise entre 20% et 35%, mais elle peut monter à 65% dans quelques échantillons plus fins. On note que deux échantillons sont plus fins que les autres présentés ici (fraction de particules inférieures à 75 µm de 52% et 65%).

Tous ces échantillons ont été triés à l'œil *in situ*, et les grains grossiers (>5 mm environ) ont été écartés. En réalité, sur le terrain, des blocs de plus d'un mètre de diamètre ont pu être observés. On suppose que ces grains et blocs plus grossiers ne sont pas présents en suffisamment grande quantité sur le site pour véritablement modifier l'écoulement par rapport à ce qui sera modélisé, mais ils pourraient affecter les conditions hydriques localement.

Les densités relatives des grains de moraine s'échelonnent de 2,68 à 2,81, mais elles sont généralement autour de 2,70.

En règle générale, la moraine a donc les propriétés d'un silt sableux.

Par ailleurs, divers échantillons de résidus Selbaie, plus ou moins oxydés (estimation visuelle), ont été prélevés et caractérisés. Les résultats des analyses granulométriques sont présentés dans la figure 4.16. L'annexe 4.9 en récapitule les caractéristiques principales. A titre de comparaison, on trace également les courbes granulométriques des résidus SNO et SO qui ont été employés dans le montage des colonnes de laboratoire.

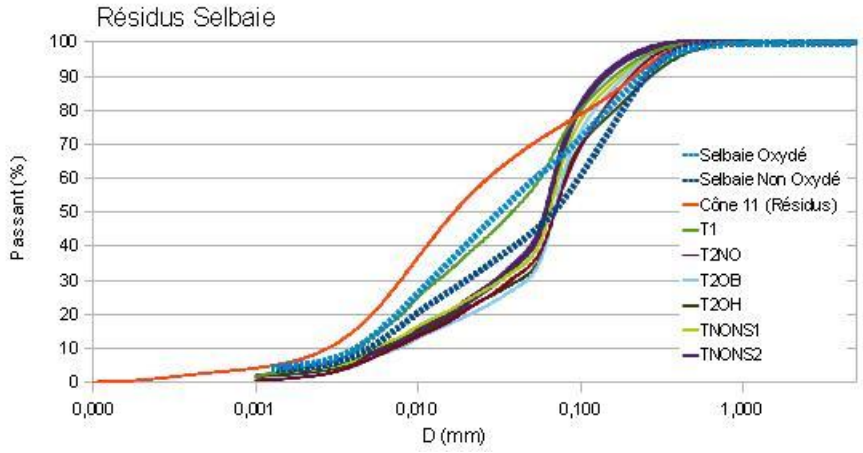


Figure 4.16: Courbes granulométriques mesurées sur divers échantillons de résidus prélevés sur le parc à résidus des Mines Selbaie

On constate sur la figure 4.16 et à l'annexe 4.9 que la plupart des échantillons de résidus prélevés sur le terrain ont des granulométries assez homogènes et peu étalées. Les résidus SNO et SO, employés dans la construction des colonnes de laboratoire, ont une granulométrie un peu plus étalée que les autres. Un échantillon semble également être un peu plus fin que la moyenne. Les coefficients d'uniformité C_U varient de 9,5 à 14,5 environ. Les D_{10} sont assez uniformes et sont compris entre 3 et 8 μm. Les proportions de particules inférieures à 75 μm sont assez importantes dans les résidus Selbaie, et s'échelonnent de 60 à 75%. On constate que globalement les résidus Selbaie ont une granulométrie beaucoup plus homogène que les résidus Manitou.

Dans la littérature, les propriétés des résidus miniers de mines en roches dures analysés peuvent être très variables. Généralement, on mesure en Amérique du Nord des C_U compris entre 8 et 18, des D_{10} entre 1 et 4 μm, et plus de 70% de particules inférieures à 75 μm (Bussière, 2007). Les résidus Selbaie s'inscrivent tout à fait dans ces tendances, et peut-être sont-ils seulement un peu plus grossiers que la moyenne.

La densité relative des grains des échantillons analysés est comprise entre 2,734 et 2,935, ce qui se trouve être dans la partie basse des mesures présentées dans la littérature, lesquelles couvrent une plage allant de 2,7 à 4,0 (Aubertin et al., 2002; Bussière, 2007).

Les analyses LECO réalisées sur les résidus Selbaie prélevés en 2007 ont permis de détecter des teneurs en soufre total de 1,5 à 5,9% et des teneurs en carbone de 0,2 à 0,6%. Les résidus Selbaie contiennent moins de pyrite que les résidus Manitou.

De façon générale, on peut donc conclure que :

- la moraine a une granulométrie assez étalée et plutôt hétérogène ; la présence de gros blocs sur le site pourrait modifier localement l'écoulement ;
- les résidus Selbaie seraient relativement homogènes, malgré une certaine variabilité sur le parc.

4.2.2.2 Indices des vides

Les indices des vides ont été mesurés au moyen d'essais au cône (ASTM 1556). Au total, 12 tests ont été réalisés dans la moraine et un dans les résidus, directement à proximité de la station T2 (voir figure 4.18). Les mesures ont été faites à des profondeurs différentes, à travers toute

l'épaisseur de la couverture. Les résultats sont présentés à la figure 4.17. On constate que les indices des vides dans la Moraine varient entre 0,36 et 0,78. Les indices des vides semblent être un peu plus faibles vers le bas de la couverture qu'au sommet, néanmoins, les valeurs restent assez dispersées.

Cette hétérogénéité des indices des vides à une influence directe sur le comportement de la couverture. Selon les endroits et les profondeurs, les courbes de rétention et les fonctions de perméabilités risquent d'être sensiblement différentes. Par la suite, dans le cadre des analyses paramétriques, toute la gamme d'indices des vides que l'on peut trouver sur le terrain sera prise en compte (voir détails au chapitre 7).

En plus de l'essai au cône, trois mesures d'indice des vides ont été réalisés dans les résidus Selbaie au moyen de la méthode de l'anneau volumique (section 3.2.3). Ont ainsi été mesurés des indices des vides de 0,65, 0,88 et 0,82 à proximité des essais de consommation 1, 2 et 3 respectivement (voir 4.2.2.6).

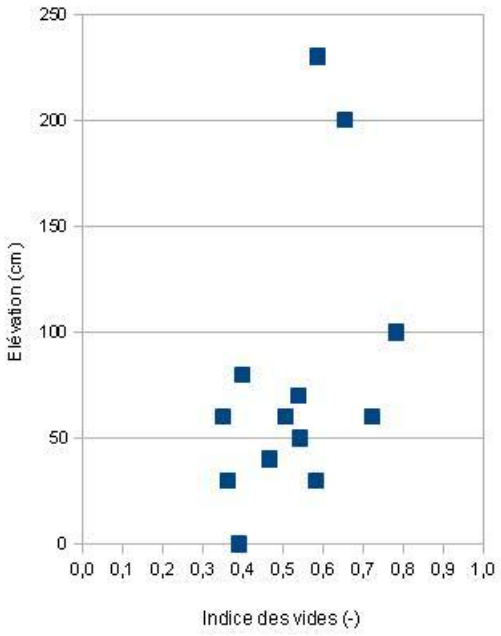


Figure 4.17: Valeurs des indices des vides dans la couverture de moraine et les résidus (z = 0 cm) sur le site Selbaie, obtenus par essais au cône. L'élévation est mesurée à partir de l'interface résidus-couverture (z = 0 cm)

4.2.2.3 Mesures des teneurs en eau et des pressions

Sur le parc Selbaie, 10 tranchées ont été creusées et instrumentées au cours de l'été 2007. Des sondes TDR et des watermarks ont été installés à trois profondeurs différentes dans chacune des stations (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture, et 10 et 30 centimètres en-dessous). En complément, dans deux stations (T5 et T10), les profils de teneurs en eau ont été suivis grâce à l'installation de 5 sondes ECH2O-EC10. Les stations de mesure sont indiquées sur la figure 4.18. Un rapport de l'installation des tranchées de mesures ainsi que leur localisation est disponible à l'annexe 4.10 (voir aussi Cosset, 2009).

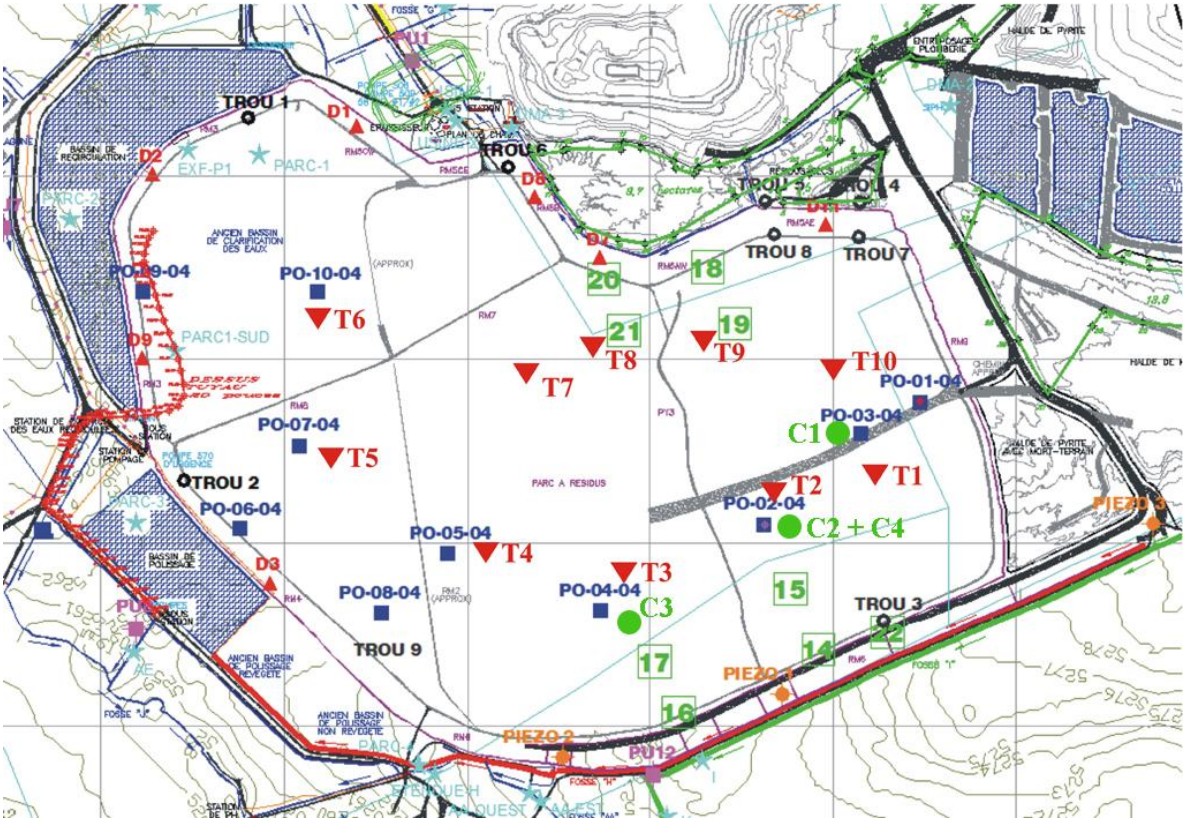


Figure 4.18: Carte du parc à résidus des Mines Selbaie. Points verts notés C1 à C4 : emplacement des essais de consommation ; triangles rouges notés T1 à T10 : emplacement des tranchées et stations de mesures ; carrés bleus et verts : piézomètres

L'observation des variations de teneurs en eau et de pressions dans les 10 stations de mesures ne permet pas de déceler de tendance sur les trois années de mesures. Le fait que les mesures ne soient réalisées qu'à deux ou trois moments de l'année, ainsi que la fragilité de certains capteurs et sondes, explique le peu de données exploitables. Les résultats ne seront pas utilisés dans le cadre de ce doctorat.

4.2.2.4 Niveaux piézométriques

Les niveaux piézométriques sur le site ont été mesurés dans les piézomètres installés sur le parc (voir figure 4.18). Tous ne sont pas exploitables (certains sont bouchés, trop proches des digues pour être représentatifs...) mais les résultats obtenus au cours des différentes campagnes de mesures sont présentés à la figure 4.19.

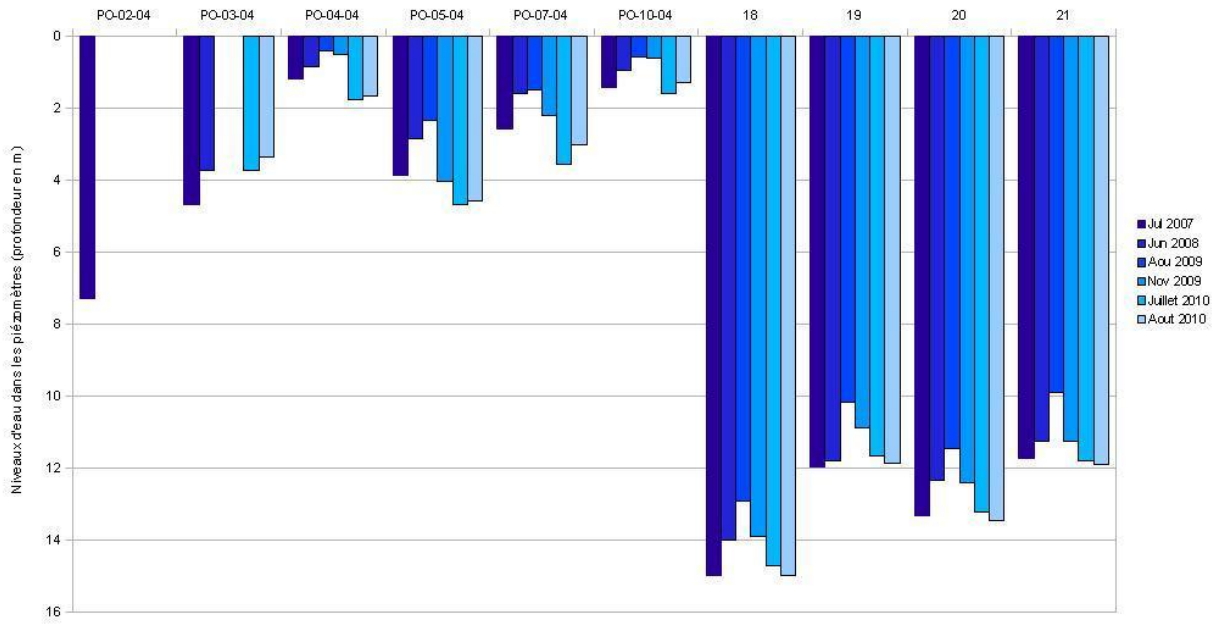


Figure 4.19: Valeurs mesurées des profondeurs d'eau dans les piézomètres sur le parc à résidus Selbaie entre 2007 et 2010

La figure 4.19 permet de constater deux tendances. D'une part les niveaux piézométriques sont très variables sur le site. Proche des limites du parc (piézomètres 18 à 21), l'eau est très profonde (> 10m), certainement en raison d'un drainage préférentiel de l'eau dans les digues construite avec des stériles grossiers. A l'inverse, au centre du parc (piézomètres PO-03-04 à PO-07-04), la nappe

est beaucoup plus proche de la surface, voire même affleurante à certains endroits. La couverture de moraine en surface est d'ailleurs saturée dans certaines zones en raison de la remontée capillaire. Le cas du piézomètre PO-10-04 est un peu différent puisqu'il est installé dans une zone basse (le parc est construit en palier et la surface du sol à cet endroit se trouve une dizaine de mètres environ sous la surface du parc). Le niveau de l'eau y est également assez haut. D'autre part, on constate que le niveau piézométrique varie de façon simultanée sur l'ensemble du parc. Par exemple, on mesure une remontée des niveaux piézométriques d'environ 1 à 2 mètres sur tout le site au mois d'août 2008. Au cours des années 2009 et 2010, les niveaux piézométriques sur le site semblent être redescendus.

4.2.2.5 Teneurs en eau de la couverture de moraine

En même temps qu'ont été effectués les échantillonnages sur la moraine (voir 4.2.2.1), les teneurs en eau volumiques au sommet de la couverture ont été mesurées au moyen d'une sonde TDR (trois branches, 20 cm, non gainée) plantée directement dans le sol (après avoir retiré le couvert végétal).

Les teneurs en eau au sommet de la couverture sont très différentes d'un point à l'autre du site ; elles varient entre 0,04 et 0,31. La figure 4.20 permet d'observer un certain zonage dans la répartition de l'humidité. Une diagonale Nord-Sud au centre du parc présente des teneurs en eau beaucoup plus élevées que sur le reste du site. Sur le terrain, il s'agit d'une zone particulièrement humide où la nappe affleure. Deux autres zones de hautes teneurs en eau sont situées aux extrémités Est et Ouest du parc. En dehors de ces zones, la teneur en eau volumique diminue rapidement et est à peu près constante (autour de 7% environ) sur de larges zones.

On note que ces résultats concordent bien avec les mesures de niveau piézométriques (voir figure 4.19). On constate par exemple que les piézomètres 18 à 21, où des niveaux d’eau de -10 à -14 m ont été mesurés, se trouvent dans une zone où la teneur en eau volumique au sommet la moraine est faible (moins de 0,10). Les piézomètres PO-04-04 et PO-10-04 où la nappe était affleurante sont situés dans une zone où la teneur en eau volumique de la moraine dépasse 0,20.

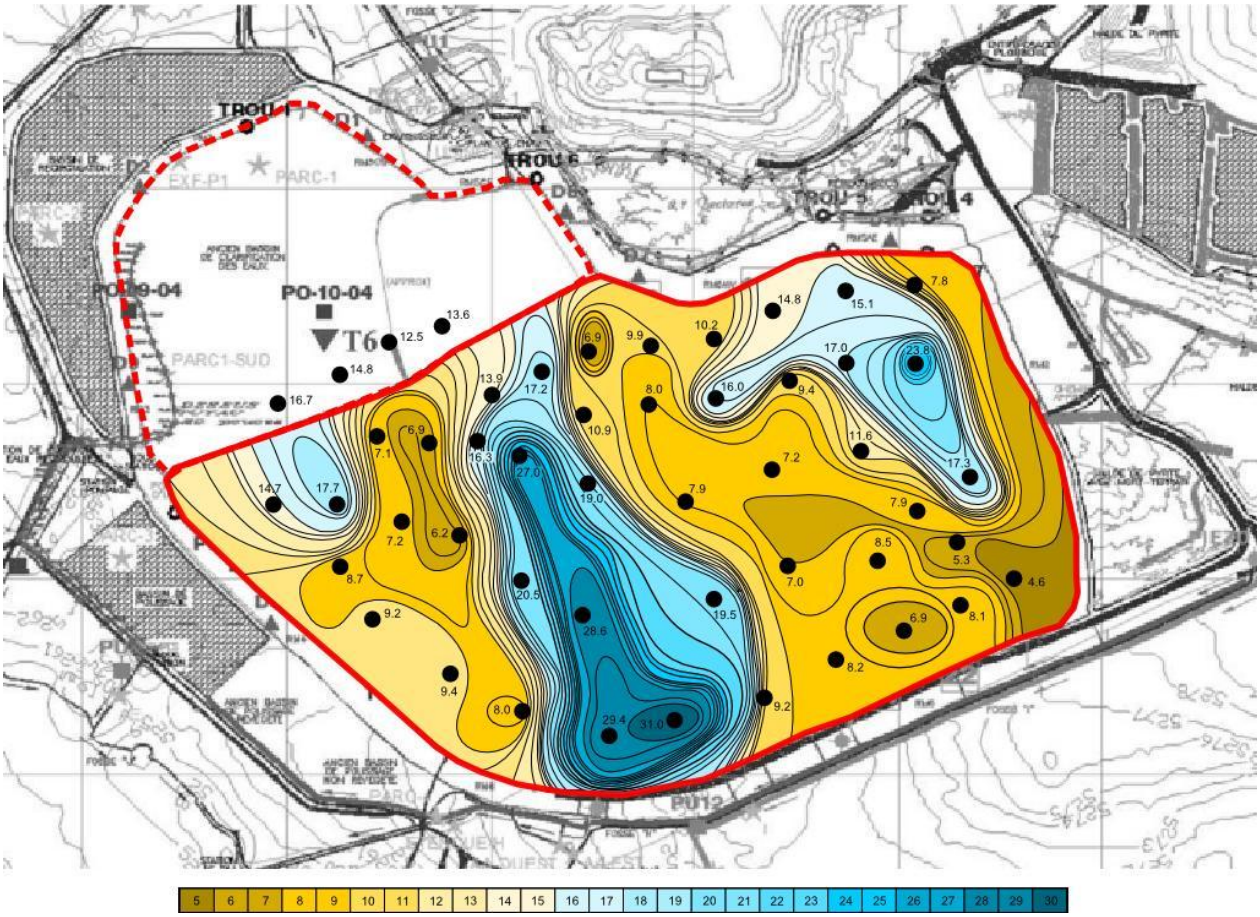


Figure 4.20: Isocontours des teneurs en eau au sommet de la couverture de moraine. Les teneurs en eau volumiques sont données en pourcentages

4.2.2.6 Essais de consommation d'oxygène et réactivité des résidus

A chaque campagne de terrain, des essais de consommation ont été réalisés sur le site Selbaie.

Certains essais ont été effectués directement dans les résidus (frais ou partiellement oxydés), et d'autres à travers la couverture de Moraine (lesquels sont donc plus sensibles au paramètre de diffusion).

Les résultats des essais de consommation dans les résidus sont présentés à la figure 4.21.

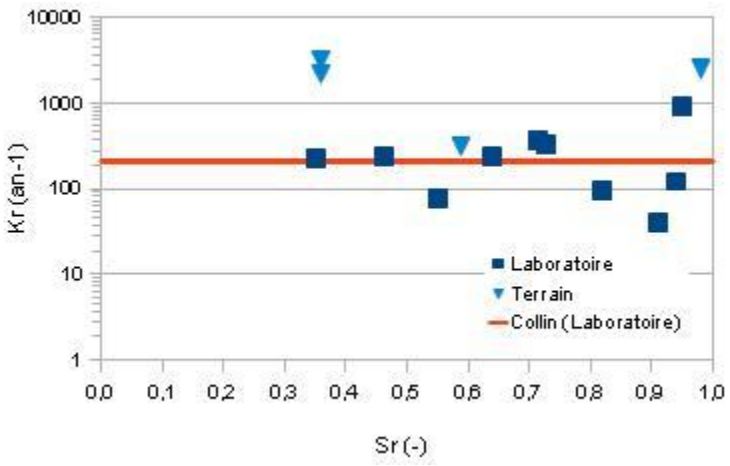


Figure 4.21: Coefficients du taux de réaction K_r estimées par des essais de consommation *in situ* sur le site Selbaie, comparées aux résultats de laboratoire et au modèle de Collin (1987)(voir équation 2.18)

On constate à la figure 4.21 que les coefficients du taux de réactions K_r dans les résidus peuvent varier de plus ou moins un ordre de grandeur. Les valeurs obtenues par les essais *in situ* sont par ailleurs plus importantes qu'au laboratoire trois fois sur quatre. Un seul des essais de consommation de terrain donne une estimation du K_r proche des résultats de laboratoire.

On en déduit que la réactivité des résidus Selbaie peut varier de façon importante sur le site. On note cependant qu'une incertitude réside dans les essais de terrain. Sur l'un des essais, le très fort degré de saturation (environ 98%) affecte l'estimation du K_r. En effet, dans ce cas, l'essai de consommation devient très dépendant de la valeur de D_e et donc de l'estimation du degré de saturation lui-même. Or il a pu être constaté plus haut que les mesures d'indices des vides semblaient relativement imprécises.

Enfin, des tests de consommation ont également été réalisés à travers la couverture de moraine. En raison des difficultés d'installation des essais (moraine hétérogène et indurée, présence de blocs, épaisseur de la couverture etc.), des aléas climatiques (précipitations abondantes, capteurs d'oxygènes sensibles à la température) et du contexte (les essais doivent durer longtemps pour mesurer une baisse significative des concentrations d'oxygène, or les tests sont prévus pour des essais de courte durée), la plupart des résultats sont inexploitables. La plupart du temps on ne mesure d'ailleurs aucune baisse des concentrations d'oxygène. Par ailleurs, si quelques essais ont

malgré tout fonctionné correctement, il manque certaines données pour les interpréter. Il aurait fallu pour cela mesurer l'épaisseur de la couverture et les degrés de saturation dans les résidus et la moraine. Les essais ont bien été montés près des piézomètres pour permettre d'évaluer ces paramètres, mais les conditions sont trop variables sur le site pour que ces résultats soient fiables.

CHAPITRE 5 RÉSULTATS DES ESSAIS EN GRANDE COLONNE

Les essais en grandes colonnes ont été employés dans ce projet afin de caractériser les écoulements dans les résidus et leur couverture respective, suivre l'évolution géochimique des eaux de drainage, ainsi que pour calibrer les modèles hydrogéologiques et hydrogéochimiques. Les caractéristiques des matériaux ont été présentées au chapitre 4, et le montage des colonnes est décrit au chapitre 3. On s'attache ici à présenter les variations des diverses caractéristiques mesurées au cours des cycles de mouillage-drainage, soient les teneurs en eau, les succions, ainsi que les concentrations en oxygène en divers points des colonnes. D'autres paramètres seront également rapportés, comme les débits de sortie à la base des colonnes ou la géochimie du lixiviat. On présentera aussi certaines caractéristiques des matériaux au démontage des colonnes.

5.1 Caractéristiques hydro-géotechniques

5.1.1 Indices des vides et porosités

Les indices des vides ont été mesurés au montage (sur toute la section de la colonne) et au démontage (par anneau volumique ; voir section 3.2.3) des grandes colonnes. La figure 5.1 présente le profil des indices des vides avant et après les essais. Le tableau 5.1 présente la moyenne des indices des vides mesurés au montage et au démontage. Les résultats détaillés sont rassemblés à l’annexe 5.1.

On constate tout d'abord à la figure 5.1 que les valeurs des indices des vides sont assez dispersées. Dans les résidus Manitou (MNO et MO), la valeur de l’indice des vides est en moyenne de 0,8 et 0,7 respectivement, mais elle peut ponctuellement être aussi faible que 0,44 ou aussi élevée que 0,86. L’indice des vides des résidus Goldex dans les deux grandes colonnes MNOG et MOG est comparable (0,7 en moyenne). La valeur de l’indice des vides dans les colonnes SNOG et SOG est plus faible, soit 0,5 environ pour les résidus SNO, 0,55 pour les résidus SO et 0,5 pour la moraine. Les résultats sont également assez dispersés et peuvent varier entre 0,3 et 0,7.

Tableau 5.1: Indices des vides mesurés au montage et au démontage des grandes colonnes

		Montage	Démontage
MNOG	Goldex	0,75	0,75
	MNO	0,75	0,78
MOG	Goldex	0,65	0,71
	MO	0,62	0,67
SNOG	Moraine	0,46	0,63
	SNO	0,43	0,53
SOG	Moraine	0,43	0,48
	SO	0,57	0,56

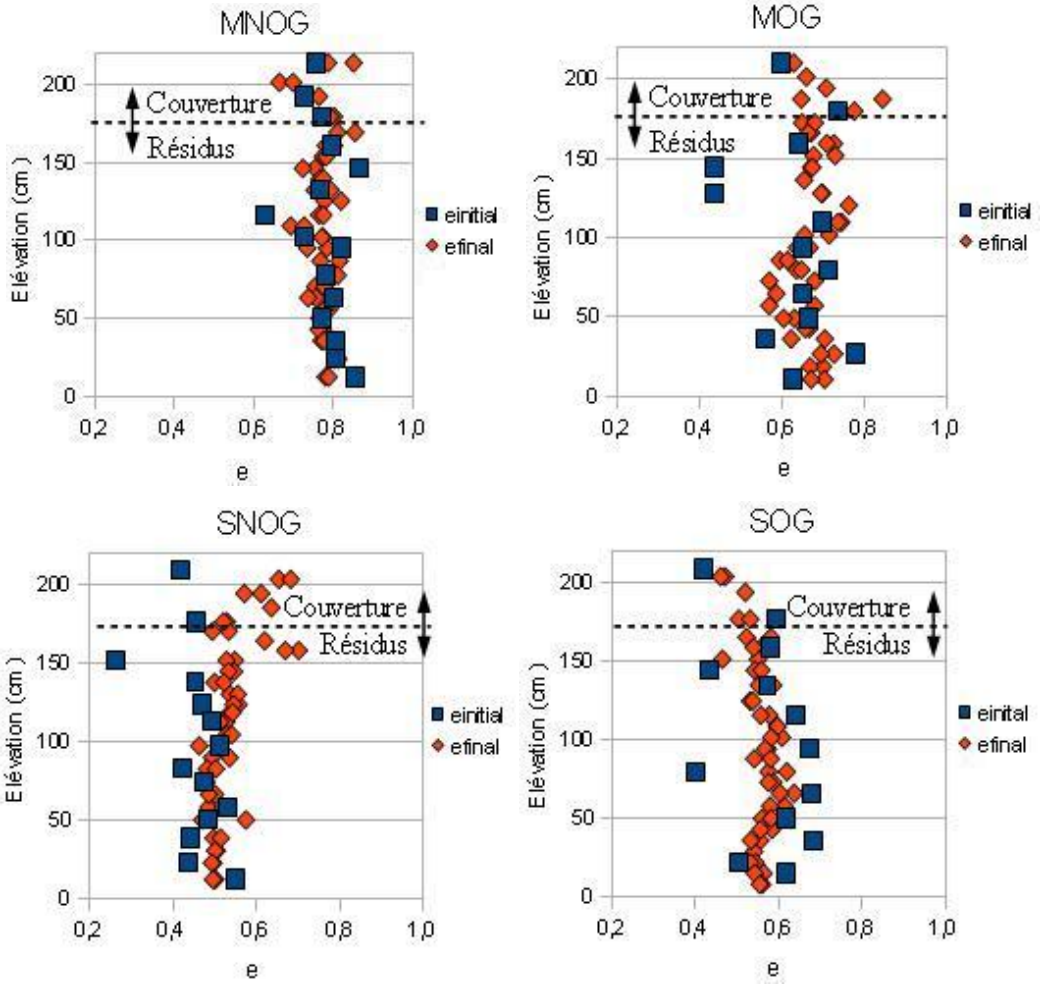


Figure 5.1: Valeurs de l'indice des vides des matériaux mesurées au début des essais et au démontage à différentes élévations dans les grandes colonnes

La taille (réduite) des échantillons prélevés pour les essais par anneaux, les hétérogénéités locales, les diverses imprécisions de mesures (hauteur et diamètre de tranches...), le degré de saturation élevé des matériaux (surtout au montage, mais aussi dans le bas des colonnes au démontage) ou au contraire trop sec (au démontage, dans les couches du haut), expliquent que ces résultats soient relativement imprécis. Le nombre élevé de mesures assure toutefois un résultat statistiquement représentatif.

La forte consolidation des matériaux lors du montage des colonnes, ainsi que les observations au démontage (notamment au niveau des trous laissés dans les matériaux par les instruments), indiquent que les indices des vides mesurés ont peu varié au cours de l'essai.

5.1.2 Conductivité hydraulique

Les indices des vides mesurés dans les grandes colonnes permettent d'estimer la conductivité hydraulique saturée des matériaux en place.

Tableau 5.2: Valeurs retenues du k_{sat} des matériaux dans les grandes colonnes comparées aux valeurs minimales et maximales prédites selon les indices des vides mesurés

Matériau	$k_{sat,\ retenu}$ (m/s) e (-)	$k_{sat,prédit}$ [min; max] (m/s) [e_{min}; e_{max}]	
MNO	$5{,}30.10^{-7}$ 0,78	[$3{,}08.10^{-7}$; $1{,}81.10^{-6}$] [0,63 ; 0,86]	*(KC)*
MO	$1{,}10.10^{-6}$ 0,67	[$5{,}28.10^{-8}$; $1{,}07.10^{-6}$] [0,44 ; 0,78]	*(KCM)*
Goldex	$7{,}70.10^{-7}$ 0,73	[$1{,}52.10^{-7}$; $1{,}14.10^{-6}$] [0,60 ; 0,85]	*(KC)*
SNO	$4{,}00.10^{-7}$ 0,53	[$6{,}41.10^{-8}$; $3{,}10.10^{-7}$] [0,42 ; 0,57]	*(KC)*
SO	$1{,}90.10^{-7}$ 0,56	[$5{,}19.10^{-8}$; $6{,}14.10^{-7}$] [0,40 ; 0,68]	*(KC)*
Moraine	$3{,}00.10^{-6}$ 0,56	[$3{,}68.10^{-8}$; $3{,}46.10^{-7}$] [0,42 ; 0,68]	*(KC)*

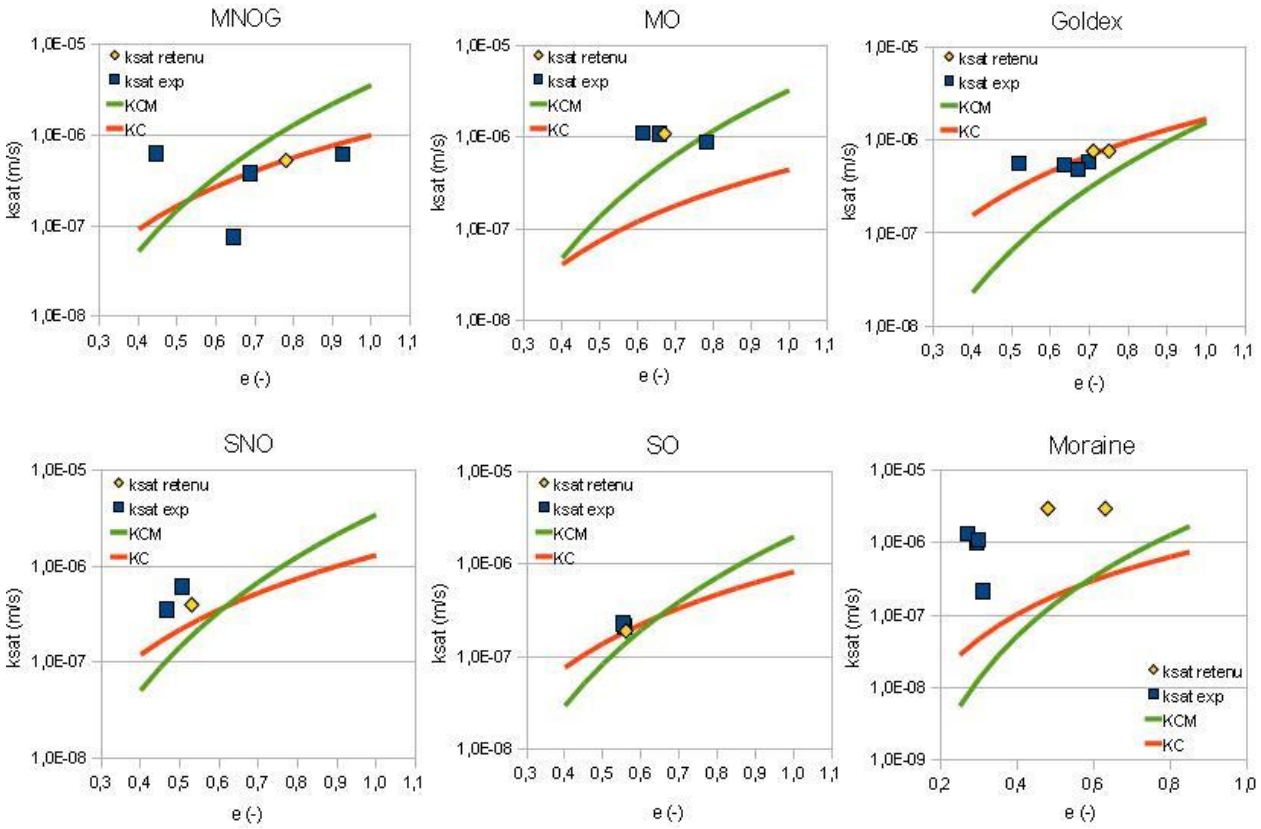


Figure 5.2: Comparaison des conductivités hydrauliques saturées des matériaux dans les colonnes (valeurs retenues ; losanges jaunes) avec les valeurs mesurées (perméamètre, voir section 4.4 ; carrés bleus) ; les valeurs prédites par les modèles prédictifs KC et KCM (respectivement les lignes rouge et verte ; voir section 4.4) sont aussi montrées

Comme établi à la section 4.4, le modèle KC (équation 2.55) semble mieux adapté pour estimer la valeur de k_{sat} des résidus MNO, Goldex, SNO et SO, alors que cette valeur semble mieux décrite par le modèle KCM (équation 2.56) pour MO. La conductivité hydraulique saturée de la moraine est mal estimée par ces deux modèles. Dans tous les cas, on détermine la conductivité hydraulique saturée dans les colonnes de façon arbitraire et de telle sorte à s'approcher au mieux à la fois des valeurs mesurées (perméamètres à paroi flexible ou rigide ; section 4.4) et des valeurs prédites. En détail, on a donc :

- pour les résidus MNO, SO et Goldex, les valeurs de k_{sat} retenues sont obtenues directement par le modèle prédictif (KC) ;

- pour les résidus MO et SNO, les indices des vides des matériaux soumis aux essais au perméamètre (paroi rigide et flexible) étaient relativement proches des valeurs dans les colonnes, et on a modifié légèrement la valeur prédite par KC pour l'amener plus près des points expérimentaux ;
- enfin, pour la moraine, on s'est basé sur les résultats expérimentaux pour déterminer une conductivité hydraulique vraisemblable (soit environ 20 fois la valeur prédite).

Les conductivités hydrauliques saturées des matériaux en place sont rapportées à la figure 5.2 et au tableau 5.2. Ces valeurs sont celles employées dans les simulations.

5.1.3 Conditions atmosphériques (au laboratoire)

Les valeurs des températures minimales et maximales et de l'humidité relative minimale et maximale du laboratoire au cours des cycles de mouillage-drainage sont présentées à la figure 5.3. On représente également les précipitations (qui correspondent à l'ajout d'eau au sommet des colonnes). Le volume d'eau déionisée ajouté au sommet des grandes colonnes est constant tout au long de l'essai (voir tableau 3.3), soit 1,7 L ce qui représente une charge d'environ 10 cm. L'infiltration prend environ 3 jours dans les colonnes MNOG et MOG, mais dure de 6 à 7 jours dans les colonnes SNOG et SOG. Des essais d'infiltration ont été réalisés sur les derniers cycles, mais la faible quantité d'eau ajoutée ainsi que les incertitudes sur les mesures (mesure des niveaux d'eau difficiles, effets de l'évaporation inconnus) n'ont pas permis d'obtenir des résultats satisfaisants.

Les températures varient relativement peu au cours de l'année (entre 21°C et 28,5°C) ; elles sont généralement situées autour de 24°C. L'humidité relative varie avec la saison, soit entre 10% l'hiver et 70% en été.

Les mesures d'évaporation détaillées sont montrées à l'annexe 5.2 ; on retiendra que la moyenne sur l'ensemble des mesures réalisées (sur près d'un an) est d'environ 1,76 mm/j. Aucune tendance n'a été décelée dans la variation de l'évaporation au cours de l'année.

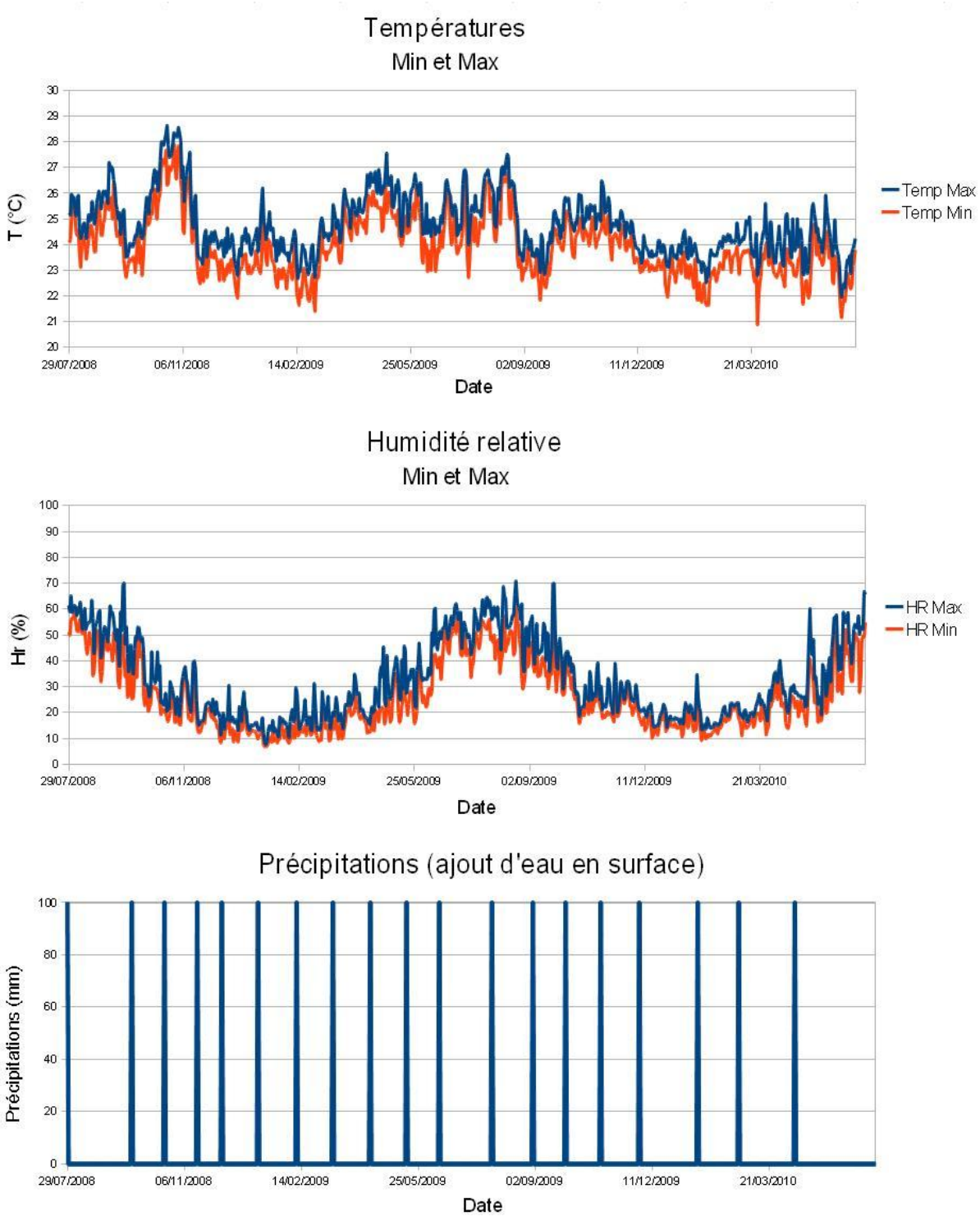


Figure 5.3: Paramètres climatiques mesurés au laboratoire à proximité des grandes colonnes. Les valeurs de température et d'humidité relative ont été mesurées toutes les heures. On montre ici les maximums et minimums journaliers. Le graphique des précipitations représente l'ajout d'eau au sommet de la colonne à divers moment durant le programme d'essai

5.1.4 Débit de sortie

Les débits d'écoulement à la base des colonnes sont présentés à la figure 5.4 sous forme de rapport entre le débit correspondant au volume de lixiviat récupéré à la base des colonnes sur le volume d'eau ajouté au sommet au début de l'essai (le volume type ajouté étant de 1700 cm^3 soit environ 10 cm). Ce rapport du débit de récupération facilite les comparaisons avec les modèles numériques qui n'ont pas les mêmes caractéristiques géométriques que les essais en colonne.

Le rapport de récupération moyen pour les colonnes MNOG et MOG est (sauf pour le premier cycle) proche de 50% pour la plupart des cycles, et autour de 60% pour les colonnes SNOG et SOG. On récupère moins d'eau que l'on en ajoute en raison de l'évaporation. Les conditions climatiques peuvent affecter le régime hydrique et la désaturation des matériaux dans les colonnes.

Les pentes des courbes (au début de l'essai) sont un peu différentes selon les colonnes. La colonne MNOG montre un écoulement qui apparait à la base de la colonne entre une et deux journées après l'ajout d'eau au sommet de celle-ci. Le délai est de 2 à 3 jours pour MOG et de 3 à 4 jours pour SNOG et SOG. Le délai entre le début du cycle (ajout d'eau) et le début de l'écoulement à la base semble lié en partie à la durée du cycle précédent : plus ce dernier a duré longtemps, plus la colonne aura eu le temps de s'assécher (surtout par évaporation) et plus le temps que mettra l'eau à la traverser sera long. Inversement, plus le cycle précédent aura été court, plus il restera d'eau dans la colonne et plus grande sera la conductivité hydraulique (non saturée), entrainant un début de drainage plus rapide au bas de la colonne.

Le temps que dure l'écoulement varie également selon les colonnes. Il est généralement de 4 jours pour MNOG et MOG et de 7 jours pour SNOG et SOG ; ceci est relié à la conductivité hydraulique des matériaux qui est plus grande pour les résidus Manitou.

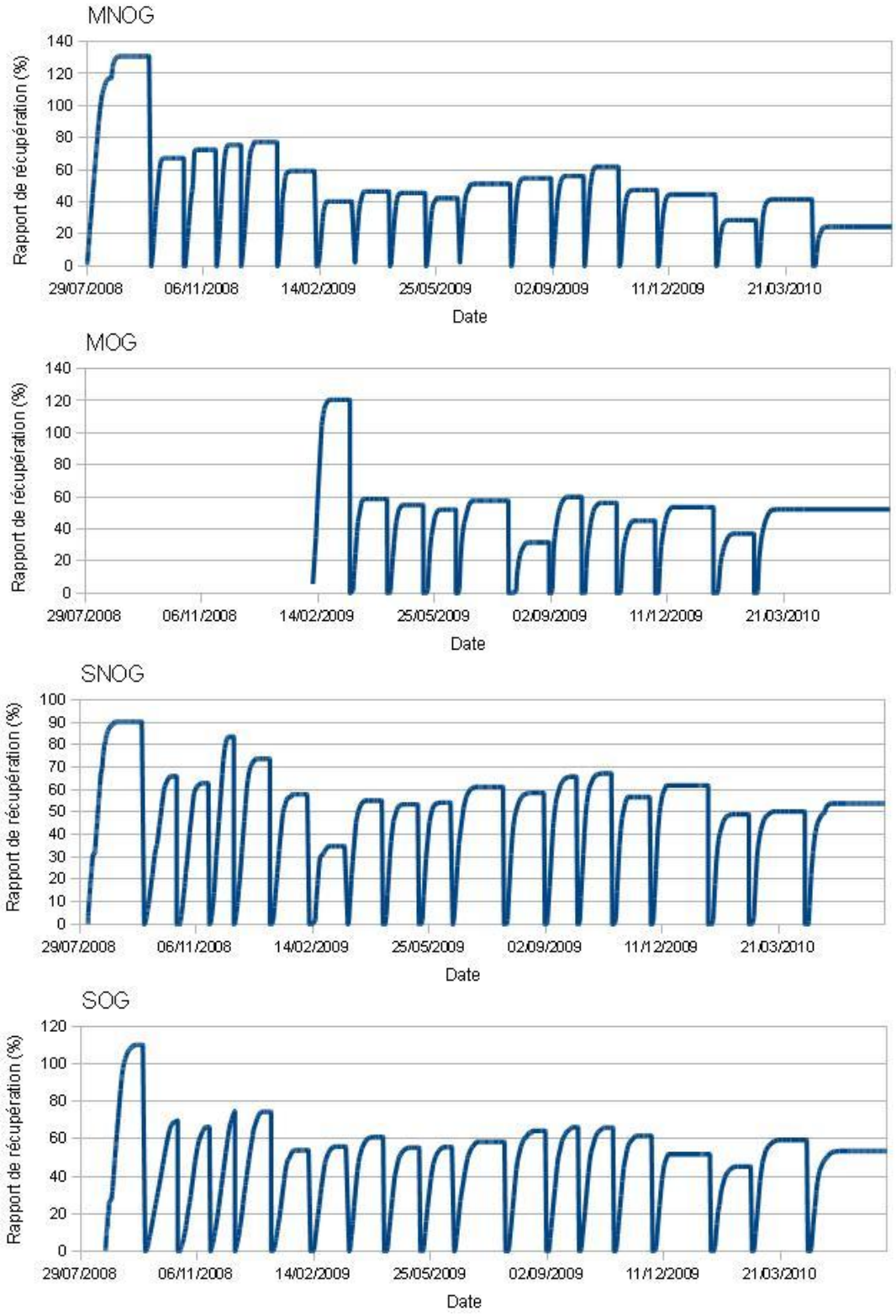


Figure 5.4: Rapport des volumes récupérés sur les volumes ajoutés au début de chaque cycle ; le volume d'eau initialement présent dans les colonnes au début de l'essai explique la valeur supérieure à 100% pour le premier cycle

On constate que le rapport au premier cycle dépasse les 100% en raison de l'eau interstitielle déjà présente dans les colonnes (l'essai démarre avec matériaux saturés et une tête d'eau qui surnage). Pour SNOG, on récupère toutefois une plus petite quantité d'eau (rapport < 100%). On suppose qu'une plus grande quantité d'eau a été perdue par évaporation ou retenue dans la colonne. La courbe du premier cycle pour MNOG, SNOG et SOG présente également une légère inflexion liée au fait que l'on a appliqué les succions (selon la position du tube en U) en deux étapes au début de l'essai : un premier pallier jusqu'à une position de 0 m (succion nulle à la base de la colonne) puis, lorsque l'écoulement était stabilisé (débit de sortie quasiment nul), un second pallier avec la sortie du tube à une position de -90 cm.

On constate de légères variations mensuelles. Par exemple, en règle générale, le rapport de récupération est plus faible l'hiver, ce qui concorde avec une humidité relative plus faible (voir figure 5.3) et donc une évaporation plus intense. Durant l'été, lorsque l'humidité relative est plus élevée (et l'évaporation plus faible), le rapport de récupération est habituellement plus grand. Ces variations saisonnières peuvent aller jusqu'à ±20% par rapport à la moyenne.

Le système de bouchon servant à prévenir l'évaporation dans les bouteilles s'est avéré être efficace (moins de 6 mL d'évaporation en plus d'un mois). Il s'agit de quantités négligeables compte tenu du fait que les bouteilles étaient pesées sur une durée n'excédant pas 10 jours.

5.2 Teneurs en eau volumiques

Les figures 5.5 et 5.6 présentent les résultats des mesures de teneurs en eaux volumiques au cours des cycles de mouillage-drainage sur chaque colonne. On retrouve dans le même graphique les résultats des mesures des trois sondes TDR ainsi que de la sonde ECH2O (la calibration des senseurs a été présentée à la section 3.3.3.2). La position de chaque capteur est précisée à la section 3.3.3. Les valeurs aberrantes ont été retirées sur ces graphiques (teneurs en eau négatives, variations ponctuelles de plusieurs dizaines de pourcents etc.).

Les mêmes graphiques exprimés en degrés de saturation sont présentés à l'annexe 5.3.

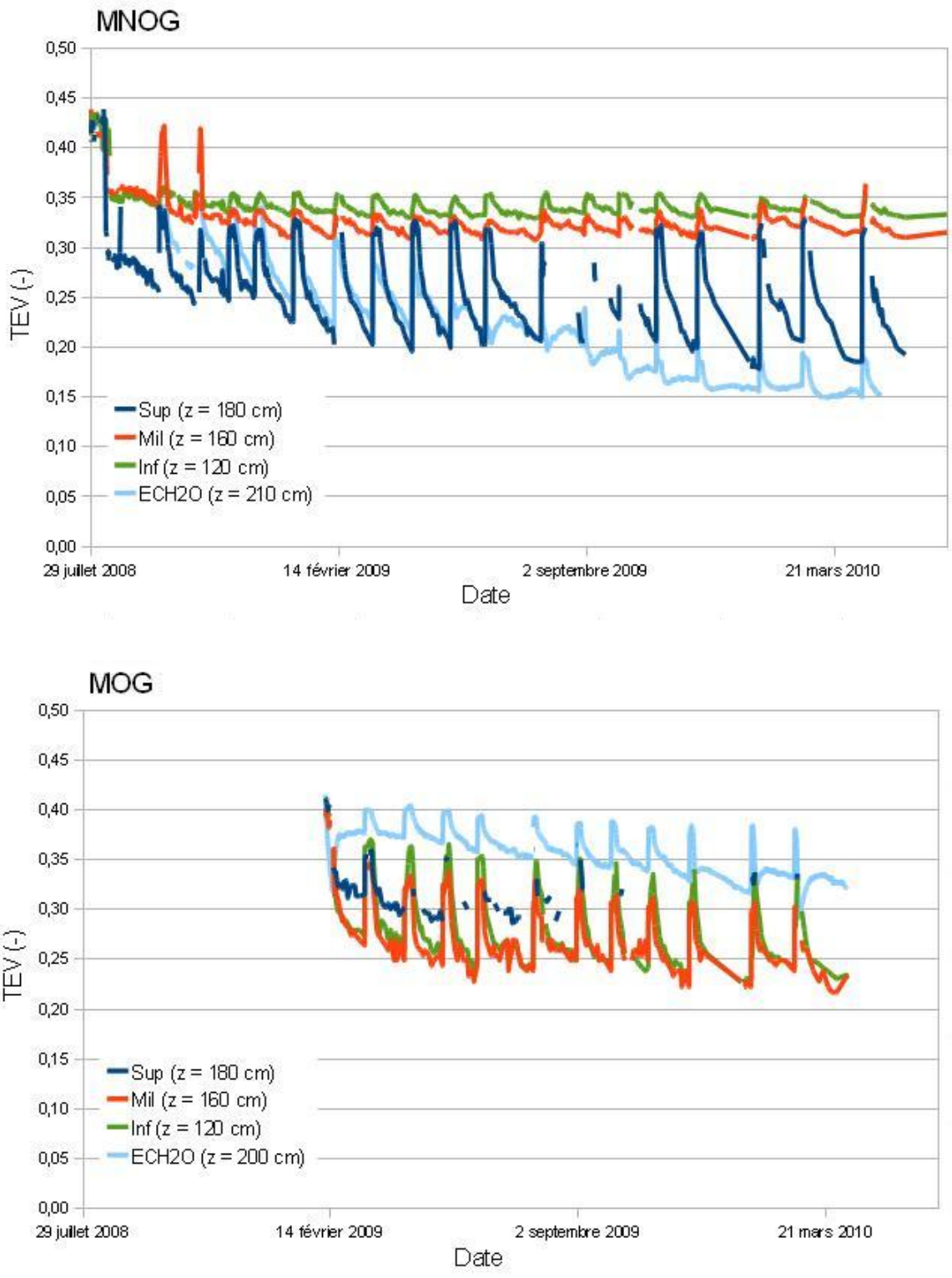


Figure 5.5: Variations des teneurs en eau volumiques mesurées dans les grandes colonnes MNOG et MOG au cours des cycles de mouillage-drainage ; les élévations z des capteurs sont données par rapport à la base des colonnes

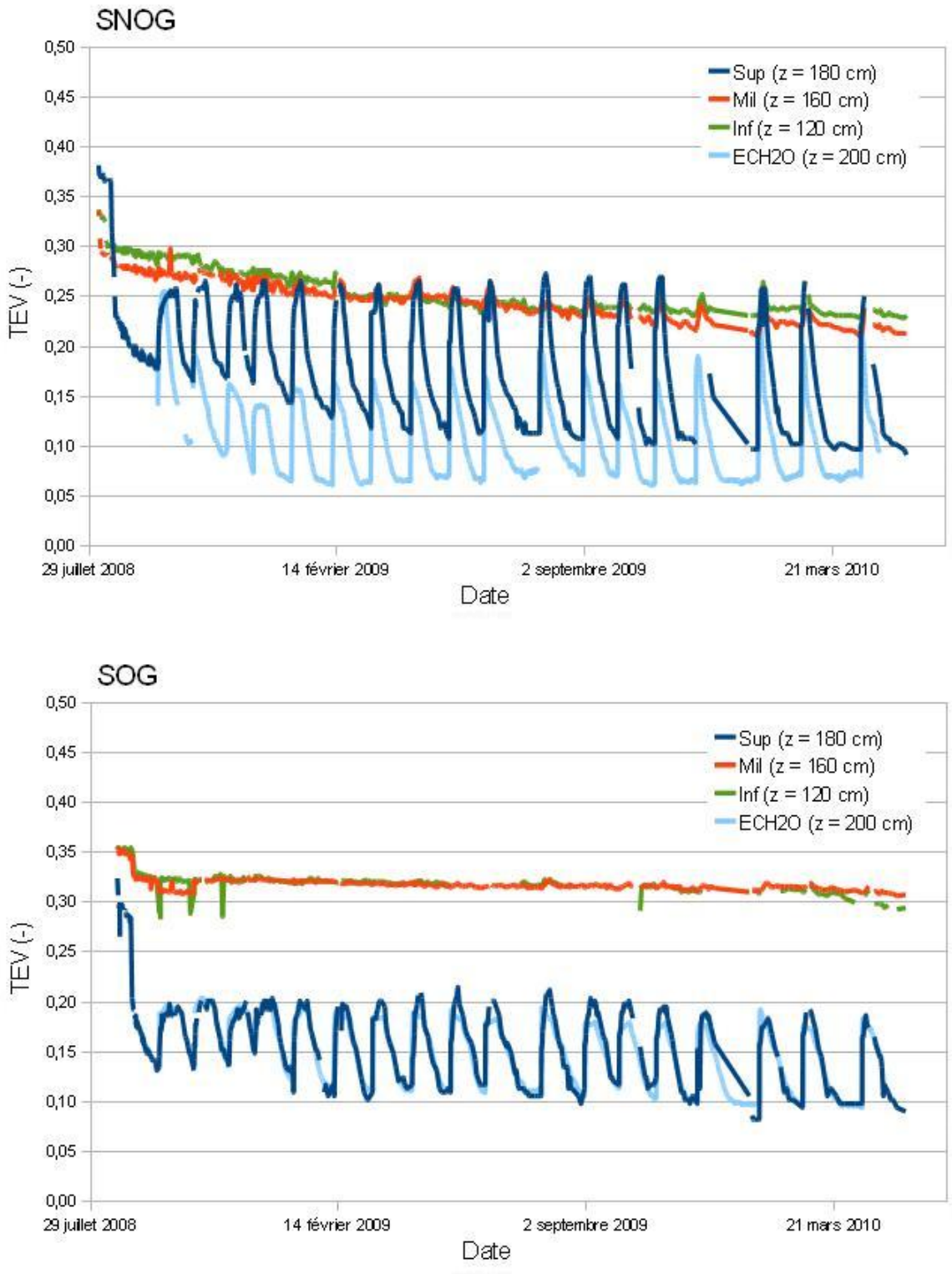


Figure 5.6: Variations des teneurs en eau volumiques mesurées dans les grandes colonnes SNOG et SOG au cours des cycles de mouillage-drainage ; les élévations des capteurs sont données par rapport à la base des colonnes

De façon générale, on peut noter sur ces graphiques que :

- chaque pic correspond au début d'un cycle. L'ajout d'eau au sommet de la colonne induit une augmentation de la teneur en eau volumique pouvant aller de quelques centièmes (l'augmentation est à peine visible sur les TDR Mil et Inf de SOG) à près de 0,20 (TDR Sup de SNOG). La vitesse à laquelle la teneur en eau volumique augmente dépend de la position de la sonde. Ceci est particulièrement visible pour la colonne MNOG où les maximums sont légèrement décalés dans le temps (correspondant à l'arrivée du front de mouillage) ;
- la teneur en eau volumique augmente avec la profondeur (ou diminue avec la distance à la sortie). Ceci est la conséquence de la succion liée à la position de la sortie du tube en U (qui augmente à mesure qu'on s'en éloigne) et de la succion due à l'évaporation (qui est plus forte près de la surface). Ainsi la courbe Inf (z = 120 cm) se situe au-dessus de la courbe Mil (z = 160 cm), et la courbe Sup (z = 180 cm) se situe au-dessus de la courbe ECH2O (z = 210 cm) ;
- la teneur en eau volumique initiale est égale à la porosité mais est moins élevée pour les cycles suivants (S_r < 100% pour tous les capteurs). Il s'agit là d'un effet d'hystérésis, ou, plus précisément, d'une différence de satiation entre le premier cycle en drainage et les cycles suivants en mouillage. En d'autres termes, certains pores, remplis d'eau initialement (suite à la mise en place des matériaux dans les colonnes), se désaturent lors du premier cycle. Puis, remplis d'air au drainage, ils ne sont pas remplis d'eau lorsque le front de mouillage passe à leur niveau. La teneur en eau volumique résultante est donc inférieure à la porosité pour les cycles de mouillage subséquents ;
- dans certains cas, la teneur en eau volumique semble diminuer tout au long de l'essai. Par exemple, les courbes Mil et Inf de SNOG voient leurs minimums de fin de cycle diminuer de près de 0,10 entre le premier cycle et le dernier. Pour les sondes ECH2O, la diminution est de 0,08 entre le premier et le septième cycle avant de se stabiliser pour SNOG et de presque 0,15 pour MNOG ;
- on peut observer sur plusieurs courbes (surtout MNOG et MOG) que l'évolution de la teneur en eau volumique semble suivre trois phases pour chaque cycle. La première phase correspond à un palier où la teneur en eau volumique est maximale et à peu près

constante, associée au passage du front de mouillage au point de mesure. Durant la seconde phase, qui débute quelques jours après le début du cycle, la teneur en eau volumique décroit de façon marquée (parfois de plus de 0,10 en quelques jours). Pendant la troisième phase, qui dure tout le reste du cycle, la teneur en eau volumique continue de décroître, mais plus lentement (environ 50% de la baisse survenue durant la seconde phase). Cette dernière baisse de teneur en eau peut être reliée à l'évaporation. Ces observations seront confirmées par les modélisations numériques (voir chapitre 7).

Remarques spécifiques :

- MNOG : les variations de la teneur en eau volumique sont très marquées dans la couverture. La teneur en eau dans les résidus varie assez peu (elle baisse jusqu'à environ 0,32). Dans la couverture, θ_w est de 0,20 environ après 30 jours de drainage. La sonde ECH_2O présente deux phases de comportement distinct. Jusqu'au 9^{e}cycle, le degré de saturation au sommet de la couverture suit bien les variations mesurées avec la sonde TDR placées 20 cm plus bas. Puis, à partir du 10^e cycle, la teneur en eau volumique mesurée par la sonde ECH_2O ne dépasse pas 0,25. On peut supposer que le matériau est devenu sec et que des passages préférentiels se sont formés (retrait, décollement). Ainsi, l'eau s'est écoulée plus rapidement à travers le sommet de la couverture sans augmenter la teneur en eau (comme c'était le cas plus tôt). Le matériel sec peut aussi s'être désolidarisé de la sonde, et les mesures s'en sont trouvées erronées ;

- MOG : la courbe de teneur en eau volumique mesurée par la sonde ECH_2O se situe à des valeurs plus élevées que celles obtenues par les TDR. La différence de granulométrie entre les résidus Goldex et les résidus Manitou Oxydés pourrait engendrer un (léger) effet de barrière capillaire. Malheureusement, le dysfonctionnement de la sonde TDR Sup ne permet pas de confirmer cette possibilité. On note toutefois que les quelques résultats obtenus indiquent des teneurs en eau dans la couverture près de l'interface un peu plus élevées que dans les autres colonnes. Bien que la couverture semble être ici plus proche de la saturation, S_r ne dépasse pas 80% après 30 jours de drainage (voir annexe 5.3). Comme les résidus MO sont plus grossiers que les autres, et que leur AEV est également plus faible, ils ont tendance à se désaturer d'avantage que ceux dans les autres colonnes (S_r = 60% avec des variations de près de 30% au cours d'un cycle ; voir annexe 5.3) ;

- SNOG : les résultats sont assez semblables à ceux obtenus pour MNOG. La teneur en eau volumique des résidus varie relativement peu et reste à des valeurs autour de 0,25 (la teneur en eau volumique à satiation θ_{max} diminue de 0,30 à 0,20 au cours de l'essai). La couverture de moraine voit sa teneur en eau volumique varier d'avantage au cours de chaque cycle (variations de 0,17), et elle s'assèche considérablement ($S_r \approx 30\%$ en bas de la couverture, et moins de 20% à son sommet ; voir annexe 5.3) ;
- SOG : les tendances sont similaires à celles dans SNOG. Les résidus demeurent relativement saturés ($S_r > 80\%$) même si la tendance est à la baisse. La couverture voit sa teneur en eau volumique varier de plus de 0,10 et S_r n'excède pas 30% à la fin des cycles de mouillage-séchage (voir annexe 5.3).

Dans tous les cas, on observe que la teneur en eau volumique (et le degré de saturation) dans les couvertures est faible en fin de cycle (par rapport aux objectifs usuels). On s'attend donc à ce qu'un flux d'oxygène non négligeable traverse les couvertures et qu'il y ait génération de drainage minier acide lorsque les résidus contiennent des minéraux sulfureux. L'analyse chimique des lixiviats récupérés à la base des colonnes permettront de confirmer ces hypothèses.

En complément des mesures indirectes de teneur en eau prises au cours de l'essai, on a également mesuré les teneurs en eau massiques de chaque couche au démontage des grandes colonnes. Grâce aux indices des vides mesurés dans les mêmes matériaux (section 5.1.1), on peut estimer les valeurs de teneur en eau volumique et du degré de saturation. On présente ces résultats à la figure 5.7. Deux mesures ont typiquement été réalisées pour chaque couche. Même si certains résultats s'avèrent relativement dispersés (en raison de l'imprécision de la méthode), des tendances sont décelables.

- La colonne MNOG montre un degré de saturation qui décroit de bas en haut de façon assez continue. Ainsi, les résidus sont saturés à 75% environ entre 0 et 150 cm. Puis dans les 20 centimètres qui les séparent de l'interface résidus-couverture, le degré de saturation diminue d'environ 15%. Dans la couverture de résidus Goldex, les valeurs de S_r décroissent de 50 à 35% environ. On confirme ainsi qu'après un certain temps de séchage (environ 50 jours ici), la couverture est largement désaturée, et ne permet pas de limiter efficacement le flux d'oxygène et l'oxydation des résidus sous-jacents.

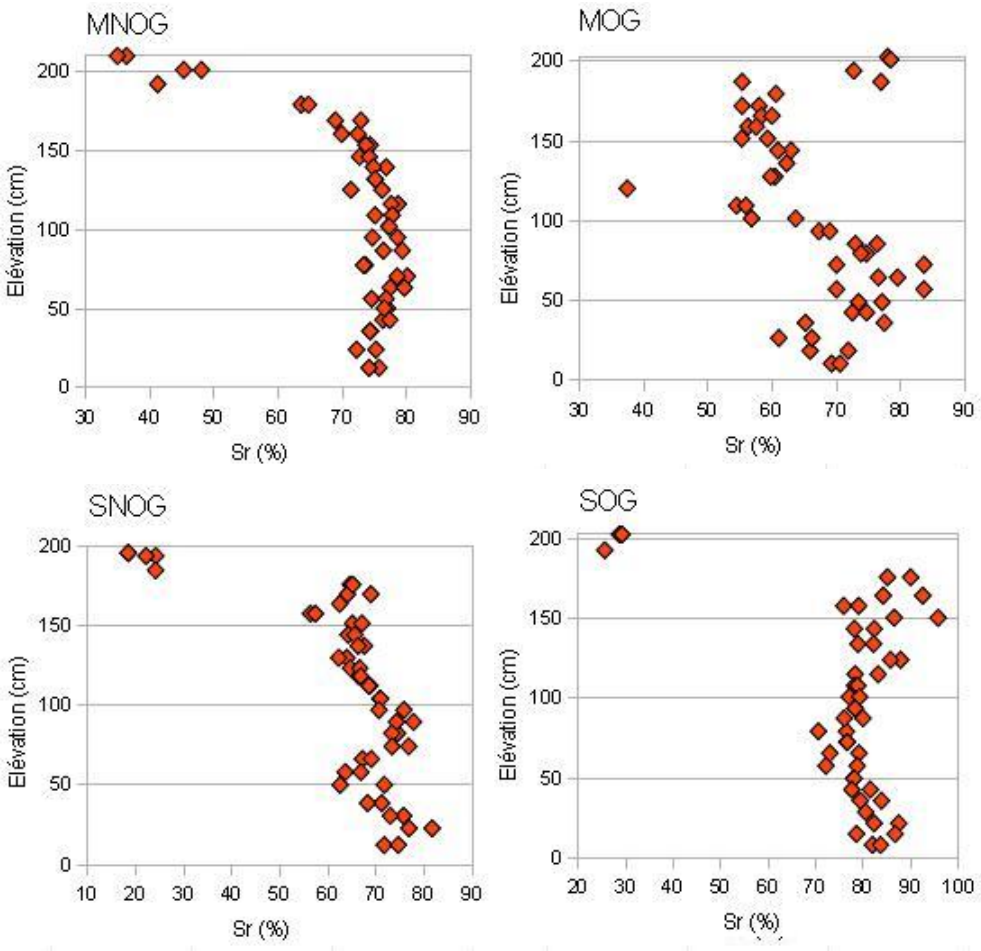


Figure 5.7: Valeurs des degrés de saturation dans les grandes colonnes mesurées au démontage ; une ou deux mesures ont été effectuées sur chaque couche

- La colonne MOG présente trois zones distinctes. Entre 0 et 100 cm, le degré de saturation des résidus demeure aux alentours de 75%. Entre 100 et 170 cm, la valeur de S_r est également constante, mais plus faible, autour de 58%. Enfin, les résidus Goldex sont plus saturés, avec des valeurs de S_r comprises entre 75 et 80%. Pour expliquer les valeurs plus élevées mesurées entre 0 et 100 cm, on peut supposer que les effets de l'évaporation se font un peu moins sentir à ces profondeurs ou que le milieu n'a pas encore atteint son état d'équilibre. Enfin, la couverture demeure relativement saturée, ce qui laisse penser qu'un effet de barrière capillaire (léger) se serait développé entre les résidus Goldex fins et les résidus Manitou Oxydés plus grossiers.

- Les résidus SNO voient leur degré de saturation décroitre de 80 à 60% entre la base et l'interface. Le degré de saturation dans la couverture n'est que de 20%. Cette forte désaturation de la couverture la rend inefficace pour prévenir le flux d'oxygène (et la génération de DMA).
- Dans la colonne SOG, les résidus SO montrent un S_r autour de 82% et qui ne varie pratiquement pas avec l'élévation. La couverture de moraine est (comme pour SNOG) très désaturée (les valeurs de S_r sont comprises entre 25 et 30%). Là encore, la couverture n'empêche pas le flux d'oxygène d'atteindre les résidus.

Ces mesures permettront de calibrer avec plus de précisions les modèles numériques (voir section 7.2.1.1). Les résultats présentés à la figure 5.7 sont exprimés en teneurs en eau volumiques à la figure 7.7

5.3 Pressions d'eau

On présente aux figures 5.8 et 5.9 les principaux résultats des mesures de pression d'eau (exprimée en terme de charge de pression, en cm) au cours des cycles de mouillage-drainage sur chaque colonne. Les résultats de trois tensiomètres par colonne (Sup, Mil et Inf) sont présentés dans un même graphique. La position de chaque capteur est précisée au chapitre 3 (voir section 3.3.3), avec z mesuré par rapport au bas de la colonne.

Les valeurs aberrantes ont été retirées (variations ponctuelles de plusieurs centaines de centimètres, remontées à 0 cm des pressions en fin de cycle...). On estime que la plupart de ces mesures non réalistes, survenant vers la fin des cycles de drainage, sont dues à la désaturation des capteurs. L'oxygénation de l'eau ajoutée au sommet des colonnes, sa forte contamination (induisant des phénomènes de diffusion à travers la bougie de céramique du capteur) et les succions élevées développées (principalement dues aux phénomènes d'évaporation près du sommet des colonnes) sont autant de facteurs qui peuvent expliquer ces valeurs erronées.

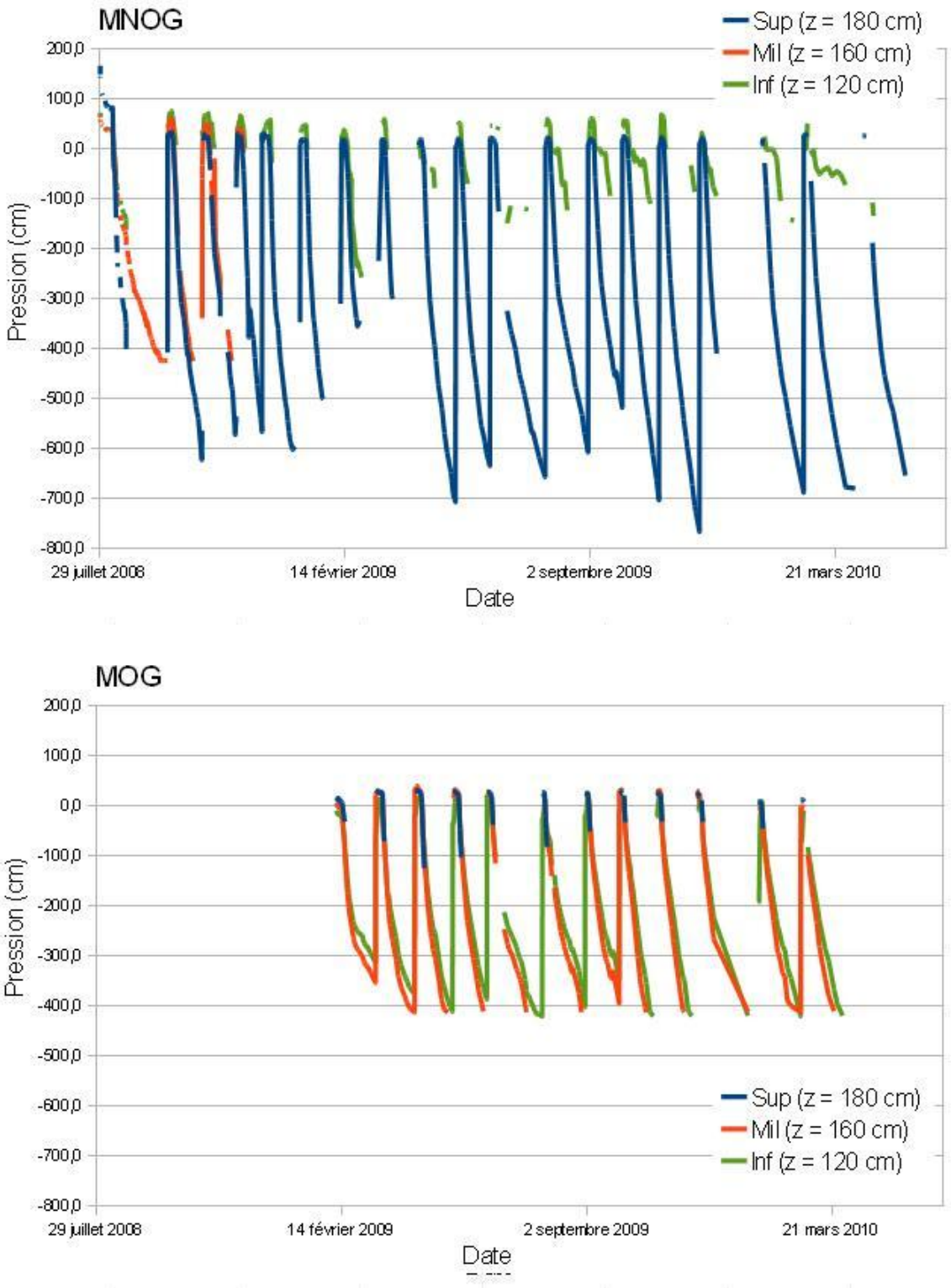


Figure 5.8: Variations des pressions dans les grandes colonnes MNOG et MOG au cours des cycles de mouillage-drainage ; l'élévation z des capteurs est exprimée par rapport à la base de la colonne

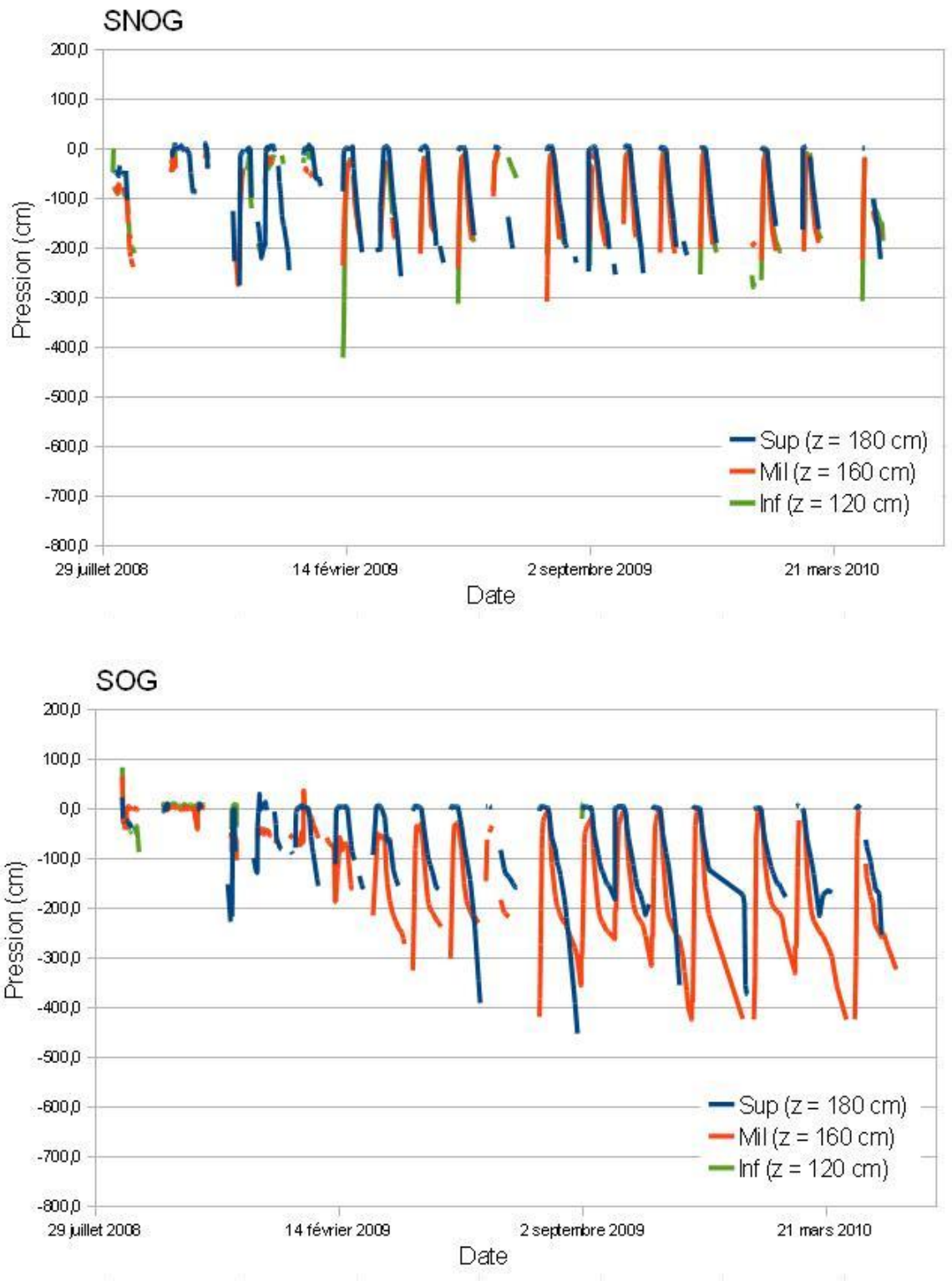


Figure 5.9: Variations des pressions dans les grandes colonnes SNOG et SOG au cours des cycles de mouillage-drainage ; l'élévation z des capteurs est exprimée par rapport à la base de la colonne

De façon générale, on peut noter sur les figures 5.8 et 5.9 que :

- chaque pic correspond au début d'un cycle de mouillage. L'ajout d'eau au sommet des colonnes entraine une augmentation de la pression d'eau qui devient généralement positive ;
- les résultats des mesures de pression sont souvent incomplets. Certains capteurs ont eu tendance à se désaturer. Il a pu aussi arriver que les capteurs soient soumis à des succions supérieures à leur limite (physique) de mesure (5 psi, soit environ 400 kPa). Dès lors, les résultats devenaient constants et égaux à des succions légèrement supérieures à 5 psi ;
- les succions maximales (en valeur absolue) que l'on devrait mesurer dans la colonne seraient de 270 cm pour Sup, 250 cm pour Mil et 210 cm pour Inf si elles étaient dues à la seule position de la sortie d'eau à la base des colonnes (i.e. conditions d'équilibre hydrostatique). On constate toutefois que les succions peuvent atteindre 800 cm. La différence serait liée à l'effet de l'évaporation, qui, dans certains cas, peut s'avérer très importante ;
- les matériaux sont donc soumis à deux causes de succion : la succion liée à la position de la sortie d'eau (effet gravitaire), qui augmente (en valeur absolue) avec l'élévation, et la succion liée à l'effet de l'évaporation (perte d'eau par changement de phase) qui est plus importante au sommet de la colonne. La succion totale résultante est la somme des deux contributions. Elle devrait être plus importante en haut des colonnes. Cela est visible pour MNOG, mais le manque de données ne permet pas de confirmer ceci pour les autres colonnes (ni de quantifier le phénomène) ;
- l'évolution des pressions interstitielles semble présenter trois phases successives pour chaque cycle. Dans un premier temps, juste après le début du cycle, la pression demeure constante quelques jours à une valeur positive (ou proche de 0 cm). Il s'agirait de la période pendant laquelle le front de mouillage passe au niveau le capteur de pression. Puis la pression diminue jusqu'à environ -200 cm en quelques jours. La durée de cette seconde phase correspond à peu près au laps de temps que dure l'écoulement à la base des colonnes. On peut supposer qu'elle est liée à l'écoulement gravitaire selon la position de la sortie. Enfin, la troisième phase correspond à une décroissance continue mais plus lente de la pression. Il n'y a alors plus d'écoulement à la base de la colonne. On peut faire

l'hypothèse que cette baisse de pression est essentiellement liée à l'effet de l'évaporation. Elle correspond bien à l'évolution des teneurs en eau volumiques (voir section 5.2). La nature de ces trois phases pourra être évaluée ultérieurement par l'utilisation des modèles numériques (voir chapitre 7) ;

- les pics mesurés pour les capteurs Sup, Mil et Inf sont légèrement décalés dans le temps en raison du temps que prend le front de mouillage (et de drainage) pour traverser la colonne ;
- une comparaison des graphiques de l'évolution des pressions et des degrés de saturation montre un léger décalage dans le temps pour les pics, avec un retard de la courbe des pressions. Les capteurs de pression présentent un certain temps de latence dans leur réponse (lié à la faible perméabilité des bougies de céramique). Ceci pourrait induire une certaine imprécision dans l'estimation des courbes de rétention d'eau réelles dans les colonnes (voir chapitre 7).

Remarques spécifiques :

- MNOG : les pressions (négatives) mesurées dans la couverture de la colonne MNOG sont de loin les plus faibles des essais en grande colonne ; elles peuvent atteindre -750 cm. Le capteur Mil a donné des résultats au cours des trois premiers cycles, puis a cessé de fonctionner (malgré la resaturation des connexions au début de chaque cycle). Le capteur Inf ne passe guère sous les -100 cm avant que la mesure décroche ;
- MOG : le capteur Sup dans la couverture n'a pas bien fonctionné, mais les résultats Mil et Inf semblent valides. On constate que les succions qui se développent pour ces deux capteurs sont proches l'un de l'autre, bien qu'ils soient espacés de 40 cm. On peut expliquer ceci par des imprécisions de mesure ou par le fait que la succion est réellement uniforme dans la colonne ;
- SNOG et SOG présentent des résultats comparables : les données du capteur Inf ne sont pas exploitables et les capteurs Sup et Mil se désaturent rapidement dès qu'ils atteignent des succions de -200 cm ou -400 cm respectivement.

Ces résultats, bien qu'incomplets, vont néanmoins permettre d'évaluer la courbe de rétention d'eau des matériaux dans les colonnes et aider à interpréter les résultats à l'aide des simulations numériques (voir chapitre 7).

5.4 Concentrations en oxygène

La figure 5.10 synthétise les résultats des mesures de concentrations d'oxygène au cours des cycles de mouillage-drainage sur chaque colonne. L'Oxy-10 de PreSens permet de mesurer la concentration en oxygène (dissout et gazeux) par rapport à la concentration maximale possible dans ces conditions (i.e. environ 8,6 mg/L dans l'eau et 280 mg/L dans l'air). On mesure donc une concentration en oxygène relative, donnée en pourcentage, (sur une échelle de 0 à 100).

Les résultats pour les deux ou trois senseurs installés sur chaque colonne (Sup, Mil et éventuellement Inf) sont présentés dans un même graphique. La position de chaque capteur est précisée au chapitre 3 (section 3.3.3). On note que les mesures ne couvrent pas toute la durée des tests car l'appareil de mesure était disponible uniquement par intermittences, du moins au début du programme d'essais.

De façon générale, on peut noter sur ces graphiques que :

- les mêmes tendances se reproduisent à chaque cycle. D'abord, au moment où l'eau est ajoutée au sommet de la colonne, une surpression (de l'air) se produit dans la colonne, entrainant une augmentation (artificielle) de la concentration d'oxygène mesurée par les capteurs. Puis, la concentration en oxygène diminue car le front de mouillage qui pénètre dans la colonne crée une zone plus saturée qui limite le mouvement de l'oxygène. L'oxygène est consommé par les résidus de sorte que sa concentration diminue. La faible concentration d'oxygène dissout dans l'eau est elle aussi consommée à mesure qu'elle traverse des résidus réactifs, si bien que la concentration en oxygène tend vers 0 à mesure que l'eau rapproche du fond de la colonne. Une fois le front de mouillage passé, les résidus et les matériaux de couverture se désaturent progressivement, entraînant l'augmentation progressive de la concentration d'oxygène dans le milieu. Le pallier atteint après un certain temps représente un équilibre entre l'apport d'oxygène et sa consommation par les résidus réactifs. Les mêmes phases s'enchainent à nouveau aux cycles suivants ;

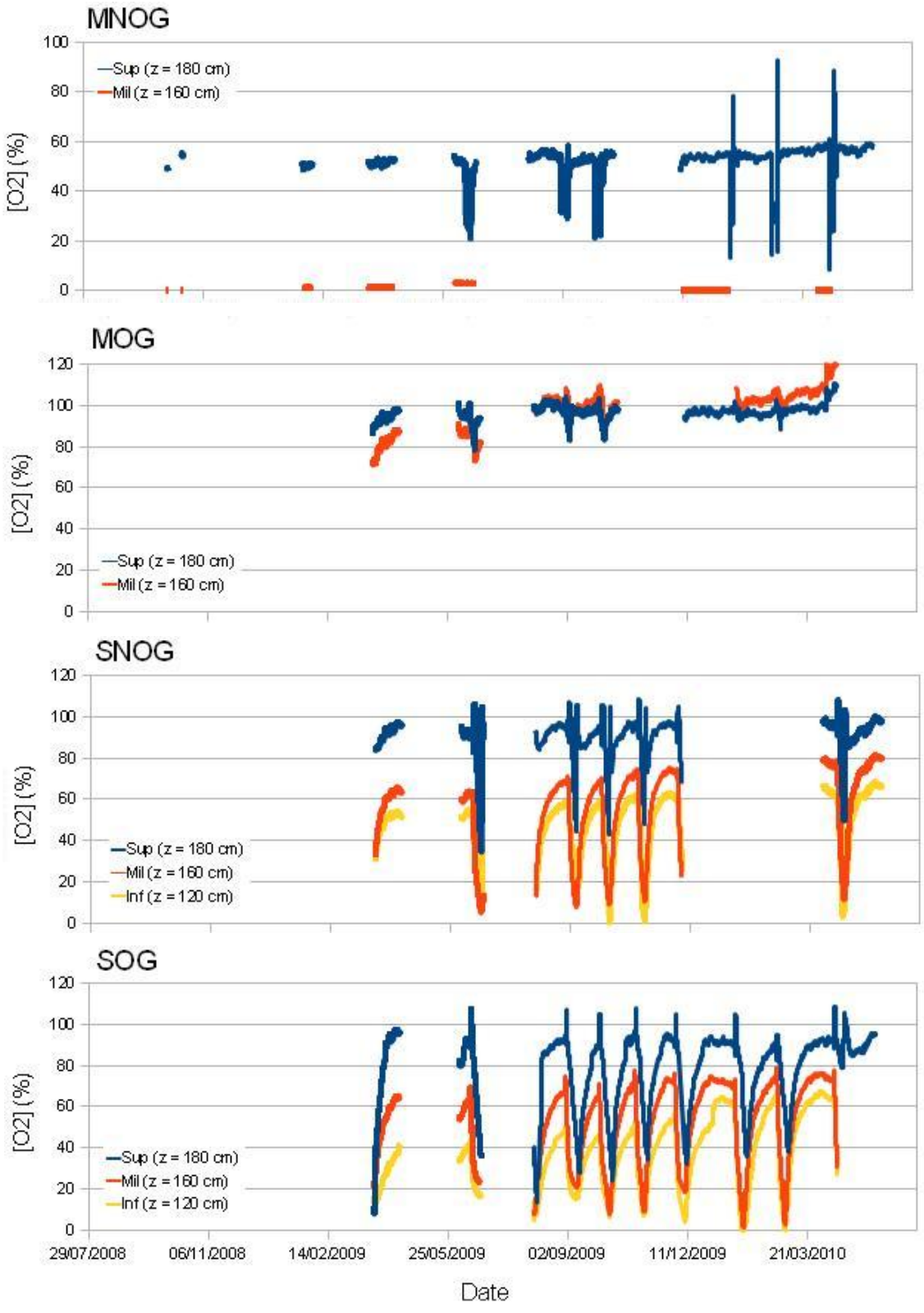


Figure 5.10: Valeurs des concentrations relatives en oxygène mesurées durant les essais en grande colonne ; l'élévation z des capteurs est exprimée par rapport à la base des colonnes

- comme la source d'oxygène se situe au sommet des colonnes, la concentration en oxygène augmente avec l'élévation. A mesure que le front d'oxygène progresse vers le bas de la colonne dans les résidus réactifs, le gaz est consommé par les réactions d'oxydation, et sa concentration diminue. L'évolution des degrés de saturation (plus élevés vers le bas) affecte la migration de l'oxygène. Par conséquent, la valeur de O_2 au capteur Inf est inférieure à celle du capteur Mil, elle-même inférieure à celle du capteur Sup ;
- la vitesse à laquelle la concentration d'oxygène augmente dans la colonne est essentiellement liée à la vitesse à laquelle les résidus et la couverture se désaturent. Par exemple, on constate (voir section 5.2) que les résidus et la couverture de SNOG se désaturent plus rapidement que SOG. Par conséquent, la remontée de la concentration d'oxygène dans SNOG est également plus rapide que dans SOG ;
- le palier de concentration atteint en fin de cycle dépend en grande partie de la réactivité des matériaux. Plus ils sont réactifs, moins la concentration d'oxygène remontera, car il sera consommé plus rapidement par la réaction d'oxydation. Par exemple, si on compare les résultats des capteurs Mil, MOG qui est le moins réactif voit sa concentration d'oxygène remonter à 100%, SNOG et SOG à 70%, et la concentration d'oxygène est pratiquement nulle pour MNOG, dont les résidus sont les plus réactifs.

Remarques spécifiques :

- MNOG : les concentrations d'oxygène dans la couverture de résidus Goldex demeurent autour de 60%. Des variations rapides surviennent au début de chaque cycle (comme décrit plus haut), mais ne durent généralement que quelques jours (les variations des teneurs en eau volumiques sont également relativement rapides, voir plus haut). La concentration mesurée dans les résidus, une dizaine de centimètres sous l'interface reste quant-à elle pratiquement nulle. Ceci s'expliquerait par la forte réactivité des résidus qui consomment la totalité de l'oxygène disponible, ainsi que par le faible apport en oxygène à travers la couverture et les résidus ;
- MOG : les concentrations d'oxygène au-dessus et en dessous de l'interface résidus-couverture demeurent proches de 100%. Ceci s'explique par la faible réactivité des matériaux ;

- SNOG et SOG ont des comportements similaires. Les variations de concentrations d'oxygène au cours de chaque cycle sont très marquées. On constate que la concentration d'oxygène dans le bas de la couverture est élevée (autour de 90%) mais que celle-ci diminue en profondeur dans les résidus : 70% pour le capteur Mil et environ 60% pour le capteur Inf. Le fait que la concentration d'oxygène soit à peu près la même entre ces deux points distants de 40 cm semble indiquer que les résidus sont relativement peu réactifs.

Les flux d'oxygène entrant dans les résidus réactifs permettent d'évaluer l'efficacité d'une méthode de restauration. On rappelle ici que l'objectif des couvertures utilisées dans le cadre de ce projet est de limiter le flux d'oxygène aux résidus pour contrôler les réactions d'oxydation et la formation de drainage minier acide. Les résultats présentés ici ne sont toutefois pas suffisants pour conclure quant à l'efficacité des couvertures (Goldex ou moraine), car le senseur optique mesure la concentration d'oxygène en pourcentage du maximum que le milieu peut contenir. Un milieu saturé et un autre complètement sec, qui seraient tous deux en équilibre avec l'atmosphère, donneraient 100% d'oxygène, mais leur efficacité réelle serait tout à fait différente. Il faut donc lier ces résultats avec les valeurs des degrés de saturation. Les essais en colonne servent avant tout à calibrer les modèles numériques à partir desquelles on pourra étudier les comportements des résidus et des couvertures (et leur efficacité) dans diverses conditions.

5.5 Chimie du lixiviat

Les analyses chimiques effectuées sur les lixiviats récupérés pour chaque colonne sont présentées aux figures 5.11, 5.12, 5.13 et 5.15 (valeurs mesurées en fonction des dates). Pour plus de clarté, la présentation et l'interprétation des résultats sont réalisées individuellement sur chaque colonne, mais elles pourront faire intervenir des considérations et observations provenant des résultats d'autres essais.

Les valeurs des premiers cycles sont fortement liées aux concentrations initiales dans l'eau interstitielle et ne représentent par forcément le résultat des réactions qui ont pu se produire pendant chaque cycle dans les colonnes. Pour bien interpréter ces résultats, il faut mettre l'emphase sur les mesures effectuées après quelques cycles (selon le temps de drainage requis).

On appellera front de drainage la position de la première goutte d'eau ajoutée au cours du premier cycle de mouillage-drainage. On considère que c'est à partir de l'arrivée de ce front que les concentrations mesurées sont représentatives de ce qui se produit dans la colonne.

On s'attachera ici à décrire avant tout les tendances générales observées. Les valeurs ponctuelles surprenantes, qui peuvent parfois s'expliquer par des erreurs de mesure (compte tenu des incertitudes expérimentales) sont habituellement négligées. Un certain effet de mélange est également attendu en raison du mode opératoire (échantillonnages sur deux ou trois jours, voir section 3.3.5).

Les points dans les figures ci-dessous correspondent aux mesures réalisées au début de chaque cycle. Les dates de début de chaque cycle sont rassemblées dans le tableau 3.3. Pour les cycles 1 à 5, on a réalisé une mesure par cycle, quatre mesures pour le cycle 6 et deux mesures pour les cycles suivants. La méthode d'échantillonnage employée et les analyses géochimique réalisées sont détaillées à la section 3.3.5. Pour les références aux analyses minéralogiques, le lecteur pourra se référer au tableau 4.8.

5.5.1 Colonne MNOG

Etat initial : la composition initiale de l'eau interstitielle a été mesurée lors du montage de la colonne, quelques semaines avant le début des essais, afin de la comparer avec les résultats obtenus au premier cycle. On constate sur la figure 5.11 que les résultats sont généralement proches (Ca, Mn, Mg etc.) voire confondus (Ni). D'autres éléments voient par contre leurs concentrations baisser (Cu notamment, mais aussi Al, Cd ou Si) ou au contraire augmenter (Pb). On en déduit que dans la plupart des cas, la colonne saturée (sous environ 10 cm d'eau libre) a permis de limiter les modifications géochimiques du milieu avant le début des essais. Ce n'est cependant pas le cas pour tous les éléments, ce qui n'est pas si surprenant compte tenu de la forte réactivité des matériaux étudiés ici. L'oxygène dissout présent dans l'eau utilisée lors du montage a peut-être permis à une petite fraction de pyrite de s'oxyder, et les réactions d'oxydation indirecte (par Fe^{3+}) n'ont pas été totalement empêchées par la couverture d'eau. Dans tous les cas, le matériau est cependant resté relativement stable.

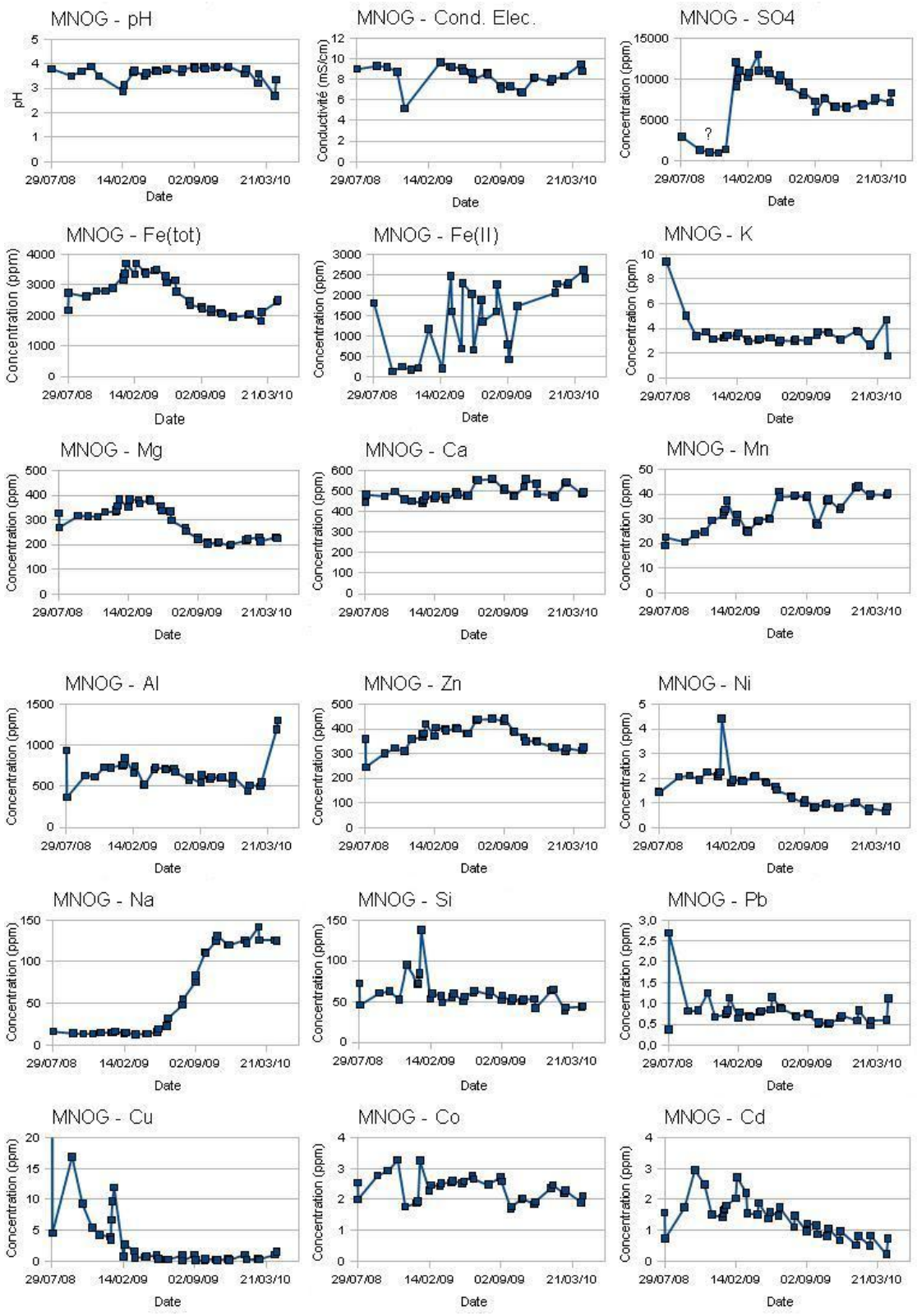


Figure 5.11: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne MNOG à chaque cycle. En général, deux mesures ont été réalisées pour chaque cycle (à partir du cycle 6)

Front de drainage : les essais de traceurs constituent un bon moyen pour déterminer la vitesse d'avancée d'un front de drainage. Malheureusement, ceux réalisés ici (avec le lithium) n'ont pas duré assez longtemps et la contamination initiale était trop forte pour qu'ils soient vraiment exploitables. Le cas de Na est cependant intéressant à cet égard. Il n'est présent que dans un seul minéral détecté ici (l'albite) dont les résidus Goldex s'avèrent être très riches (plus de 47% poids ; on en trouve quelques traces dans MNO également). Dans les résidus Goldex, la dissolution de l'albite est importante en raison des fortes teneurs (selon les conditions géochimiques locales). Lorsque le front de drainage chargé en Na arrive à la base de la colonne, on mesure une augmentation des concentrations. En raison de la dispersion, les concentrations augmentent progressivement jusqu'à atteindre une valeur constante. Ainsi, on observe trois phases dans la variation des concentrations de Na au cours du temps. Dans un premier temps (jusqu'au 9^{e} cycle), les concentrations de Na demeurent relativement faible (moins de 20 ppm). Puis elles augmentent en quelques cycles jusqu'à 120 ppm environ, avant de se stabiliser autour de cette valeur à partir du 14^{e} cycle. En considérant que Na joue le rôle de traceur, on peut en déduire que la goutte d'eau ajoutée au sommet de la colonne met entre 9 et 14 cycles pour traverser la colonne. On peut donc supposer que le lixiviat collecté au bas de la colonne MNOG est représentatif des réactions chimiques survenant dans la colonne après 9 cycles environ.

Rappelons aussi que les 5 premiers cycles de mouillage sur MNOG ont été réalisés en ajoutant au sommet de la colonne de l'eau de procédé Goldex. A partir du 14^{e} cycle, (en considérant le temps de retard mentionné ci-dessus), on n'observe aucune modification notable de la composition du lixiviat. Ceci indiquerait que la qualité de l'eau ajoutée au sommet de la colonne a un effet limité sur ses caractéristiques après avoir traversé les résidus MNO.

Régime pseudo-permanent : le régime pseudo-permanent correspond à une évolution uniforme de la qualité de l'eau, i.e. une concentration constante au cours des cycles, ou une augmentation ou une diminution de concentration à un taux fixe (dérivée constante). On parle d'un régime pseudo-permanent car il correspond à un état qui semble indépendant des concentrations de l'eau interstitielle initiale et qui se répète d'un cycle sur l'autre. Il est maintenu tant que la minéralogie du milieu (qui continue d'évoluer au cours du temps) n'est pas significativement modifiée et que les conditions frontières restent inchangées. On constate dans les essais sur la colonne MNOG des variations plus ou moins importantes au cours des premiers cycles, puis une stabilisation généralisée des comportements. Par exemple, les concentrations de sulfates, de fer, de Mg, ou

encore de Na, après avoir varié de façon importante après l'arrivée du front de drainage (de deux à trois fois leur valeur initiale dans certains cas), se stabilisent à partir du 15^{e} cycle environ. La concentration d'autres éléments, comme Si ou Pb, demeure constante tout au long de l'essai, et les concentrations de Ni ou Cd continuent de décroitre de façon monotone après le 15^{e} cycle. Al est la seule exception à ces observations puisque sa concentration augmente fortement au dernier cycle (voir discussion plus loin). On peut donc estimer qu'un régime pseudo-permanent est atteint après 15 cycles, ce qui signifie que le comportement géochimique des résidus ne devrait plus varier significativement après cette date (jusqu'à ce que l'équilibre géochimique change dans le milieu). Les modélisations géochimiques (chapitre 8) permettent de confirmer ces hypothèses.

Oxydation de la pyrite : l'oxydation des sulfures (ici la pyrite seulement) et la génération de DMA peuvent être suivies de manière indirecte en observant la production de sulfates ou de fer en solution (directement produits par la réaction d'oxydation) ou l'évolution du pH ou des concentrations en métaux lourds (dont la solubilité est fonction du pH).

On constate tout d'abord que le pH varie relativement peu tout au long des cycles de mouillage-drainage et demeure aux alentours de 3,8. On note une baisse du pH à 3,0 au 7^{e} cycle avant un retour à la valeur moyenne. On observe également une tendance à la baisse sur les 3 derniers cycles. Il n'est cependant pas possible de conclure directement quant à une augmentation de la production de DMA (des modélisations à plus long terme permettront éventuellement de confirmer ou non cette tendance ; voir chapitre 8). Bien que l'on sache que le front de drainage arrive au bas de la colonne à peu près au 9^{e} cycle, on ne constate à ce moment là aucune variation notable du pH. Il semblerait donc que la minéralogie de la couverture de résidus Goldex n'ait pas d'effet sur l'acidité du lixiviat. En tout cas, son pouvoir tampon ne suffit pas à augmenter le pH lorsque placé en amont du système.

L'évolution des concentrations en sulfates présentent plusieurs phases au cours de l'essai. Pendant les 5 premiers cycles, les concentrations sont relativement faibles (~2000 ppm) puis elles augmentent à partir du 6^{e} cycle (jusqu'à plus de 12 000 ppm). Cependant, il n'y a pas de variation significative dans la conductivité électrique (malgré une augmentation de concentration de plus de 10 000 ppm de sulfates). On peut supposer que les valeurs des premiers cycles pourraient être erronées (dilution pour mesure, autre opérateur). Les analyses ICP-AES sur le surnageant donnent d'ailleurs des valeurs de concentrations initiales en soufre de plus de 11 000 ppm.

En corrigeant les valeurs de concentrations de sulfates pour les premiers cycles, on peut observer trois phases dans la variation des concentrations en sulfates. Pendant la première, du 1er au 8e cycle, les concentrations en sulfates sont élevées et globalement constantes. Il s'agirait du drainage de l'eau interstitielle initiale, fortement contaminée en raison du temps de résidence dans la colonne avant le début des essais (malgré la couverture en eau, les fortes concentrations en fer présentes dans la solution pourraient indiquer que des réactions d'oxydation indirecte ont pu se produire). La seconde phase, entre le 9e et le 13e cycle, correspond à une phase de transition pendant laquelle le lixiviat est un mélange entre l'eau ajoutée au sommet de la colonne, qui a traversé les résidus, et celle initialement présente (front de drainage diffus). Enfin, la dernière phase débute à partir du 14e cycle et présente une concentration en sulfates constante aux environ de 7000 ppm. On suppose qu'il s'agit d'un régime pseudo-permanent, où le lixiviat récupéré est représentatif de la production de DMA au sein de la colonne.

En calculant le nombre total de moles de sulfates récupérées (en fonction du volume de lixiviat à chaque cycle), on peut estimer indirectement la quantité de pyrite consommée. On ne considère ici que les résultats à partir du cycle 14, car les résultats des cycles précédents semblent fortement liés à l'eau interstitielle initialement présente. Sur les six derniers cycles, on a récupéré en sulfates l'équivalent de 19 g de pyrite, soit, 0,3% de la pyrite totale présente dans la colonne. En extrapolant ces résultats sur l'ensemble des 19 cycles (en considérant que le taux de réaction n'a pas varié au cours du temps), on en déduit que 59 g de pyrite ont été oxydés au cours de l'essai, soit 0,9% de la pyrite présente dans la colonne (le détail des calculs est présenté à l'annexe 5.4). Ce qui, si on suppose que la réaction d'oxydation ne se produit qu'au sommet des résidus réactifs, correspondrait à l'épuisement de la pyrite sur une épaisseur d'environ 1,5 cm.

Le fer peut également être un indicateur de la génération de DMA. Il faut cependant remarquer que les concentrations de Fe(II) sont difficilement interprétables. L'oxydation de ce dernier en Fe(III) est rapide et il suffit d'un retard de quelques heures pour que les concentrations dans l'échantillon diminuent fortement. Malgré les précautions prises, il existait toujours des variations dans le déroulement des mesures expérimentales. On peut par exemple comparer les résultats d'un même cycle sur le premier et le second échantillonnage et constater que les concentrations varient fortement (les écarts peuvent aller du simple au triple).

La mesure des concentrations en fer total est plus utile. On peut y voir trois phases caractéristiques (les mêmes que pour SO_4). Pendant la première, du 1er au 9^{e} cycle environ, les concentrations sont à peu près stables, ou augmentent légèrement autour de 3000 ppm. Puis, après le 10^{e} cycle, les concentrations diminuent de façon monotone. On semble aller vers une stabilisation à la fin de l'essai (à partir du 13^{e} ou 14^{e} cycle). La variation des concentrations en fer est intrinsèquement liée à la variation des concentrations en sulfates, tous deux étant produits par l'oxydation de la pyrite. Les autres sources de fer possibles (chlorite notamment) sont plus stables (voir plus loin). Les premiers cycles correspondraient au drainage de l'eau interstitielle initialement présente dans la colonne. Par la suite, on retrouve les effets de l'oxydation des résidus dans la colonne. La lixiviation du fer est également liée au pH de la solution : un pH relativement élevé peut entrainer la précipitation d'oxy-hydroxydes de fer alors que s'il est plus faible, la majorité du fer demeurera en solution (et sera récupéré dans le lixiviat).

Rappelons qu'une mole de pyrite produit une mole de fer et deux moles de sulfates par la réaction d'oxydation directe. On devrait donc avoir deux fois plus de moles de sulfates dans le lixiviat que de fer. Et effectivement, pour les derniers cycles de l'essai (régime pseudo permanent), on récupère à chaque cycle $5{,}2.10^{-2}$ moles de sulfates pour $2{,}6.10^{-2}$ moles de fer (total), soit le rapport molaire attendu. Cela indique que le pH est suffisamment faible pour limiter la précipitation du fer et que la contribution des silicates ferreux est négligeable comparée à celle de la pyrite (voir également MOG pour confirmation) ; on en déduit que la chlorite et l'actinolite ont des taux de dissolution faibles.

On mesure également du gypse dans les résidus MNO, ce qui signifie qu'une partie des sulfates ont pu précipiter et qu'on n'en récupère pas forcément la totalité dans le lixiviat au bas de la colonne. On en déduit qu'une partie du fer a également pu précipiter (ou alors qu'une fraction de la pyrite n'était pas purement composée de fer ; voir discussion sur les substitutions plus loin). Les 0,21% de gypse mesurés au DRX correspondent à 0,8 mol de sulfates, soit 0,4 mol de fer.

On note aussi que la conductivité électrique du milieu reste à peu près constante tout au long de l'essai, autour de 8 mS/cm, avec des pics à 5 ou 10 mS/cm. Globalement, les valeurs assez constantes du pH et de la conductivité électrique laissent penser que le milieu ne subit pas de changement majeur au cours de l'essai.

Dissolution des silicates : au cours des deux premiers cycles, la concentration de K diminue de façon importante, d'environ 10 ppm à moins de 4 ppm. Par la suite, cette concentration demeure autour de 3,5 ppm. On peut supposer que la première phase correspond au drainage du potassium accumulé dans l'eau interstitielle. On peut néanmoins s'interroger sur la vitesse de ce lessivage qui se produit sur 3 cycles (et non pas 9 avant l'arrivée du front de drainage, comme pour les autres éléments). Par la suite, K continue à se solubiliser, mais à un rythme relativement lent. Le potassium provenant ici exclusivement de la muscovite, on déduit un taux de dissolution autour de 8.10^{-5} mol ou 32 μg par cycle, soit encore de 0,00027% par cycle. On ne constate pas de variations après 9 cycles, malgré la présence de muscovite dans les résidus Goldex. La dissolution de celle-ci aurait donc essentiellement eu lieu dans les résidus MNO et l'arrivée du front de drainage ne modifie pas son taux de dissolution.

La variation des concentrations de Mg est similaire à celle de Fe, à savoir une première phase constante ou en légère augmentation (autour de 350 ppm), puis à partir du 9^{e} cycle une diminution continue des concentrations (jusqu'à 200 ppm) puis un semblant de stabilisation vers la fin de l'essai à partir du 14^{e} cycle. On retrouve du Mg dans la dolomite (Goldex), la chlorite (Goldex et MNO) et l'actinolite (Goldex). Cette évolution pourrait s'expliquer, comme pour les autres éléments, par un drainage de l'eau interstitielle initiale (ou le Mg s'est accumulé) suivi d'un régime permanent avec un rythme de dissolution relativement constant. La légère augmentation à la fin de l'essai pourrait être liée à la diminution de pH. N'observant pas d'augmentation de la concentration de Mg à partir du cycle 9, on peut en déduire que le front de drainage n'en apporte pas ou peu et que la dolomite, la chlorite et l'actinolite présentent dans les résidus Goldex ne se dissolvent à peu près pas (ou peu, malgré le fait qu'il y ait presque autant de chlorite dans Goldex que dans MNO). Le Mg récupéré semble donc provenir de la dissolution de la chlorite dans les résidus MNO. Dans ce cas, on peut estimer son taux de dissolution à environ 0,11% par cycle.

Comme précisé plus tôt, la concentration de Na est faible (15 ppm) au cours des 9 premiers cycles, puis augmente pour atteindre une valeur d'environ 125 ppm après 14 cycles. Na provient essentiellement de la dissolution de l'albite, que l'on retrouve à la fois dans les résidus MNO et Goldex, mais en plus grande quantité dans les matériaux de couverture. Si on suppose que la dissolution de l'albite dans MNO se poursuit au même rythme que pendant les premiers cycles, on peut en déduire que le taux de dissolution dans MNO est d'environ 0,042% par cycle et de 0,015% dans Goldex. La dissolution de l'albite est donc lente et fonction du milieu.

Globalement, la chlorite se dissout plus vite que l'albite, qui se dissout elle même plus rapidement que la muscovite.

Enfin, les concentrations de Si sont stables (autour de 60 ppm) mais restent en deçà de celles des autres éléments provenant de la dissolution des silicates. On peut supposer qu'une fraction de la silice reste dans la colonne, soit que la dissolution des silicates ne se fait pas de façon stœchiométrique (dissolution incongruente ; e.g. Appelo et Postma, 1993; Plante, 2010), soit que la silice subit des retards (adsorption...).

Cas particulier de l'anorthite : tout au long de l'essai, la concentration de Ca se maintient autour de 500 ppm (y compris dès le premier cycle). Le Ca provient principalement de la dissolution des carbonates, mais ceux-ci semblent absents des résidus MNO, et leur présence dans les résidus Goldex n'explique pas les concentrations initiales déjà importantes. Le fait que l'on n'observe pas d'augmentation de la concentration de Ca après l'arrivée du front de drainage (cycle 9) laisse penser que le Ca est essentiellement produit dans les résidus MNO et que la contribution de Goldex est négligeable. La source de Ca devrait donc être l'anorthite présente dans les résidus MNO, qui est un silicate parmi les plus solubles (Klein et Hurlbut, 1999 ; voir également résultats de MNOP). En d'autres termes, l'alcalinité des résidus Goldex n'aurait que peu d'effet sur le pH, l'oxydation des sulfures ou la production de DMA en général.

Pour sa part, la concentration d'Al demeure constante pratiquement tout au long de l'essai (environ 600 ppm). Au dernier cycle, on mesure une augmentation (à plus de 1200 ppm). Deux hypothèses sont avancées pour expliquer ce comportement. L'aluminium peut provenir (en partie) de l'albite, qui est présent en grande quantité dans les résidus Goldex (47%). Or, l'albite contient également du Na, qui, on l'a vu plus haut, voit aussi sa concentration augmenter. Cette augmentation survient cependant plus tôt, sans atteindre la même amplitude (environ 5 fois moins en moles). On note aussi la présence de boehmite dans les résidus au démontage. Une partie de l'aluminium a peut être été retenue dans les résidus sous forme de précipités, s'y est accumulée, puis, la concentration dépassant un certain seuil (ou le pH diminuant suffisamment), s'est vue relarguée dans le lixiviat. L'analyse DRX ne permet pas de détecter les minéraux amorphes comme les oxydes et oxy-hydroxydes, ce qui expliquerait qu'on n'ait pas identifié de précipités d'aluminium dans les résidus (excepté la fraction cristallisée sous forme de boehmite). Ceci pourrait expliquer le retard par rapport à Na et les concentrations plus importantes mesurées, mais

pas les concentrations observées dès le début de l'essai (le front de drainage n'arrive pas avant le 9^{e} cycle). On pourrait corréler ces valeurs élevées à celles du calcium, provenant aussi de la dissolution l'anorthite. Il a été mentionné plus haut que ce minéral avait tendance à se dissoudre facilement dans les conditions de l'essai. Le rapport stœchiométrique dans l'anorthite est de deux moles d'Al pour une mole de Ca, et on retrouve effectivement à peu près ce rapport dans les analyses chimiques réalisées sur le lixiviat.

Eléments orphelins : Mn, Zn, Ni, Pb, Cu, Co et Cd n'ont pas d'origine claire dans la minéralogie obtenue par DRX au démontage des colonnes. Leur présence, et l'augmentation de leur concentration parfois, n'ont pas d'explication directe, et il faut recourir à un certain nombre d'hypothèses. La première est que, peut-être, certains minéraux n'ont pas été détectés au DRX. Ceci est considéré comme peu probable, en raison du nombre élevé d'analyses réalisées. Pour les éléments dont les concentrations initiales sont élevées et qui diminuent ensuite (comme Cu, Ni, Pb ou Cd ici), il est assez probable qu'ils aient été présents dans l'eau interstitielle au moment de l'échantillonnage. En effet, le site Manitou est particulièrement hétérogène, et certains résidus qui pouvaient se trouver au-dessus de ceux prélevés auraient pu avoir une autre minéralogie (la chalcopyrite et la sphalérite sont présentes à certains endroits du site par exemple). L'eau se serait donc chargée de ces éléments et aurait contaminé les zones sous-jacentes.

Cette explication n'est cependant pas valable pour les éléments dont les concentrations augmentent au cours de l'essai (Mn, Zn et peut-être Co). Il aurait été envisageable de considérer des précipités secondaires se dissolvant petit à petit, mais les autres propriétés (notamment le pH) ne varient pas assez pour expliquer que ces éléments se soient soudain retrouvés instables alors qu'ils ne l'étaient pas quelques cycles plus tôt. Considérant les concentrations élevées mesurées, il semble également peu probable que ces éléments proviennent uniquement de la dissolution des silicates présents dans les résidus (on mesure aussi des concentrations élevées dans les colonnes SNOG et SOG, où le pH demeure proche de la neutralité ; voir plus loin). Une autre hypothèse envisageable est celle des substitutions. Mn, Zn et Co (Cu, Ni, Na et Cd également dans une moindre mesure) sont fréquemment présents en substitution des ions Fe^{2+}, Al^{3+}, K^{+} etc. (Appelo et Postma, 1993, Klein et Hurlbut, 1999) sans que ces changements ne soient détectables au DRX. Certains types de pyrite par exemple (Klein et Hurlbut, 1999) ont un pôle Ni ($(Fe,Ni)S_2$, bravoite) qui peut aller jusqu'à 50% molaire de l'un ou l'autre métal. De même pour le zinc (sphalérite) et les autres métaux. La somme de tous ces éléments orphelins compte pour 0,11 mol

sur l'ensemble des cycles, ce qui est dans la limite des 0,4 moles déficitaires en Fe par rapport aux sulfates. Cette hypothèse de substitution semble donc être la plus plausible.

Toutefois, pour Mn, on mesure dans la colonne MOG des concentrations comparables à celles mesurées dans MNOG (autour de 15 ppm), avec une légère augmentation au cours du temps, bien que les résidus MO ne semblent contenir que très peu de pyrite. Il est donc probable que cet élément provienne (du moins en partie) d'un élément présent à la fois dans MNO et dans MO, comme la chlorite ou la muscovite, où Mn^{3+} vient souvent en substitution d'Al^{3+} (Klein et Hurlbut, 1999). Une façon de confirmer cette hypothèse aurait été de distinguer dans l'analyse Mn^{3+} (origine : silicates) et Mn^{2+} (origine : sulfures).

Ces éléments orphelins ne pourront pas être pris en compte directement dans les modèles géochimiques et qu'il faudra développer un modèle de substitution spécifique à chaque type de résidus (voir chapitre 8).

En résumé, la mise en place d'une couverture monocouche de résidus Goldex a permis de limiter quelque peu la génération de DMA. Le pH est plus élevé et les concentrations en sulfates plus faibles que dans la colonne MNOP. La production de DMA demeure toutefois importante. Le pH est acide, la génération de sulfates et de fer est conséquente et le lixiviat est contaminé. La minéralogie de la couverture, et en particulier son pouvoir tampon, ne semble avoir que peu d'effets sur les résidus réactifs sous-jacents.

5.5.2 Colonne MOG

Etat initial : les concentrations initiales et celles mesurées au premier cycle sont semblables. Les différences (une vingtaine de ppm pour Al, moins de 30 ppm pour Si) sont plus faibles que pour MNOG, ce qui est logique considérant que les résidus MO sont moins réactifs et que les tests ont débuté plus rapidement après son montage. On peut donc estimer que la géochimie des matériaux et de l'eau interstitielle n'a que peu varié au cours du montage et de l'entreposage de la colonne.

Front de drainage : les concentrations en Na suivent un schéma similaire à ce qui a été observé dans la colonne MNOG. Initialement autour de 5 ppm pendant les 6 premiers cycles, elles augmentent à près de 25 ppm durant les 6 cycles suivants. Considérant que la seule source de Na est l'albite, qui compose à 47% les résidus Goldex mais est absente des résidus MO, on peut utiliser Na comme traceur dans la colonne.

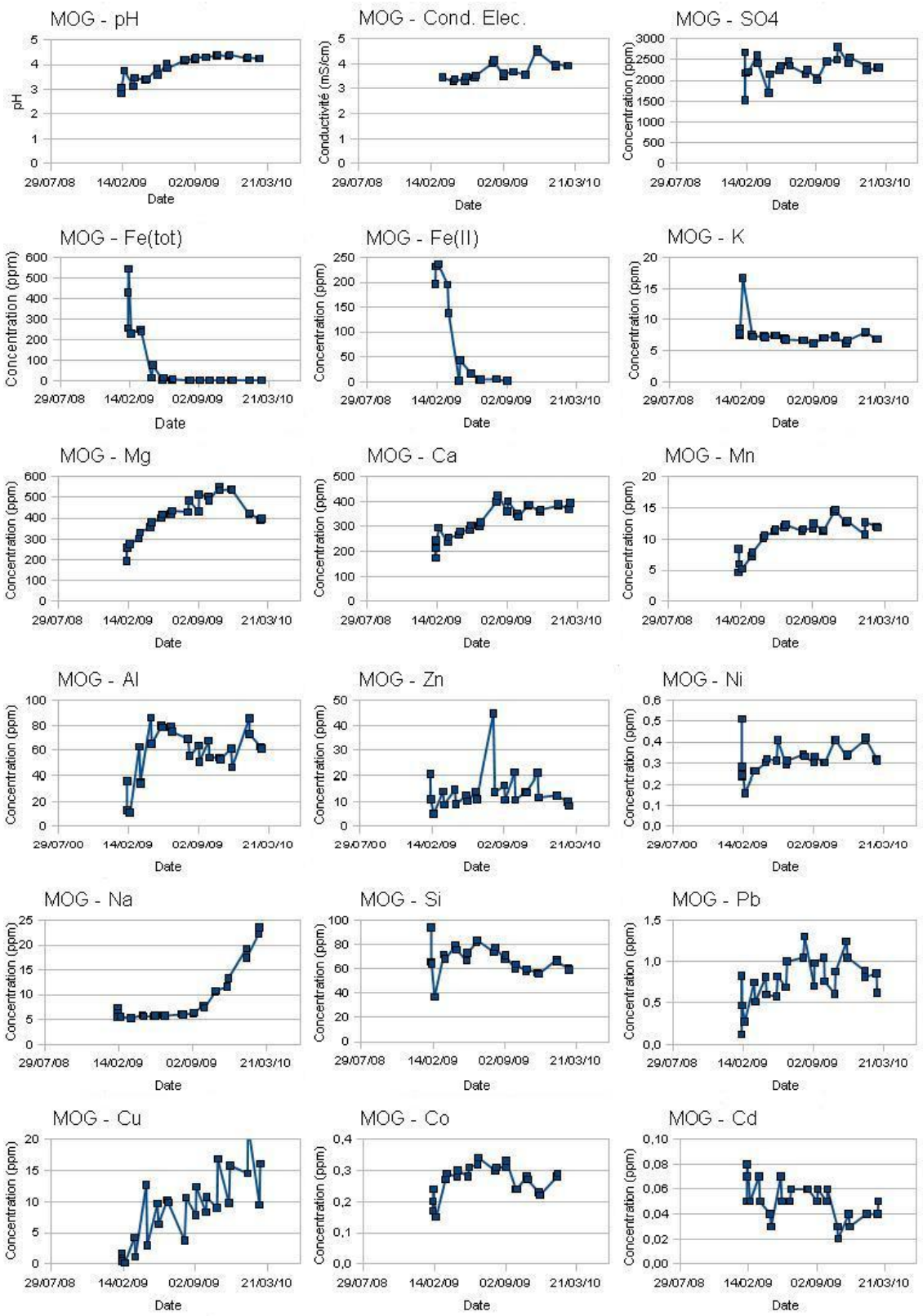


Figure 5.12: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne MOG à chaque cycle. En général, deux échantillonnages ont été réalisés au début de chaque cycle

On en déduit que le front de drainage arrive au bas de la colonne en 6 cycles environ. Ce temps est plus court que pour MNOG, ce qui peut s'expliquer par le k_{sat} plus élevé des résidus MO ($1{,}1.10^{-6}$ m/s contre $5{,}3.10^{-7}$ m/s pour MNO).

Régime pseudo-permanent : il semblerait que le front de diffusion/dispersion s'étale ici sur plus de 6 cycles et que le régime pseudo-permanent ne soit pas encore atteint dans MOG à la fin de l'essai. Les concentrations de la plupart des éléments sont stabilisées, mais certains, notamment Mg ou Al, continuent de varier à la fin des cycles de mouillage-drainage ; Na n'a pas encore atteint un palier. Il convient donc de demeurer prudent dans l'interprétation de ces mesures.

Oxydation de la pyrite : le pH du lixiviat récupéré à la base de la colonne MOG varie en deux temps. Dans une première phase (cycles 1 à 6), il augmente de 3,0 à 4,2. Puis, à partir du cycle 7, il demeure constant autour de cette dernière valeur. Le pH demeure donc relativement bas tout au long de l'essai, et ce malgré les faibles teneurs en pyrite. L'arrivée du front de drainage ne change pas significativement ces résultats et le pH demeure stable malgré le mélange.

Les concentrations en sulfates sont relativement irrégulières (fluctuation de ±500 ppm) mais ne varient globalement pas au cours du temps, avec une valeur moyenne d'environ 2300 ppm. Sur l'ensemble de l'essai, cela représente l'équivalent de l'oxydation de 16 g de pyrite, soit presque autant que dans la colonne MNOG sur la même période. Comme la granulométrie des résidus MO est plus grossière (leur surface spécifique est donc plus faible que celle des résidus MNO), qu'ils contiennent moins de pyrite, et que leur couverture se désature moins, on peut supposer que les concentrations en sulfates mesurées (ainsi que le pH) sont en partie le résultat d'une oxydation passée. Les résidus MO ont été prélevés près de la surface, dans la zone la plus active. Des produits d'oxydation ont probablement précipité sur place (mais les précipités ne sont généralement pas détectables au DRX). Les résultats des mesures sur le fer (voir plus bas) tendent à confirmer cette hypothèse, tout comme les mesures sur les petites colonnes (chapitre 6), où la concentration initiale est aussi de l'ordre de 2500 ppm mais diminue ensuite rapidement (en raison de la faible teneur en pyrite des résidus). On récupère d'avantage de sulfates que de fer en raison de la plus forte mobilité des premiers.

Les concentrations de Fe(II) et Fe(tot) indiquent la même tendance générale : une concentration assez élevée de fer au début de l'essai (500 ppm de Fe(tot) et plus de 200 ppm de Fe(II)) qui décroit pour atteindre des valeurs faibles dès le troisième ou quatrième cycle. Les concentrations

sont à peine détectables par la suite. Le nombre de moles de fer récupéré devrait être la moitié de celles de sulfates, mais ici le rapport molaire des sulfates sur le fer est de plus de 10 000. Le fer pourrait se retrouver sous forme d'oxydes ou d'oxy-hydroxydes dans la colonne, considérant que le pH augmente progressivement au cours de l'essai. Tant que le pH est inférieur à 3,0-4,0 (Appelo et Postma, 1994), la solubilisation du fer est marquée, alors que la forme solide est stable au-dessus de cette valeur. Cela est en accord avec les résultats pour MNOG où le pH ne dépasse pas ces valeurs et où l'on semble récupérer effectivement à peu près tout le fer produit dans la colonne par l'oxydation des sulfures. Enfin, rappelons que l'on ne mesure pas la présence de ces précipités au DRX car ils sont amorphes. Leur présence est cependant très probable en raison de la couleur orangée des résidus (voir aussi discussion à la section 9.2.4).

Enfin, la conductivité électrique est à peu près constante tout au long de l'essai, ce qui laisse penser qu'il n'y a pas eu de changements importants dans la composition du lixiviat dans la colonne au cours des 12 cycles qu'a duré l'essai. Les sulfates contribuent grandement à ces valeurs (ils constituent à eux seuls 42% (en moles) de l'ensemble des éléments mesurés).

Dissolution des silicates : la concentration de K demeure constante tout au long de l'essai (autour de 7 ppm). Le pic au deuxième cycle est difficilement interprétable car aucun autre élément ne présente une telle augmentation (concentration doublée). Le potassium provient essentiellement de la muscovite, dont le taux de dissolution peut être estimé à 0,001% par cycle.

La concentration de Mg présente les mêmes caractéristiques que celles du pH. Dans un premier temps (6 premiers cycles), la concentration augmente de 200 à 500 ppm, puis se stabilise ensuite autour de cette valeur. Cela correspond également à peu près au temps d'arrivée du front de drainage. On peut donc considérer qu'à cette étape, on a atteint un régime pseudo-permanent pour la production de Mg. Le magnésium étant contenu dans la dolomite, absente des résidus MO mais présente en petites quantités dans les résidus Goldex, on peut en déduire que les carbonates se dissolvent peu dans la couverture et n'ont donc pas d'incidence notable sur le comportement des résidus sous-jacents (comme le laisse également penser l'analyse du pH). Par contre, la concentration de Mg est ici un indicateur du taux de dissolution de la chlorite, que l'on peut estimer à 0,09% par cycle dans les résidus MO.

La concentration de Na, on l'a vu plus haut, est faible au début de l'essai ; elle ne provient pas de la dissolution de l’albite dans les résidus MO puisqu'on n'en détecte pas, mais il s'agit plus

probablement de traces de contaminations antérieures. La concentration de Na augmente après l'arrivée du front de drainage. On peut en déduire que le taux de dissolution de l'albite dans les résidus Goldex est d'au moins 0,001% par cycle.

Dans tous les cas, les taux de dissolution de la chlorite et de l'albite sont plus faibles que dans MNOG, ce qui est certainement lié au fait que le pH est ici plus élevé.

Enfin, la concentration de Si demeure relativement stable au cours de l'essai, avec une légère tendance à la baisse (moyenne de 80 ppm avec une variation de 100 à 60 ppm). Une fraction seulement du Si attendu est récupérée (comme dans les essais sur la colonne MNOG, on suppose qu'il s'agit d'un phénomène de dissolution incongruente ; Appelo et Postma, 1993).

Cas de l'anorthite : la concentration de Ca suit les mêmes tendances que Mg. Elle augmente de 200 à 400 ppm au cours des premiers cycles puis se stabilise autour de 400 ppm jusqu'à la fin de l'essai. On peut ainsi confirmer que les minéraux neutralisants de la couverture n'ont pas d'influence sur la neutralisation des eaux acides (les résidus Goldex contiennent 5,4% de calcite ; si elle se dissolvait, on devrait retrouver trace d'une augmentation des concentrations de Ca dans le lixiviat après 7 cycles). Pour sa part, la concentration d'Al augmente d'abord (cycles 1 à 5) de 10 à 70 ppm puis se stabilise à peu près (variations de ±10 ppm) autour de 60 ppm. Les mesures au sein d'un même cycle sont parfois éloignées de 20 ppm. L'aluminium peut provenir de la dissolution de la chlorite, de la muscovite, de l'anorthite et de l'albite. La chlorite et la muscovite sont relativement stables. Al devrait donc provenir essentiellement de la dissolution de l'anorthite, de l'albite, ainsi qu'éventuellement de précipités antérieurs au début des essais. On a déjà observé qu'Al semblait précipiter relativement facilement et qu'il y avait souvent un certain retard dans sa migration. Dans l'albite, Na et Al sont en proportions stœchiométriques, mais, à l'arrivée du front de drainage (à partir du cycle 7), les concentrations en Na augmentent d'avantage que celles d'Al. Cela pourrait signifier que ce dernier est resté sous forme précipitée dans la colonne.

Eléments orphelins : Ni, Zn, Pb, Co et Cd ont des concentrations à peu près stables, plus faibles que pour la colonne MNOG. Mn et Cu ont des concentrations équivalentes ou plus élevées que dans MNOG et montrent une tendance à l'augmentation au cours du temps. Pour ces éléments, le 6^{e} cycle ne semble pas apporter de changement, peut-être parce que le front de drainage ne contient pas ces éléments. Pour tous ces éléments, on peut soupçonner que comme le fer, et les sulfates, ils ne sont pas produits au cours de l'essai mais constituent la trace d'une oxydation

passée. Le fait que certains de ces éléments orphelins suivent assez bien les tendances des produits de dissolution des silicates pourrait laisser penser qu'ils sont également présents (en petite quantité) en substitution dans ces minéraux.

En résumé, la très faible quantité de sulfures dans les résidus MOG se traduit par une oxydation limitée. Au cours des essais, le pH augmente. Les concentrations en sulfates demeurent constantes, mais elles finiraient probablement par baisser après un certain nombre de lessivages. La dissolution des silicates est relativement faible, en raison de l'augmentation du pH. A terme, la situation tend vers une amélioration de la qualité de l'eau. Le comportement de MOG n'est pas très différent de celui de MOP, surtout pour les premiers cycles. L'ajout de la couverture ne semble pas modifier significativement son comportement, si ce n'est l'augmentation de la concentration de Na. Ces résultats seront comparés aux résultats des simulations au chapitre 8.

5.5.3 Colonne SNOG

Etat initial : comme pour les autres colonnes, il ne semble pas y avoir de différences notables entre les concentrations mesurées lors du montage de la colonne et celles du lixiviat récupéré au premier cycle. On peut donc supposer qu'aucune modification géochimique particulière n'a affecté les résidus dans la colonne avant le début des essais.

Front de drainage : aucun élément n'a été identifié comme traceur, de telle sorte qu'il est plus difficile d'estimer l'arrivée du front de drainage au bas de la colonne. Toutefois, on peut se référer à l'augmentation des concentrations en sulfates, qui est liée à l'oxydation des résidus se produisant avant tout à l'interface avec la couverture, là où ils se désaturent le plus rapidement. On constate que les concentrations de SO_4 sont stables au cours des premiers cycles puis augmentent rapidement à partir du 5^e cycle environ. Les concentrations se stabilisent ensuite à partir du 9^e cycle. On peut donc supposer que le front de drainage met entre 5 et 9 cycles pour traverser la colonne. Ce temps est plus court que dans la colonne MNOG, ce qui peut s'expliquer par les différences de conductivités hydrauliques ou de teneur en eau dans la colonne. On constate en effet que bien que les valeurs de k_{sat} des deux matériaux soient relativement proches, l'AEV de MNO est plus faible, ce qui entraine une désaturation plus rapide et donc une baisse de k_{unsat} en conséquence.

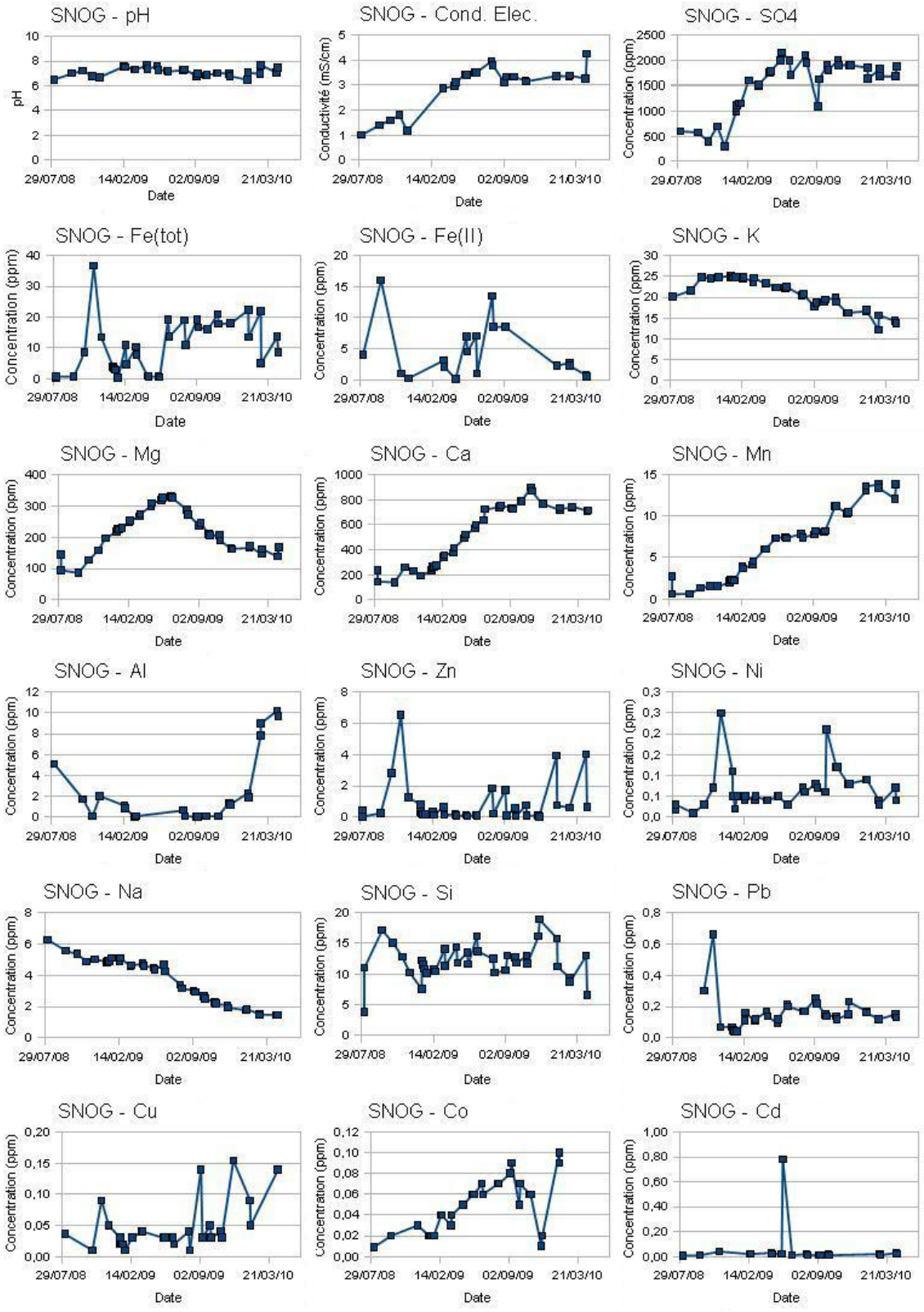


Figure 5.13: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne SNOG à chaque cycle. En général, deux échantillonnages ont été réalisés au début de chaque cycle

Régime pseudo-permanent : excepté Al, tous les autres éléments semblent avoir atteint un régime pseudo-permanent à la fin de l'essai. Les concentrations de K, Mg, Na et Mn diminuent ou augmentent de façon continue, celles de Ca, Pb, SO_4 ou Fe sont à peu près stables. On peut donc estimer que le régime pseudo-permanent est atteint après environ 15 cycles.

Oxydation de la pyrite : le pH du lixiviat de la colonne SNOG est relativement stable autour de 7,0. L'arrivée du front de drainage ne semble pas influer sur sa valeur.

Pendant les 7 ou 8 premiers cycles, la concentration de sulfates passe de 500 ppm à plus de 1500 ppm. Puis, à partir du 9^{e} cycle elle se stabilise autour de 2000 ppm. La première phase correspond à un régime transitoire et de mélange avec l'eau interstitielle initialement présente dans la colonne. Le pH élevé n'a pas permis une oxydation importante des sulfures par réaction indirecte, et le degré de saturation a limité l'apport d'oxygène, ralentissant d'autant les réactions d'oxydation directes. A partir du cycle 9-10, on récupère un lixiviat qui représente d'avantage le comportement des résidus dans la colonne, avec une oxydation, liée à la désaturation de la couverture. Cette dernière ne semble pas empêcher l'oxydation et la génération de DMA. On peut estimer à plus de 2,2% la masse de pyrite oxydée au cours de l'essai (en supposant que l'on récupère tous les sulfates produits). Les concentrations de sulfates correspondent à peu près à celles mesurées dans la colonne SNOP.

Comme pour les autres colonnes, l'interprétation des résultats de Fe(II) est difficile. La concentration en Fe(tot) ne semble pas suivre une tendance claire. Les valeurs sont dispersées, variant de 0 ppm à 40 ppm. On peut néanmoins définir ce qui ressemble à deux phases. Du cycle 1 à 9, les concentrations en fer sont faibles, autour de 1 ou 2 ppm, avec des valeurs ponctuelles (un cycle seulement) plus élevées. Puis, par la suite, les concentrations semblent se stabiliser autour de 20 ppm. Comme pour les sulfates, on peut estimer que les concentrations de Fe au cours des premiers cycles reflètent l'état initial de l'eau interstitielle. Peu d'oxydation a eu lieu et les concentrations en fer sont donc faibles. On remarque qu'on est loin du rapport 2 moles de sulfates pour 1 mole de fer propre aux réactions d'oxydation directe. Le pH élevé laisse penser que le fer a précipité sous forme d'oxydes et d'oxy-hydroxydes. Les conditions variant peu au cours de l'essai (voir pH), le fer précipité ne se resolubilise pas en grande quantité. La présence des pics de concentration laisse néanmoins penser que quelques relargages ont pu avoir lieu. La seconde phase correspondrait à l'arrivée du front de drainage. Les concentrations en fer

correspondent à ce qui se passe dans la colonne en conditions réelles (désaturation du haut de la colonne). Le fait que les concentrations de fer soient plus élevées s'explique par le fait que l'oxydation est également plus intense (comme l'a montré l'augmentation des concentrations en sulfates). On demeure loin du rapport 2:1, indiquant que le fer continue de précipiter en grandes quantités dans la colonne (voir aussi discussion à la section 8.2.5).

La conductivité électrique varie en deux phases (qui suivent les tendances des sulfates). Dans un premier temps, pendant les cycles 1 à 7, elle augmente de façon assez rapide, passant de 1 à 3 mS/cm. Puis, à partir du cycle 8 environ, elle se stabilise entre 3 et 4 mS/cm. Cette tendance peut être corrélée avec l'augmentation (puis la stabilisation) des concentrations en sulfates, Ca, Mn (et en partie Mg et Al).

Présence de carbonates : la variation de concentration en Mg présente deux phases distinctes. La première se caractérise par une augmentation des concentrations de 100 à plus de 300 ppm entre le 1er et le 10^{e} cycle. La seconde est une décroissance des concentrations dans le même intervalle de valeurs entre les cycles 10 et 19. Les concentrations de Ca suivent les mêmes tendances que celles de la conductivité et des sulfates. D'abord une augmentation (de 200 à 800 ppm) au cours des 8 premiers cycles, puis une stabilisation (autour de cette dernière valeur). On soupçonne, au vu de ces résultats et du pH qui demeure proche de la neutralité, que les résidus SNO contiennent une certaine fraction de carbonates non mesurés au DRX. Les résultats des analyses LECO (section 4.1.6.1) indiquent d'ailleurs la présence d'un certain pouvoir neutralisant. On présente à la figure 5.14 la comparaison des concentrations (en mol/L) en sulfates et en magnésium et calcium mesurées dans le lixiviat récupéré à la base de la colonne SNOG. Cette méthode d'interprétation des essais cinétiques (proposée par Benzaazoua et al., 2004) permet de comparer les produits des réactions d'oxydation et de neutralisation. On constate que les points s'alignent autour de la droite 1:1. Or, on sait (sections 2.1.2 et 2.1.5) qu'une mole de pyrite produit deux moles d'acide sulfurique (oxydation directe), elles mêmes neutralisées par deux moles de calcite ou une mole de dolomite. Que l'on retrouve dans le lixiviat la même quantité de Ca et Mg que de sulfates indiquerait donc que des carbonates (probablement de la dolomite considérant les quantités de Mg libérées) se dissolvent à mesure que de l'acide est produit par l'oxydation de la pyrite.

On constate également à la figure 5.14 que les points correspondant aux cycles 14 et ultérieurs sont plutôt situés sous la droite 1:1 alors que les couples des cycles précédents sont plutôt situés au-dessus de la droite. Cela pourrait laisser penser que le pouvoir neutralisant des résidus SNOG ralentit après un certain temps (précipitations secondaires et enrobages des grains de carbonates, dissolution des grains les plus petits et les plus réactifs ; Benzaazoua et al., 2004).

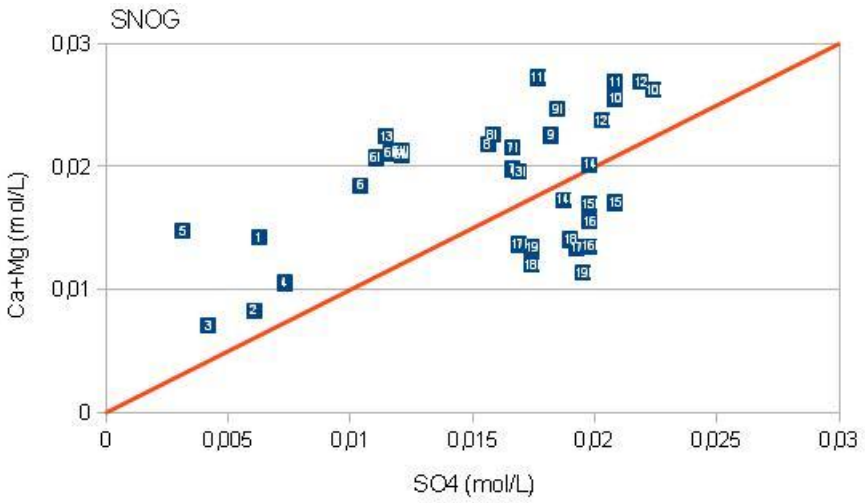


Figure 5.14: Diagramme [SO_4] vs [Ca]+[Mg] dans le lixiviat récupéré à la base de la grande colonne SNOG (les numéros indiqués correspondent aux cycles auxquels les mesures ont été réalisées)

Dissolution des silicates : les concentrations de K, après une légère augmentation (autour de 25 ppm) les trois premiers cycles, diminuent progressivement à partir du 4^{e} cycle (jusqu'à 15 ppm). Les concentrations en K sont beaucoup plus élevées que dans les autres colonnes, malgré une teneur en muscovite plus faible et un pH plus élevé. On en déduit donc que la dissolution des silicates est (ici) peu influencée par le pH. La décroissance constante de la concentration de K dans le lixiviat suggère qu'il y a eu accumulation avant le début des essais et que celui-ci est relargué durant les cycles de mouillage-drainage. Le taux de dissolution pseudo-permanent ne semble cependant pas complètement atteint à la fin des cycles de mouillage-drainage.

La concentration en Al est relativement stable (avec une légère tendance à la baisse) jusqu'à l'avant dernier cycle. Puis, au cycle 18 la concentration multipliée de près de 5 fois. La concentration au dernier cycle confirme cette augmentation. Ceci pourrait s'expliquer par la dissolution de l'anorthite dans la couverture de moraine. L'aluminium ayant tendance à précipiter facilement (surtout à pH élevé), il n'est observé dans le lixiviat qu'avec un certain temps de retard et à des concentrations plus faibles que prévues. La dissolution de l'actinolite (voir discussion pour Mg) pourrait également contribuer à l'apport d'Al. On note néanmoins que les concentrations demeurent globalement faibles, en particulier en comparaison des autres colonnes. La libération d'Al est donc faible et pourrait continuer d'augmenter au cours des cycles suivants. Le pH élevé pourrait expliquer la concentration plus faible que dans les colonnes MNOG ou MOG par exemple.

La concentration de Na diminue lentement, de façon continue tout au long de l'essai, commençant à 6 ppm et terminant à moins de 2 ppm. Il semble logique que la concentration de Na diminue au courant des premiers cycles étant donné que SNO est presque dépourvu d'albite. Il est cependant étonnant de constater que la baisse ralentit après l'arrivée du front de drainage, dans la mesure où la moraine contient une importante quantité d'albite (28,5%) et qu'il a été observé pour MNOG et MOG que celle-ci se dissolvait relativement rapidement. Le pH plus élevé pourrait expliquer que le taux de dissolution y soit plus faible que dans les autres essais.

La concentration de Si est relativement constante (autour de 12 ppm) mais assez variable (±5 ppm) d'un cycle sur l'autre. Les concentrations demeurent assez faibles, ce qui tend à corroborer ce que l'on pu observer dans les autres colonnes (dissolution incongruente).

Eléments orphelins : la plupart des éléments traces, comme Zn, Ni, Pb et Cd, sont présents à des concentrations très faibles (<1 ppm) et leurs concentrations sont relativement constantes au cours de l'essai. Les concentrations de Cu et Co montrent une légère augmentation mais demeurent à l'état de traces (<0,2 ppm). La concentration en Mn est plus importante et augmente de façon continue de 1 à près de 15 ppm tout au long des 19 cycles de mouillage-drainage. Ces faibles concentrations s'expliqueraient par la substitution de ces éléments au fer ou à d'autres métaux dans la pyrite et les silicates. Quant à Mn, sa présence pourrait s'expliquer par sa substitution (fréquente selon Klein et Hurlbut, 1999) dans les minéraux d'épidote dont SNO contient quelques traces (1,7% environ) ou dans ceux de muscovite (10,9%).

En résumé, malgré une certaine oxydation des minéraux sulfureux présents dans les résidus SNO, l'eau interstitielle demeure à un pH proche de la neutralité. Certains indices laissent penser que de la dolomite pourrait être présente dans les résidus et tamponner l'acidité. Les concentrations en fer demeurent faibles dans le lixiviat ce qui laisse supposer que d'importantes quantités d'oxydes ou d'oxy-hydroxydes de fer précipitent dans la colonne. On reviendra sur ces aspects au chapitre 8.

5.5.3.1 Colonne SOG

Etat initial : il y a peu de variations entre les concentrations mesurées au montage de la colonne et lors du premier cycle. Ceci confirme, encore une fois, que les méthodes de montage et d'entreposage ont permis d'éviter la modification des conditions géochimiques au sein des résidus.

Front de drainage : comme pour SNOG, on ne dispose pas ici d'un élément traceur clairement identifié. Les concentrations présentent moins de variations que dans le cas précédent. En se basant à nouveau sur les concentrations en sulfates (liées aux phénomènes d'oxydation qui devraient eux-mêmes se produire d'abord au sommet de la colonne), on peut supposer que le front de drainage arrive au bas de la colonne après 6 cycles (ou plus). Les variations des concentrations en Na semblent également indiquer que celui-ci ne met pas plus de 8 cycles pour traverser toute l'épaisseur de la colonne.

Régime pseudo-permanent : à la fin de l'essai, toutes les concentrations suivent une tendance claire (à part Al). Un régime pseudo-permanent serait atteint à partir du cycle 14 environ (voire même plus tôt).

Oxydation de la pyrite : le pH du lixiviat de la colonne SOG est à peu près constant (autour de la neutralité) tout au long de l'essai. Les concentrations en sulfates sont relativement faibles entre les cycles 2 à 5 (autour de 600 ppm) puis augmentent et se maintiennent entre 1500 et 2000 ppm par la suite. Les concentrations de sulfates au cours des premiers cycles sont relativement faibles ce qui laisse penser que l'oxydation précédant l'échantillonnage était limitée. Après le 6^{e} cycle, les concentrations représenteraient ce qui se passe dans la colonne au cours de l'essai. On peut constater que l'oxydation y est relativement importante et que la présence de la couverture de moraine ne semble pas efficace pour limiter la génération d'acide.

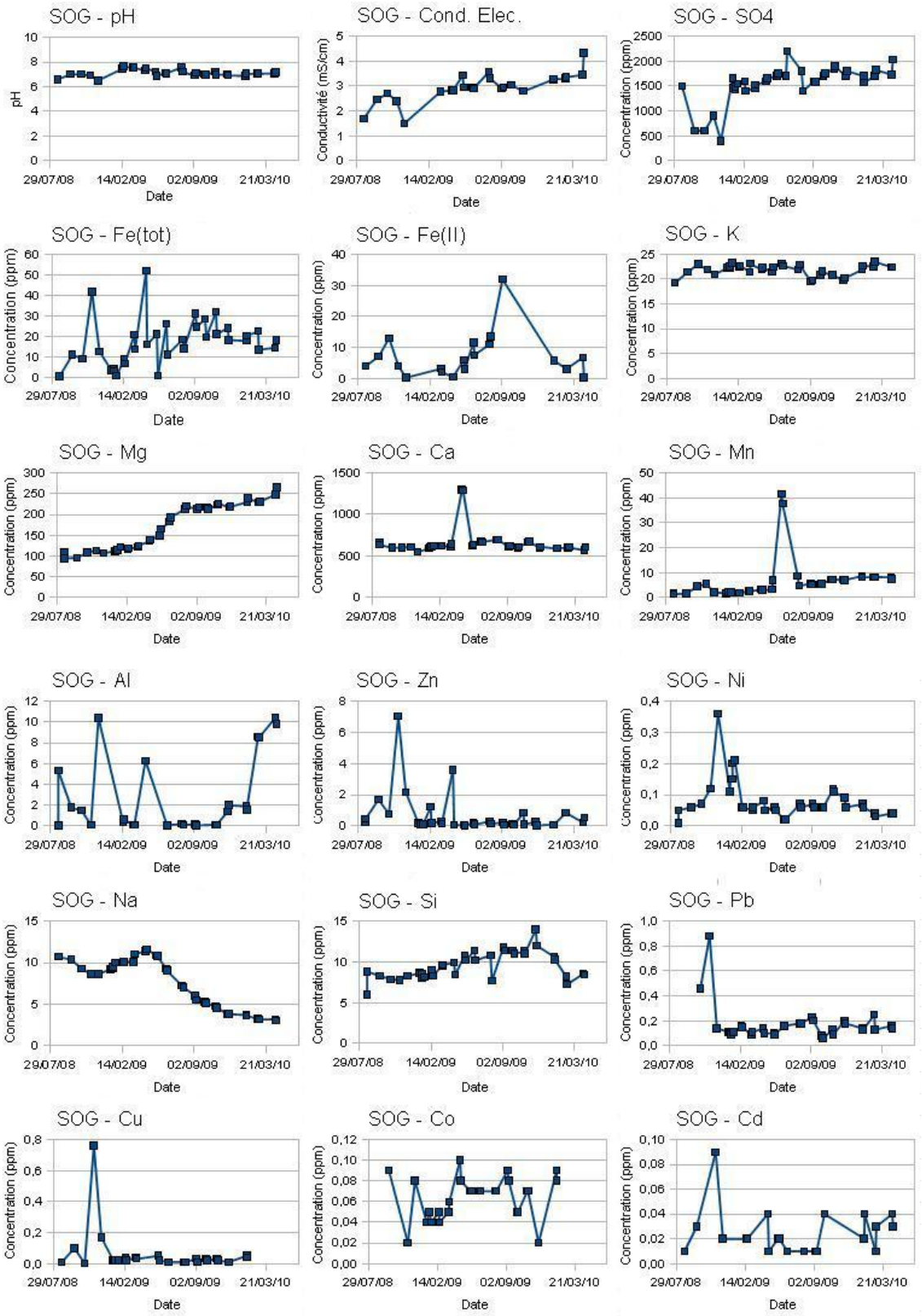


Figure 5.15: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne SOG à chaque cycle. En général, deux échantillonnages ont été réalisés au début de chaque cycle

On peut estimer l'oxydation de la pyrite à 0,9% de la quantité totale contenue dans les résidus SO sur l'ensemble des 19 cycles (soit 19 g environ).

Les concentrations de Fe(II) ne sont pas directement exploitables (en raison de l'oxydation rapide en Fe(III)). Il semble cependant y avoir une augmentation importante au cycle 12, mais celle-ci ne se retrouve pas dans les résultats de Fe(tot) ce qui laisse penser qu'il s'agit d'un artefact de mesure. Les concentrations en fer total quant à elles ne montrent pas de tendance claire. Elles sont faibles, très inférieures aux concentrations de sulfates et relativement variables d'un cycle sur l'autre avec une moyenne semblant augmenter de 10 à 20 ppm, et avec des pics à plus de 50 ppm de façon ponctuelle. Les valeurs moyennes mesurées après le 6^{e} cycle semblent plus élevées que lors des cycles précédents, peut-être en lien avec l'oxydation en surface telle que remarquée dans les analyses de sulfates. Néanmoins, il est clair que l'on récupère beaucoup moins de fer que de sulfates, en raison des pH élevés, qui favoriseraient les précipitations au sein de la colonne.

La conductivité électrique varie de façon assez continue, augmentant de 1,5 à plus de 4 mS/cm, tout au long des 19 cycles de mouillage-drainage. Comme pour les autres essais, les concentrations en sulfates contribuent pour plus de 40% des éléments solubles mesurées (en moles).

Présence de carbonate : la concentration de Mg augmente de façon monotone tout au long de l'essai, avec une valeur initiale aux alentours de 100 ppm et une concentration finale de plus de 250 ppm. La concentration en Ca est relativement stable autour de 600 ppm. Un pic ponctuel à plus de 1300 ppm est visible au 9^{e} cycle, mais rien ne corrobore vraiment ce résultat dans les autres mesures. L'arrivée du front de drainage ne modifie pas ces tendances ce qui laisse penser que le Ca et le Mg récupérés proviennent essentiellement des résidus SO eux-mêmes. Comme pour les résidus SNO, on soupçonne la présence de la dolomite (non détectée au DRX) dans les résidus SO, ce qui pourrait être corroboré par les résultats des mesures à la fournaise LECO (section 4.1.6.1). Le diagramme présenté à la figure 5.16 compare les concentrations (en mol/L) en sulfates et en magnésium et calcium mesurées dans le lixiviat récupéré à la base de la colonne SOG. Comme pour la colonne SNOG, les points s'alignent autour de la droite 1:1, ce qui semblerait montrer que des carbonates (probablement de la dolomite) se dissolvent à mesure que de l'acide est produit par l'oxydation de la pyrite.

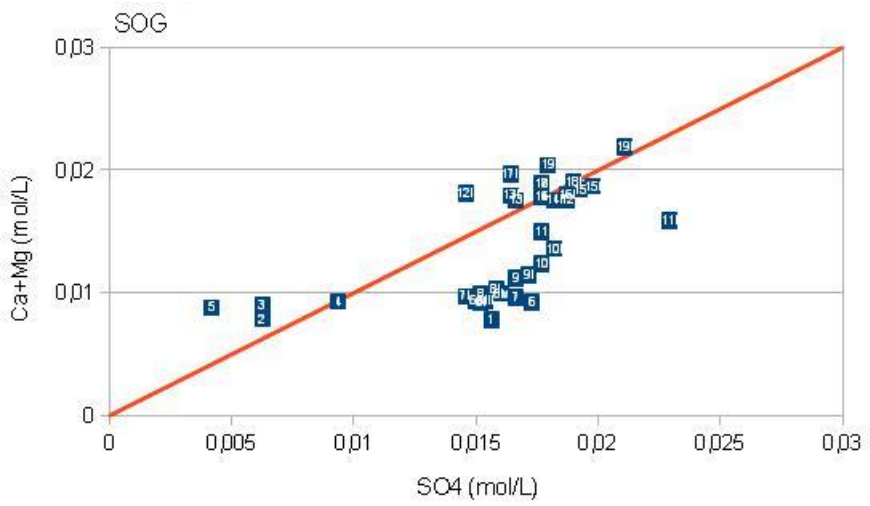


Figure 5.16: Diagramme [SO_4] vs [Ca]+[Mg] dans le lixiviat récupéré à la base de la grande colonne SOG (les numéros indiqués correspondent aux cycles auxquels les mesures ont été réalisées)

Dissolution des silicates : la concentration de K varie légèrement autour de 22 ppm. L'arrivée du front de drainage ne semble avoir aucune influence sur ces concentrations. On peut supposer que K provient essentiellement de la dissolution de la muscovite dans SO (14,8%). Le taux de dissolution de cette dernière serait d'environ 0,003% par cycle, soit au total environ 4,3 g sur la durée de l'essai. Les concentrations de K sont à peu près les mêmes que celles mesurées dans le lixiviat de la petite colonne de résidus SOP. Dans cette dernière toutefois, les concentrations baissent après quelques cycles, peut être en raison d'un épuisement de la muscovite. Il est possible qu'on tende vers des résultats similaires à long terme pour la grande colonne SOG.

La concentration d'Al fluctue au cours du temps. En moyenne, elle demeure relativement faible (moins de 1 ppm) mais des pics à plus de 10 ppm surviennent aux cycles 6 et 9. Cette concentration augmente à partir du cycle 17, passant de 2 à 10 ppm en moins de 3 cycles. Les concentrations en Al attendues sont plus importantes, considérant que l'aluminium provient, comme Ca, de la dissolution de l'anorthite et de l'épidote (notamment). On peut supposer qu'en raison des pH élevés, la majeure partie d'Al précipite au sein de la colonne. L'augmentation rapide des concentrations en fin d'essai pourraient correspondre à un relargage (partiel) de celui-ci en solution.

La concentration en Na suit deux phases. La première, entre les cycles 1 et 9, correspond à une concentration constante autour de 10 ppm. Puis, à partir du cycle 10, la concentration en Na décroit jusqu'à 3 ppm environ. Na pourrait provenir de la dissolution de l'albite, présente dans la couverture de moraine. Mais c'est au moment où le front de drainage arrive au bas de la colonne que les concentrations commencent à diminuer. On peut en déduire qu'il n'y aurait pas de dissolution significative de l'albite dans la couverture (contrairement à la couverture Goldex par exemple). Les concentrations de Na mesurées seraient donc liées à la dissolution des faibles quantités d'albite que l'on trouve dans les résidus SO (1,8% environ) qui tendent à s'épuiser.

La concentration en Si montre une légère tendance à l'augmentation entre 8 et 12 ppm. Comme pour les autres essais, ces concentrations sont faibles par rapport aux autres éléments provenant de la dissolution des silicates (dissolution incongruente ; Appelo et Postma, 1993).

Eléments orphelins : les concentrations en Zn, Ni, Pb, Cu, Co et Cd sont très faibles (<1 ppm, et même < 0,1 ppm pour la plupart). On ne décèle pas de véritables tendances dans ces concentrations. Quelques pics sont parfois visibles (augmentation ponctuelle jusqu'à 10 fois la valeur de base). On suppose que ces éléments proviennent essentiellement de substitutions dans la pyrite et les silicates. A nouveau, Mn montre une tendance un peu différente. Les concentrations en Mn augmentent régulièrement entre 1 et 10 ppm tout au long de l'essai. Elles demeurent néanmoins plus faibles que celles obtenues dans l'essai en petite colonne (qui présentaient également des pics de concentration ponctuels) et ne semblent pas affectées par l'arrivée du front de drainage. On peut supposer que Mn est présent en tant qu'élément de substitution dans des silicates (comme l'épidote ou la chlorite).

En résumé, malgré une différence de 2% dans les quantités de pyrite, les comportements entre les colonnes SNOG et SOG sont très semblables. La pyrite s'oxyde au cours des cycles de mouillage-drainage, mais les eaux acides produites sont neutralisées, peut-être par de la dolomite dont on soupçonne la présence (même si elle n'a pas été mesurée au DRX). La dissolution des silicates reste faible et les concentrations globales des différents éléments et métaux le sont également.

CHAPITRE 6 COMPLÉMENT DE CARACTÉRISATION ET RÉSULTATS DES ESSAIS EN PETITE COLONNE

Les essais en petites colonnes ont été employés dans ce projet principalement dans le but de déterminer l'évolution géochimique des résidus sans couverture. On peut considérer qu'il s'agit du pire cas (ou un blanc) qui sera utilisé pour la comparaison des performances des couvertures. Les caractéristiques des matériaux ont été présentées au chapitre 4, et le montage des colonnes a été présenté au chapitre 3. Le principal point de ces essais est le suivi de la qualité des eaux de drainage, et on présentera ici ces résultats en détail. D'autres caractéristiques ont également été mesurées au cours des cycles de mouillage-drainage, comme les teneurs en eau ou les succions, principalement pour permettre de relier ces résultats aux essais en grande colonne et pour permettre une meilleure calibration des modèles numériques.

6.1 Caractéristiques hydro-géotechniques et climatiques

6.1.1 Indices des vides et porosités

Les indices des vides ont été évalués au montage et au démontage des petites colonnes (tableau 6.1). Il n'a pas été possible de réaliser de mesures directes (ponctuelles) par anneaux volumétriques (section 3.2.3) en raison de la très forte induration des résidus et leur tendance à se fracturer. On observe au tableau 6.1 que les valeurs des indices des vides ne semblent pas varier entre le début et la fin de l'essai. Les indices des vides dans les petites colonnes sont usuellement plus grands que ceux dans les grandes colonnes (voir tableau 5.1.), car la méthode de mise en place (sans bras de levier) a produit des résidus plus lâches dans le cas des petites colonnes.

Tableau 6.1: Indices des vides évalués au montage et au démontage des petites colonnes

Colonne	Montage	Démontage
MNOP	0,85	0,80
MOP	0,75	0,77
SNOP	0,57	0,56
SOP	0,66	0,65

6.1.2 Conductivité hydraulique

Connaissant les indices des vides des résidus dans les petites colonnes, il est possible d'estimer leur conductivité hydraulique. Comme établi à la section 4.4, le modèle KC (équation 2.55) semble mieux adapté pour estimer la valeur de la conductivité hydraulique des résidus MNO, SNO et SO, alors que les résidus MO semble mieux représentés par le modèle KCM (équation 2.56).

On présente dans la figure 6.1 les conductivités hydrauliques des résidus dans les colonnes, estimées selon leur indice des vides et le modèle le mieux adapté. On y a également indiqué les valeurs moyennes de k_{sat} des grandes colonnes et celles mesurées lors des essais de perméabilité (parois rigides et parois souples) à titre de comparaison.

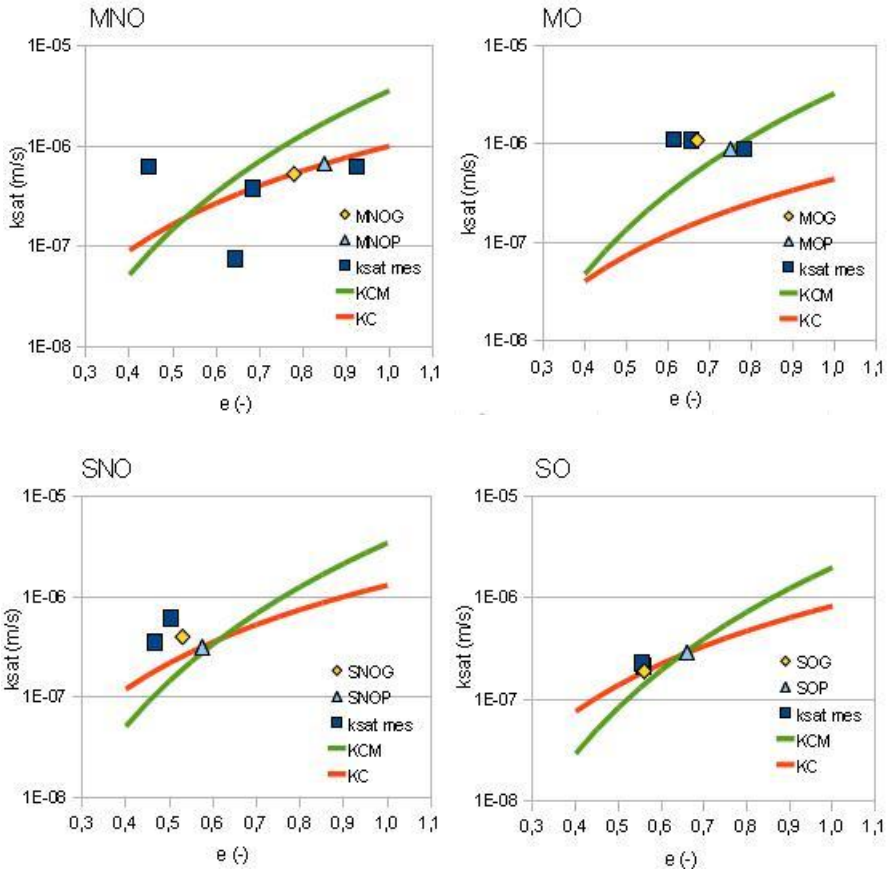


Figure 6.1: Comparaison des conductivités hydrauliques saturées des résidus prédites dans les petites colonnes (triangles bleus) avec les valeurs évaluées pour les grandes colonnes (losanges jaunes) et les valeurs mesurées au perméamètre (carrés bleus) ; les valeurs déduites des modèles prédictifs KC et KCM (respectivement les lignes rouge et verte) sont aussi montrées

Comme on peut le constater, les conductivités hydrauliques saturées des résidus estimées selon les modèles prédictifs dans les petites et les grandes colonnes sont proches les unes des autres (moins d'un demi ordre de grandeur de différence) car les indices des vides ne sont pas si différents. Pour faciliter la construction des modèles, pour rendre plus représentative leur comparaison, et parce que l'on dispose d'assez peu de données sur les propriétés hydrogéologiques des matériaux dans les petites colonnes, on emploiera pour ces dernières la même valeur de k_{sat} que celle déterminée pour les grandes colonnes dans les simulations (voir chapitres 8 et 9 pour plus de détails à ce sujet).

Le tableau 6.2 présente ces résultats (voir aussi tableau 5.2). Pour MNO et SO, ces valeurs sous-estiment légèrement la conductivité hydraulique montrée à la figure 6.1, et pour MO et SO c'est l'inverse.

Tableau 6.2: Valeurs des conductivités hydrauliques retenues pour les simulations des essais dans les petites colonnes (valeurs utilisées aux chapitres 7 et 8)

Matériau	k_{sat} (m/s)
MNO	$5{,}30.10^{-7}$
MO	$1{,}10.10^{-6}$
SNO	$4{,}00.10^{-7}$
SO	$1{,}90.10^{-7}$

6.1.3 Conditions atmosphériques et infiltration (au laboratoire)

Les petites colonnes étant placées à proximité des grandes colonnes (à moins de 2 mètres de distance et à la même hauteur), les conditions climatiques mesurées pour ces dernières seront considérées valides ici. Le lecteur pourra se reporter à la section 5.1.3 pour les détails.

Le volume d'eau déionisée ajouté au sommet des petites colonnes varie au cours des cycles (voir tableau 3.4). L'infiltration est rapide dans la petite colonne MNOP (quelques heures), mais peut prendre entre 4 et 8 jours pour les colonnes MOP, SNOP et SOP.

6.1.4 Débit de sortie

Les débits de sortie mesurés à la base des petites colonnes sont présentés dans la figure 6.2 sous la forme du rapport du volume d'eau récupéré sur le volume d'eau ajouté au sommet de la colonne au début de chaque cycle. La courbe est présentée en valeurs cumulées pour chaque cycle.

On rappelle qu'une couche de sable a été ajoutée au sommet des petites colonnes SNOP et SOP pendant le cycle 7, et dès le début de l'essai dans les colonnes MNOP et MOP (voir section 3.4.2 et figure 3.9).

Le taux de récupération pour la colonne MNOP est le plus élevé, avec des valeurs comprises entre 80 et 90% (exception faite du second cycle, pour lequel on suppose que l'écoulement a été plus lent et qu'une plus grande partie de l'eau a été perdue par évaporation), et le plus rapide. L'arrivée de l'eau de drainage se produit généralement dans l'heure suivant l'ajout d'eau au sommet de la colonne et l'écoulement dure moins d'une journée. On soupçonne la présence d'écoulements préférentiels.

Dans la colonne MOP, le taux de récupération suit deux phases. Au cours des 6 premiers cycles, il est d'un peu plus de 50%, mais baisse à partir du 7^{e} cycle à moins de 30% (ou 40% pour certains cycles). Aucun changement n'est survenu dans la procédure d'essai, et on soupçonne donc une évolution des propriétés des matériaux au cours des essais ou une augmentation des effets de l'évaporation.

Dans les colonnes SNOP et SOP, on constate que le taux de récupération, initialement de 20% environ (i.e. la majeure partie de l'eau est perdue par évaporation), augmente sensiblement après le 7ème cycle (autour de 40%). Une couche de sable protectrice a justement été ajoutée à cette date. Elle aurait donc permis de limiter l'évaporation et par conséquent la perte d'eau. Ainsi, la conductivité hydraulique des résidus est demeurée plus élevée, et l'écoulement s'est fait plus rapidement. On note que pour SNOP, le volume d'eau récupéré au cours des trois ou quatre derniers cycles était très faible (quelques mL seulement). On suppose qu'un changement dans les propriétés des matériaux est à l'origine de ce phénomène. Il pourrait y avoir eu colmatage à la base, ce qui aurait limité la conductivité hydraulique localement, ou des réactions d'oxydation avec précipitations secondaires ont diminué la porosité dans tout le milieu.

On n'observe pas de variations saisonnières dans ces résultats.

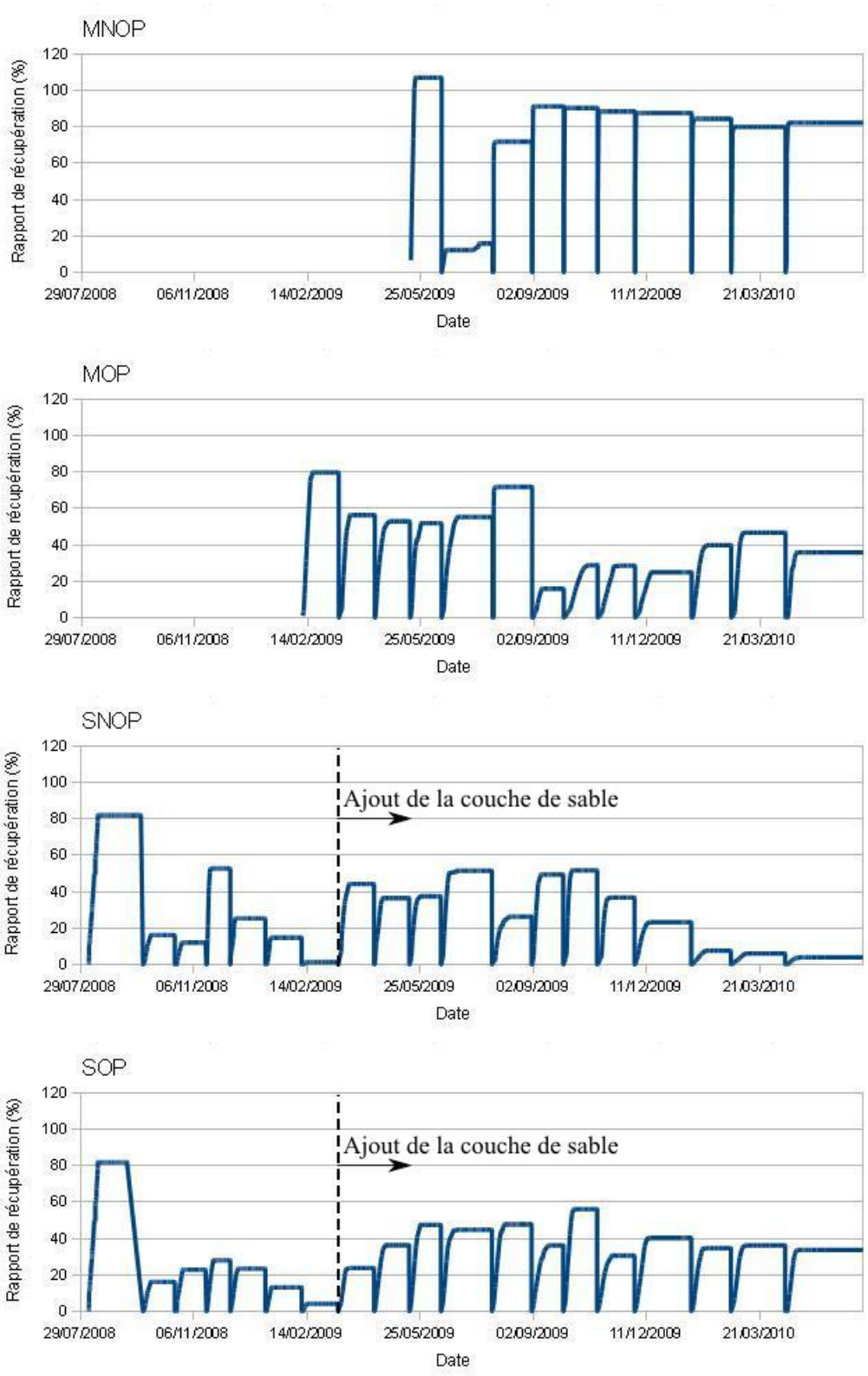


Figure 6.2: Rapport des volumes récupérés à la base sur les volumes ajoutés au début de chaque cycle lors des essais dans les petites colonnes

6.2 Teneurs en eau volumiques

La figure 6.3 présente les variations de la teneur en eau volumique θ_w dans la moitié supérieure de chaque petite colonne (l'annexe 6.1 présente ces résultats exprimés en degré de saturation). Les teneurs en eau y ont été mesurées au moyen de sondes TDR gainées (voir section 3.3.3) calibrées (section 3.3.3.2).

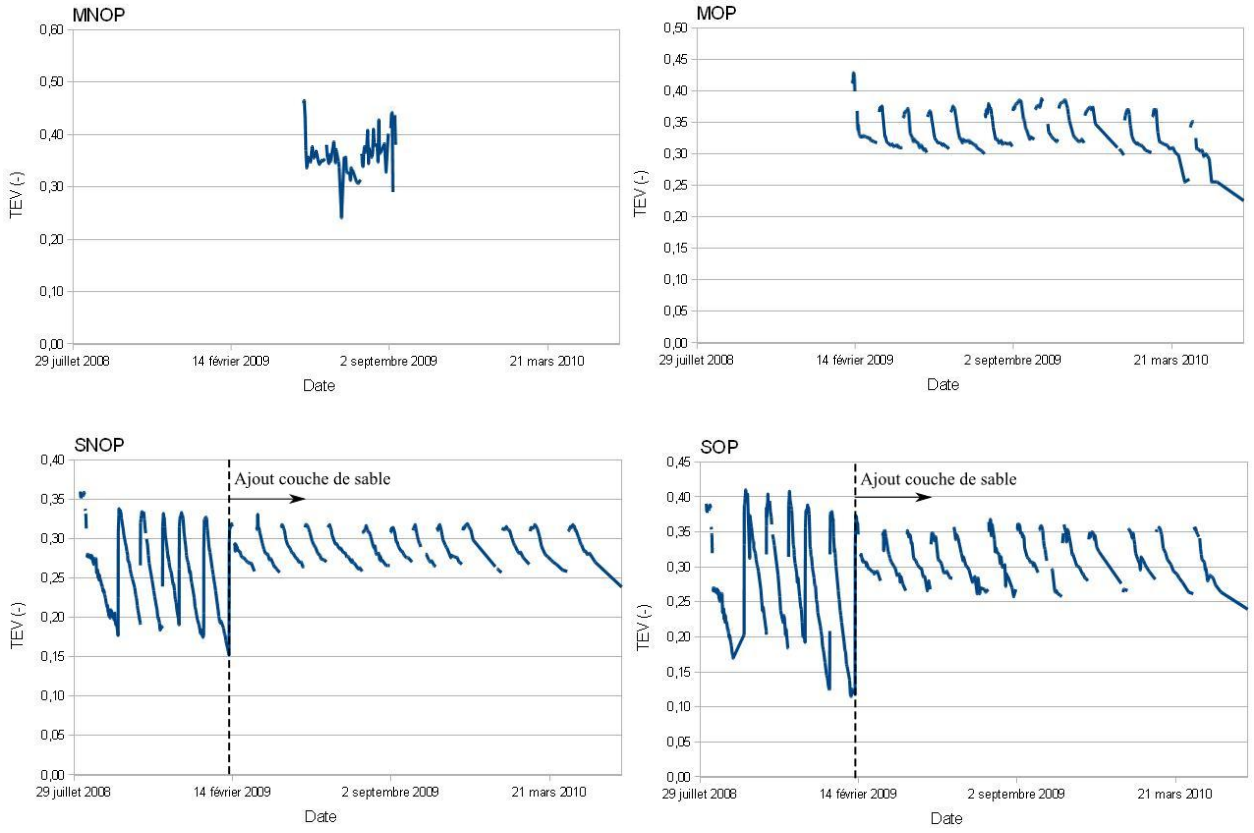


Figure 6.3: Variations des teneurs en eau volumiques dans les petites colonnes au cours des cycles de mouillage-drainage (obtenues selon les lectures des sondes TDR) ; les pointillés marquent l'ajout de la couche de sable dans les colonnes SNOP et SOP (le sable a été mis en place dès le début pour MNOP et MOP)

De façon générale, on peut noter sur ces graphiques que :

- chaque pic correspond au début d'un cycle. Lorsque l'eau est ajoutée au sommet de la colonne, la teneur en eau volumique augmente rapidement. L'importance de cette

augmentation varie selon les colonnes : θ_w augmente d'environ 0,10 pour MOP, de près de 0,18 pour SNOP (6 premiers cycles) et d'environ 0,25 pour SOP ;

- initialement, la teneur en eau volumique est égale à la porosité (S_r = 100%) dans toutes les colonnes, mais dès le second cycle, elle ne dépasse plus un certain maximum (environ 0,38 pour MOP, 0,32 pour SNOP, et 0,35 pour SOP). Il s'agirait, comme pour les grandes colonnes (voir section 5.3) d'un effet d'hystérésis de la CRE, qui induirait une différence de satiation entre le premier cycle (drainage) et les suivants (mouillage) ;
- SNOP et SOP montrent un important changement de comportement à partir du 7^e cycle. Du 2^e au 6^e cycle, leurs teneurs en eau volumiques varient entre 0,15 et 0,35 (SNOP) et entre 0,12 et 0,42 (SOP). Puis, du 7^e cycle à la fin de l'essai, elles varient dans un intervalle de 0,25 à 0,32 (0,37 pour SOP). Ceci s'expliquerait par l'ajout de la couche de sable au sommet des petites colonnes (quelques jours après le début du cycle 7), qui a permis de limiter l'évaporation et d'éviter une désaturation trop avancée des matériaux ;
- pour certaines colonnes (particulièrement MOP), la teneur en eau volumique semble diminuer de façon globale au cours de l'essai. Par exemple, la teneur en eau volumique pour MOP passe de 0,31 environ à la fin du 2^e cycle à moins de 0,24 pour le dernier cycle. Cette désaturation progressive pourrait s'expliquer par le développement du phénomène d'hystérésis sur plusieurs cycles, par un assèchement progressif du milieu, ou par un moins bon contact avec les sondes.

Remarques spécifiques :

- MNOP : les mesures de teneurs en eau n'ont pas données les résultats escomptées. Plusieurs hypothèses peuvent expliquer le fait que l'on n'ait par été en mesure de suivre la teneur en eau au cours des essais : sonde cassée, teneur en eau trop faible ou trop haute, ou retrait des résidus autour des tiges de la sonde. Un mauvais contact entre la sonde et le milieu crée un milieu résistif local empêchant la mesure de teneur en eau. Une autre explication pourrait être la forte salinité de l'eau interstitielle (voir section 6.5) qui augmente la dispersion du signal électrique et affecte les mesures des TDR. Bien qu'ayant employé volontairement une sonde gainée pour prévenir ce problème, il est possible que la conductivité électrique ait quand même été trop forte ;

- MOP : comme la colonne a été directement installée avec une couche de sable à son sommet, on ne note pas de changement de tendances dans les teneurs en eau volumiques. L'effet de l'évaporation semble relativement faible : après la baisse rapide de la teneur en eau volumique (que l'on attribue à l'application de la succion à la base de la colonne), θ_w ne varie presque plus. Comme MOP est relativement grossier, sa conductivité hydraulique diminue rapidement lorsque sa teneur en eau baisse, limitant ainsi les mouvements d'eau et a fortiori l'évaporation (surtout en présence de la couche de sable à son sommet). Le faible contraste granulométrique entre les deux couches expliquerait aussi que moins d'eau soit retenue dans la couverture de sable et que celle-ci se désaturant plus vite, elle pourrait jouer pleinement son rôle de barrière à l'évaporation ;
- SNOP et SOP : ces deux colonnes ont des comportements très similaires ; la principale différence entre les deux est l'amplitude des variations de teneurs en eau, SOP se désaturant un peu plus et sa teneur en eau volumique maximal étant un peu plus élevé.

Dans les petites colonnes, les degrés de saturation diminuent suffisamment au cours de l'essai (en dessous de 85%), même après l'ajout de la couche de sable, pour que l'on puisse s'attendre à la génération importante de DMA (ce qui était l'objectif visé).

6.3 Pressions d'eau

La figure 6.4 synthétise les résultats des mesures de pressions d'eau (exprimées comme une charge de pression, en cm) au cours des cycles de mouillage-drainage sur chaque colonne. De façon générale, on peut noter sur ces graphiques que :

- chaque pic correspond au début d'un cycle. L'ajout d'eau au sommet des colonnes entraine l'augmentation de la pression d'eau, généralement avec une valeur positive (mais pas toujours, comme pour certains cycles sur MNOP, lorsque l'écoulement est rapide) ;
- l'effet de l'évaporation est bien visible, et plus marqué que pour les grandes colonnes. Les succions appliquées à la base des petites colonnes sont faibles pour les raisons décrites plus haut (désaturation du tube en U), parfois seulement 30 cm, ce qui donnerait des succions à l’équilibre de 45 cm dans le haut des colonnes. Or, celles-ci atteignent 400 cm et plus pour la plupart des colonnes. Ceci reflète l'importance de l'évaporation sur leur désaturation et leur comportement général ;

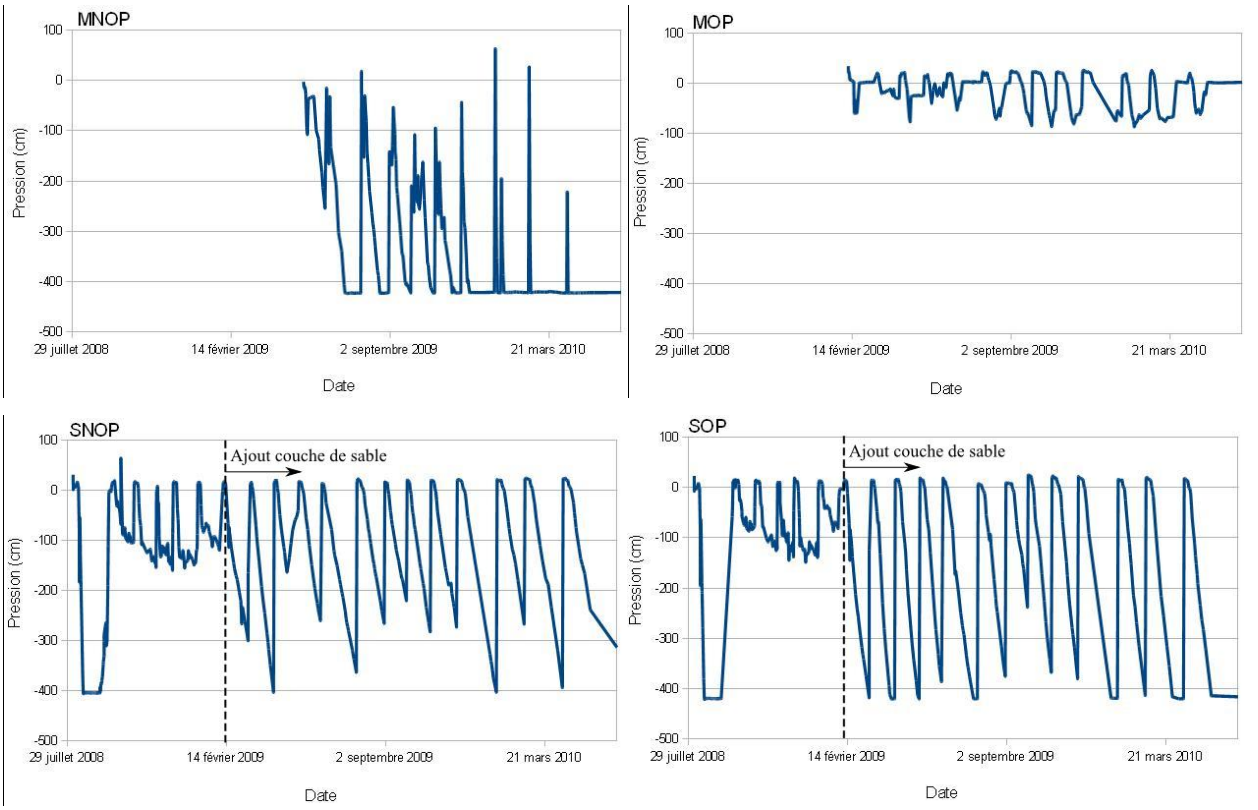


Figure 6.4: Variations des pressions d'eau mesurées dans les petites colonnes au cours des cycles de mouillage-drainage ; les pointillés marquent l'ajout de la couche de sable dans les colonnes SNOP et SOP (le sable a été mis en place dès le début pour MNOP et MOP)

- comme pour les grandes colonnes, plusieurs phases peuvent être observées dans la variation des pressions dans les colonnes. La première se caractérise par un pallier à pression quasi-constante (et positive) correspondant au passage du front de mouillage. La phase suivante correspond à une diminution rapide des pressions, puis une stabilisation. Cette observation est cohérente avec les variations de teneurs en eau, et semble confirmer l'efficacité de la couche de sable dans son rôle de barrière à l'évaporation ;
- la superposition des graphiques de pression et de teneur en eau volumique montre un léger décalage des pics (en raison du retard de la courbe de pressions). Ceci est notamment visible pour la vitesse de remontée des pressions et teneurs en eau : là où les degrés de saturation remontent rapidement à leur maximum (droite presque verticale), la courbe de pression présente une pente moins abrupte. Cette différence peut être attribuée

au temps de retard dans la réponse des capteurs de pression (liée à la faible perméabilité des bougies de céramiques qui retardent ainsi la transmission des pressions) ;

- quelques résultats sont jugés aberrants. Il a pu arriver que des capteurs soient soumis à des succions supérieures (en valeur absolue) à leur limite (physique) de mesure. C'est le cas notamment pour MNOP. Les résultats deviennent alors constants à des succions légèrement inférieures à -5 psi (environ -400 kPa). D'autre part, il a pu arriver que les capteurs se désaturent (par des phénomènes de cavitation, par la diffusion de l'oxygène à travers la bougie de céramique...). Dans ce cas, la pression "décroche" et remonte subitement à une valeur proche de 0. C'est fréquemment le cas pour MOP.

Remarques spécifiques :

- MNOP : les mesures de pression sur la colonne MNOP sont incomplètes en raison des limites du capteur lui-même. Il semblerait que les pressions dans la colonne soient trop faibles pour être mesurées par le capteur de pression employé, et que l'on obtienne cette valeur seuil de -400 kPa. En d'autres termes, la combinaison de la succion due à la position de la nappe (-2 m) et de l'évaporation, entraine une succion totale trop élevée. Même si la sonde TDR et le capteur de pression n'ont pas fonctionné comme prévu, on peut s'attendre à une très forte désaturation de la colonne MNOP ;
- MOP : les pressions mesurées dans cette colonne ne sont pas tout à fait égales aux pressions réelles dans la colonne en raison de la désaturation occasionnelle des capteurs. Néanmoins, de façon générale, les pressions d'eau sont plus élevées que dans les autres colonnes, ce qui confirme les variations du degré de saturation relativement limitées ;
- SNOP et SOP : ces colonnes montrent des succions relativement élevées au cours de 6 premiers cycles. Lors du premier cycle, la succion est si forte qu'elle dépasse la limite du capteur. Puis, au cours des cycles 2 à 6, la pression ne passe pas sous -150 kPa. A partir du cycle 7, la succion redevient plus importante mais demeure au-dessus de -400 kPa. Ceci ne correspond pas aux résultats de teneurs en eau, qui évoluent dans le sens inverse (plus faible au cours des premiers cycles, plus élevées après le 7^{e}). Les résultats des 6 premiers cycles seraient affectés par le protocole expérimental, car les capteurs n'étaient pas saturés (à chaque cycle) avec pour conséquence une désaturation plus rapide (et une eau contaminée et aérée dans le capteur) qui a pu fausser les résultats.

Ces résultats ne pourront pas être employés pour déterminer les courbes de rétention d'eau des matériaux dans les colonnes. La position des capteurs (environ 15cm de la base pour le capteur de pression et entre 20 et 30 pour la TDR), la mesure obtenue des sondes TDR (qui réalisent une moyenne sur toute leur longueur) et la rapide variation des teneurs en eau volumiques et des pressions dans les colonnes, ne permettent pas de comparer directement les mesures de pressions et de teneur en eau volumique.

6.4 Qualité du lixiviat

Les résultats des analyses chimiques effectuées sur les lixiviats de chaque petite colonne sont présentés aux figures 6.5 à 6.8. Comme pour les grandes colonnes (voir section 5.6), on présente ces mesures cas par cas. Compte tenu des faibles volumes de résidus considérés, il y a ici un temps de latence moins long, par rapport aux grandes colonnes, entre ce qui entre dans la colonne et ce qui en sort. Un certain effet de mélange est également attendu en raison du mode opératoire (échantillonnages sur deux ou trois jours, voir section 3.3.5).

6.4.1 MNOP

Etat initial : une seule mesure est généralement effectuée par cycle (les volumes récupérés sont trop faibles pour réaliser d'avantage de prélèvements). Au premier cycle, on peut noter sur les graphiques la présence de deux points très rapprochés qui correspondent pour l'un (à t = 0) à la concentration initiale de l'eau interstitielle (prélevée lors du montage de la colonne, quelques semaines avant le début des essais) et pour le second (à t = 1 ou 2 jours) au lixiviat du 1er cycle. On constate que les concentrations des deux sont très proches. On en déduit que le stockage des résidus dans la colonne (saturés sous environ 7 ou 8 cm d'eau libre) permet de prévenir une modification géochimique avant le début des essais. On note aussi que l'accumulation de certains éléments (initialement présents à fortes teneurs) est le résultat de réactions s'étant produites avant la mise en place des colonnes. Ces éléments voient leur concentration diminuer rapidement au cours des cycles de mouillage-drainage.

Front de drainage (défini à la section 5.5.1) : les concentrations de K, Mg, Mn, Ni et Na, initialement relativement élevées, diminuent rapidement (en l'espace de seulement deux ou trois cycles). Ces concentrations demeurent par la suite à peu près constantes. On peut donc supposer que pratiquement toute l'eau présente initialement dans la colonne a été remplacée après deux ou

trois cycles et que le lixiviat est alors représentatif des réactions chimiques survenant dans la colonne.

Oxydation de la pyrite : l'oxydation des sulfures (ici la pyrite seulement) et la génération de DMA peuvent être suivies de manière indirecte en observant la production des sulfates ou du fer ou encore l'évolution du pH ou des métaux lourds (dont la solubilité est fonction du pH).

Le pH du lixiviat diminue tout au long de l'essai. Initialement, il est légèrement supérieur à 3,0 mais est inférieur à 2,4 après 10 cycles ($[H^+]$ a été multipliée par 4). Comme le pH est initialement faible, son évolution ne devrait pas modifier significativement la solubilité des minéraux au cours de l'essai.

Les concentrations de sulfates augmentent à partir du 7^e cycle. Les sulfates en particuliers voient leurs concentrations passer d'un peu moins de 10 000 ppm (concentration constante pendant les 6 premiers cycles) à 40 000 ppm à la fin de l'essai. Si l'on considère que l'on récupère dans le lixiviat tous les sulfates produits (en supposant que celui-ci ne précipite pas), cela signifie que la quantité de sulfates produits au cours de l'essai est d'au moins 0,5 mol. Cela représente l'oxydation d'une masse de pyrite de 32 g, soit plus de 6% de la masse de pyrite dans la colonne (voir calcul type à l'annexe 5.4).

Les concentrations de Fe évoluent d'une manière similaire, avec une concentration constante aux alentours de 1000 ppm pendant les 6 premiers cycles, puis une augmentation jusqu'à 7500 ppm sur les 3 derniers cycles. La quantité de fer total récupéré tout au long de l'essai représente environ 0,13 mol. Si on considère que la réaction d'oxydation directe prédomine dans la colonne, on devrait retrouver dans le lixiviat moitié moins de fer que de sulfates (et encore plus si la réaction est indirecte). On a ici un déficit en fer. Ceci pourrait s'expliquer par la précipitation de ce dernier (sous forme d'oxyde ou d'oxy-hydroxyde). Mais vu le pH faible, il serait surprenant que ces précipités soient stables (voir diagramme Eh-pH du fer, par exemple dans Appelo et Postma, 1993 ou à la section 8.2.3). Une partie du déficit pourrait également être expliqué par des substitutions diverses (voir partie sur les minéraux orphelins un peu plus bas) ou la dissolution de gypse éventuellement présent dans les résidus (non détecté au DRX).

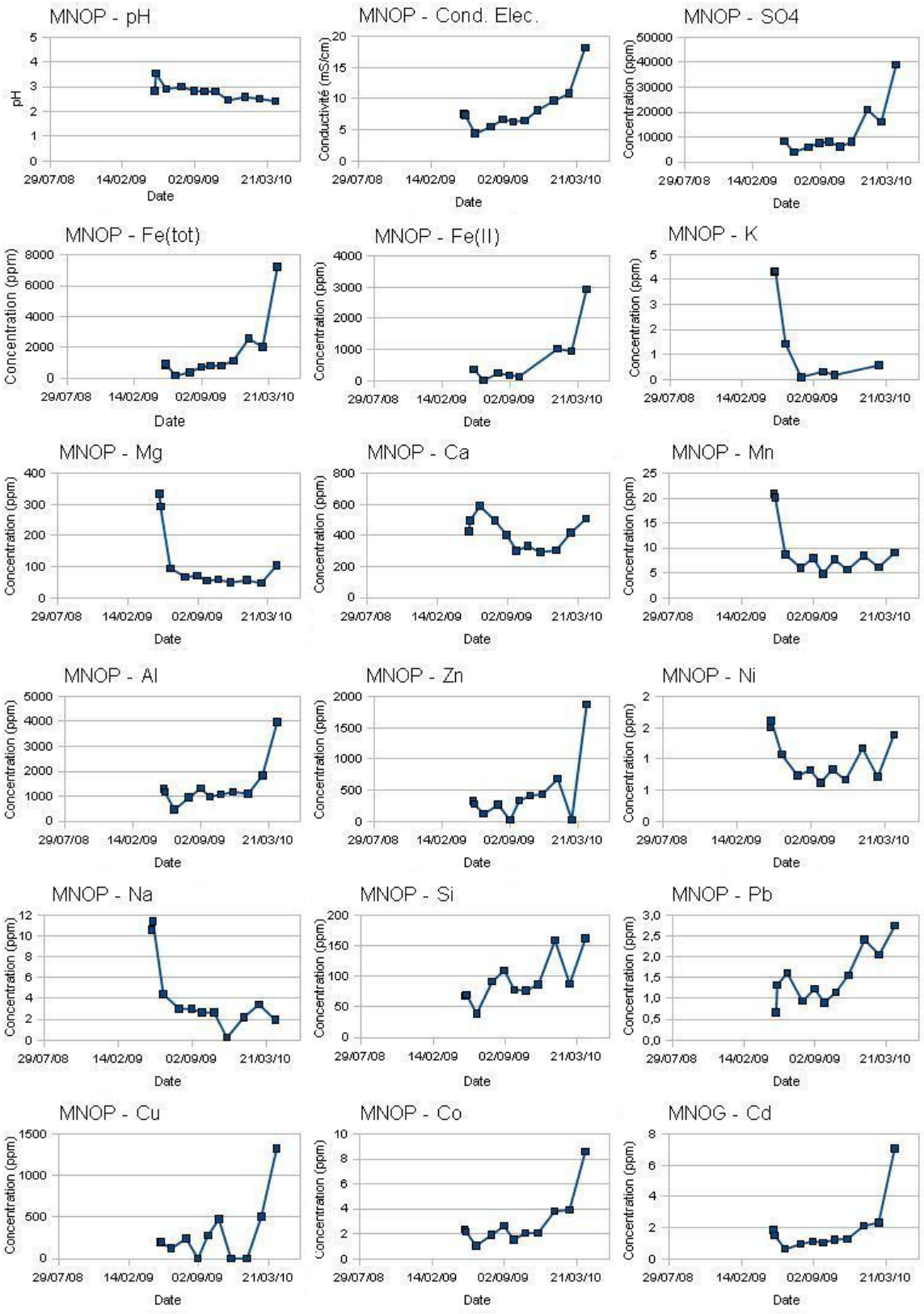


Figure 6.5: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne MNOP à chaque cycle

La conductivité électrique évolue en parallèle de celles des concentrations de sulfates et de fer. A peu près constante (autour de 7 mS/cm) au début de l'essai, elle augmente à partir du cycle 7 jusqu'à atteindre des valeurs proches de 20 mS/cm. Ces valeurs sont élevées par rapport aux mesures dans les autres colonnes. On note qu'en nombre de moles, les sulfates représentent plus de 50% des concentrations mesurées et contribuent donc essentiellement à ces fortes valeurs de conductivité.

Dissolution des silicates : le comportement de K, Mg et Na suit la tendance anticipée. Leurs concentrations initiales décroissent de plus de 50% au cours des deux ou trois premiers cycles, puis se stabilisent. K provient essentiellement de la muscovite, Mg de la chlorite et Na de l'albite. Leur taux de dissolution est faible (même à ces pH) et assez différent : la muscovite se dissout beaucoup plus lentement que l'albite (Appelo et Postma, 1993). On remarque que les concentrations ne sont pas fonction de la teneur de ces minéraux dans le milieu. Ainsi, l'analyse DRX a permis de montrer que la muscovite était plus abondante que la chlorite, elle même plus présente que l'albite. Or, on constate que les concentrations de Mg sont plus importantes (environ 50 ppm) que celles de Na (environ 2 ppm) elles mêmes plus grandes que celles de K (moins de 1 ppm). En rapportant la masse de chacun des éléments récupérés (sans tenir compte des premiers cycles et en supposant qu'il n'y a pas eu de précipitations secondaires) sur la masse totale du minéral, on trouve que la chlorite (supposée "parfaite", i.e. pôle magnésien) a été dissoute à environ 2,15%, la muscovite à 0,00048% et l'albite à 0,11%.

Cas particulier de l'anorthite : les concentrations de Ca, Al et Si suivent des tendances différentes de celles des autres silicates. Le calcium voit sa concentration demeurer à peu près constante autour de 400 ppm (±200 ppm selon les cycles). En l'absence de carbonates, il semblerait qu'il provienne de la dissolution de silicates, comme l'anorthite. Al est présent à des concentrations élevées (environ 1000 ppm dès le début de l'essai). Puis à partir du 8^{e} cycle, sa concentration augmente jusqu'à 4000 ppm. Al est généralement présent plusieurs types de silicates (chlorite, muscovite, albite, anorthite...). Les concentrations de Si sont relativement élevées (50 ppm) et augmentent au cours du temps.

Ces trois éléments (Ca, Al et Si) se retrouvent dans l'anorthite, qui est relativement soluble (Appelo et Postma, 1993). L'analyse DRX a confirmé sa forte présence dans MNOP (plus de 9%) (les résultats sur MNOG sont un peu différents ; voir section 5.5 pour plus de détails).

L'hypothèse la plus vraisemblable est donc que l'anorthite se dissout de façon marquée dans le milieu, libérant de grandes quantités de Ca, Al et Si.

Il est difficile de déterminer quelle fraction d'anorthite a été dissoute car tous les éléments qui la composent se retrouvent également dans d'autres minéraux et qu'on ne connait pas la contribution de chacun. En faisant l'hypothèse que le Ca provient uniquement de l'anorthite, on estimerait toutefois la portion d'anorthite dissoute à plus de 2,6%.

Enfin, pour expliquer le retard dans l'arrivée de l'aluminium (augmentation brusque au 8^{e} cycle), on peut rappeler que Al est très peu mobile et a tendance à précipiter sous forme d'oxydes ou d'oxy-hydroxydes, en particulier pour des concentrations aussi élevées que 4000 ppm. La baisse du pH ou la surconcentration d'Al a peut-être entrainé une redissolution et son relargage dans le lixiviat, d'où également des concentrations plus élevées, accumulées sur 7 cycles. Le fait que l'Al soit présent en plus grande quantité que Ca peut s'expliquer également par ses multiples origines.

Eléments orphelins : certains éléments (Mn, Zn, Ni, Pb, Cu, Co et Cd) n'ont pas d'origine claire dans la minéralogie des résidus telle que mesurée par DRX. Selon les cas, plusieurs explications peuvent être avancées pour expliquer leur présence, ainsi que leur évolution.

Mn a un comportement particulier par rapport aux autres éléments orphelins. Sa concentration diminue fortement (plus de 50%) au cours des premiers cycles, puis se stabilise autour de 7 ppm. On peut supposer que Mn s'est accumulé dans le milieu (par exemple *in situ*) et que sa mise en solution ultérieure est relativement faible et constante au cours du temps. L'accélération de l'acidification ne semble pas modifier sa concentration. On peut rapprocher son comportement à celui de Mg, de K ou de Na, et donc à celui des silicates en général. Mn est fréquemment présent en substitution de Fe, d'Al ou de Mg dans la chlorite ou la muscovite (Klein et Hurlbut, 1993). On peut donc supposer que sa libération est associée à la dissolution de ces deux silicates.

Les autres minéraux orphelins voient leurs concentrations suivre une tendance similaire à celles du fer et des sulfates. Ainsi, pendant les 7 premiers cycles, leurs concentrations sont relativement faibles, puis augmentent rapidement (de 2 à 5 fois) vers la fin de l'essai. La similarité avec les éléments issus de l'oxydation de la pyrite laisse penser qu'il pourrait s'agir d'éléments de substitution. La pyrite est rarement présente à l'état pur et de nombreux métaux peuvent remplacer le fer dans sa structure (Klein et Hurlbut, 1993). Leurs concentrations peuvent sembler

importantes, mais ne représentent en réalité que 0,05 mol au total (calculé selon la procédure décrite à l'annexe 5.4), i.e. 10% de la quantité de sulfates récupérés.

Enfin, une fraction de Mn pourrait également provenir de substitutions. Pour le vérifier, il aurait fallu séparer l'analyse de Mn^{2+} (provenant des sulfures) et Mn^{3+} (provenant des silicates).

En résumé, les essais semblent avoir été arrêtés un peu trop tôt pour confirmer la tendance qui se dessine à partir du 8^{e} cycle. On note toutefois une accélération de la production de certains éléments au cours des derniers cycles.

De façon générale, on constate aussi que la génération de DMA débute de façon intensive à partir du 7^{e} cycle. L'oxydation de la pyrite libère d'importantes quantités de sulfates et de fer, ainsi que certains métaux de substitution. Dans le même temps, la conductivité électrique augmente et le pH diminue. Les silicates sont relativement stables et se dissolvent lentement. Dans l'ordre, l'anorthite se dissout le plus rapidement, libérant d'importantes quantités d'Al et de Ca. Puis viens la chlorite, l'albite et enfin la muscovite, qui, comme le quartz, n'est presque pas solubilisée.

6.4.2 MOP

Etat initial : les concentrations dans le lixiviat récupéré au premier cycle de mouillage-drainage sont pour la plupart très proches de celles mesurées dans le surnageant, lors du montage de la colonne. Quelques éléments présentent des variations un peu plus importantes, tels K, Pb, Na et Cd (de l'ordre de 2 à 3), mais demeurent dans des gammes de concentrations comparables (relativement faibles pour ces éléments). Cela permet de confirmer que la géochimie du système n'a pas été modifiée notablement lors des quelques semaines entre le montage de la colonne et le début des essais. Quelques réajustements et équilibrages ont néanmoins pu se produire. La méthode consistant à conserver les résidus saturés sous quelques centimètres d'eau libre semble donc avoir été ici efficace.

Front de drainage : certains éléments comme Na, Si ou Pb voient leurs concentrations changer rapidement dès le premier cycle de mouillage-drainage puis se stabiliser ensuite. La plupart des autres éléments (SO_4 et Fe surtout, mais aussi Mg, K, Al, Co ou Cd) voient leurs concentrations diminuer sur toute la durée de l'essai. Aussi il est difficile de déterminer précisément l'arrivée du front de drainage au bas de la colonne.

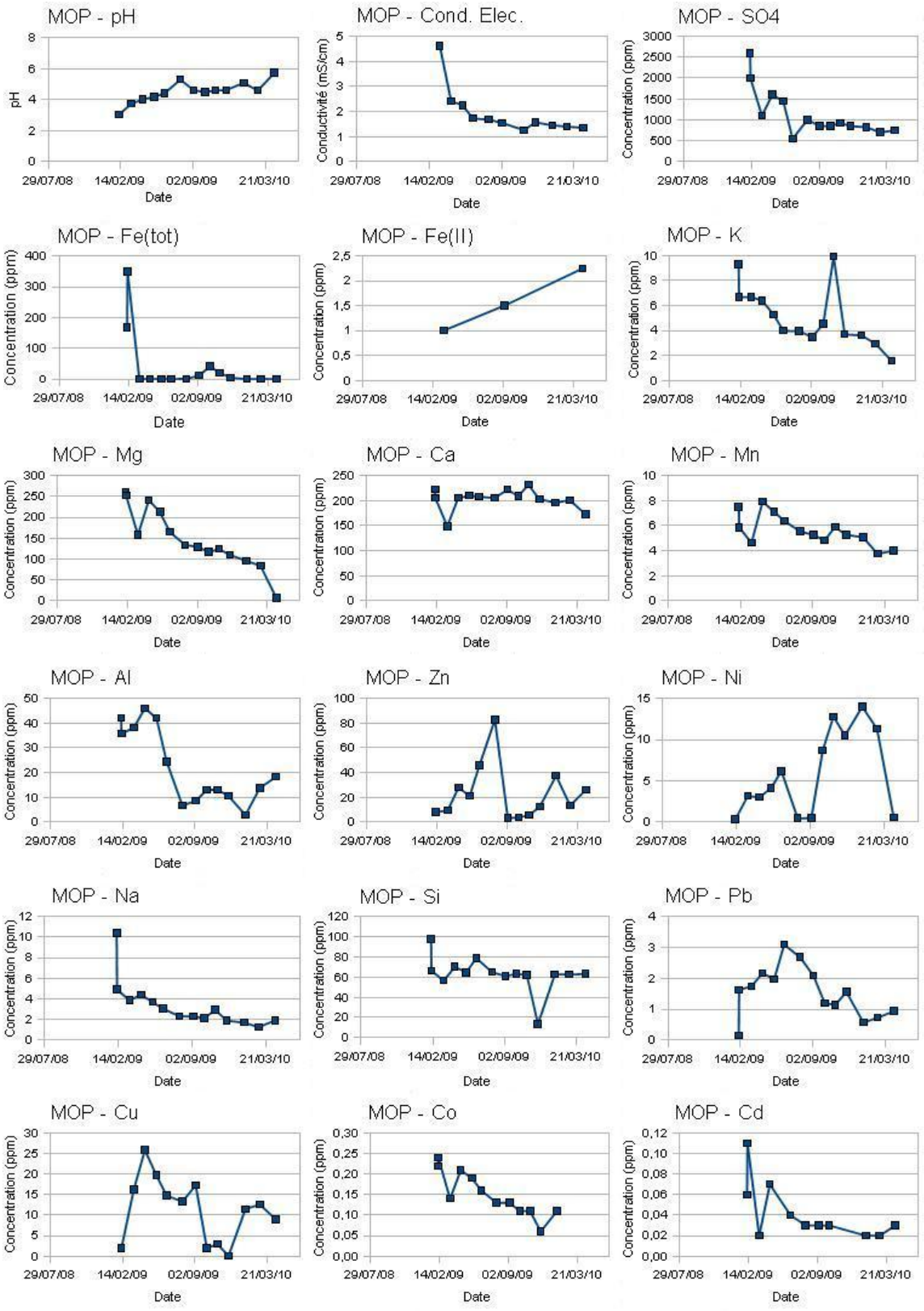


Figure 6.6: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne MOP à chaque cycle

Régime pseudo-permanent : on constate dans le cas des sulfates, du fer ou de certains autres métaux (Zn, Al, Cu, Co, Cd), que les concentrations sont à peu près constantes après un certain temps. On peut supposer ici que le régime pseudo-permanent est atteint à partir du 6^{e} cycle. Les simulations géochimiques (voir chapitre 8) permettront de valider cette hypothèse.

Oxydation de la pyrite : le pH du lixiviat augmente tout au long de l'essai, passant d'environ 3,0 au premier cycle à près de 6,0 au 13^{e} et dernier cycle. Les concentrations en sulfates sont initialement relativement élevées (autour de 2500 ppm) mais décroissent en l'espace de quelques cycles à moins de 1000 ppm après cinq cycles tout en semblant diminuer lentement. Les concentrations en fer sont initialement assez élevées (autour de 350 ppm) mais deviennent en moins de deux cycles très faibles (à peine mesurables à la fin de l'essai (< 0,1ppm)).

La conductivité électrique suit la tendance des sulfates (qui constituent une large part de la salinité de l'eau, soit environ 42% en moles de l'ensemble des éléments mesurés), avec une décroissance constante et relativement rapide (surtout dans les premiers cycles) de 4,5 mS/cm à moins de 1,5 mS/cm après 13 cycles. On note également que la quantité totale de moles d'éléments solubles récupérées est plus faible que dans les autres colonnes (moins de 0,1 mol récupérée au total contre 1 mol pour MNOP ou 0,5 mol pour SOP par exemple).

Ces caractéristiques sont celles de résidus pré-oxydés. Les éléments mesurés ont été produits dans le milieu par des réactions d'oxydation antérieures au début des essais en colonne et relargués pendant les essais. L'absence quasi-complète de sulfures dans les résidus MO indique que peu de réactions se produisent au cours des cycles. Il y a quelques dissolutions (voir plus loin), mais pas d'oxydation. Une fois que l'eau de drainage aura suffisamment percolé à travers les résidus et entrainés tous les produits d'oxydation, la chimie de l'eau récupérée devrait être à peu près similaire à celle de l'eau ajoutée au sommet de la colonne. En d'autres termes, si on continuait les essais, il est probable que l'on constaterait que le pH continuerait d'augmenter vers le pH de l'eau déionisée et que les concentrations en SO_4 et Fe continueraient de décroitre.

Dissolution des silicates : les concentrations de K, Mg et Na suivent les mêmes tendances que les autres éléments : une baisse régulière au long de l'essai, avec un léger ralentissement après 4 ou 5 cycles. Comme pour MNOP, on retrouve des concentrations beaucoup plus importantes en Mg qu'en K ou Na.

La dissolution de la chlorite semble plus faible ici que pour MNOP (les concentrations de Mg récupérées dans le lixiviat sont beaucoup moins importantes). Le pH, plus élevé, a un rôle à jouer dans le taux de dissolution. La dissolution de la muscovite demeure faible.

On note également qu'on ne mesure plus de traces d'albite au démontage de la colonne MOP. Soit elle a été entièrement dissoute, soit elle n'a pas été identifiée dans les petits échantillons prélevés.

Cas particulier de l'anorthite : la concentration de Ca est relativement élevée (autour de 200 ppm) et constante au cours de l'essai. En l'absence de carbonate, on peut estimer qu'elle provient essentiellement de la dissolution de l'anorthite, qui, on l'a vu plus haut, a un taux de dissolution relativement rapide. On retrouve la même constance dans les concentrations de Si, malgré la baisse dans les concentrations des autres éléments provenant également de silicates. La dissolution de l'anorthite semble compenser ces baisses. Al ne semble pas suivre la même tendance et demeure à des concentrations relativement faibles (entre 10 et 50 ppm) et tend à décroitre avec le temps. Une faible remontée est visible à la fin de l'essai, mais on manque de données pour confirmer cette tendance. Cependant, comme cela a pu être constaté dans les autres essais, Al a une certaine facilité à précipiter et c'est souvent avec un certain temps de retard qu'il est récupéré dans le lixiviat. L'augmentation du pH ne facilite d'ailleurs pas la libération d'Al. On note enfin que l'on ne détecte pas d'anorthite au démontage de MOP, ce qui peut s'expliquer soit par son épuisement (ce qui pourrait expliquer le début de baisse de concentration de Ca à partir du cycle 11) soit par des incertitudes liées aux prélèvements et aux mesures.

Eléments orphelins : les concentrations de Mn, Co, Cd, et dans une moindre mesure Zn et Cu, suivent la tendance générale, soit une diminution lente et continue. Pour Ni et Pb, on ne peut pas véritablement parler de baisse de concentration, mais plutôt de successions de cycles de libération (relargage), suivis de baisses importantes. Pour tous ces éléments, et plus que dans les autres colonnes, il n'y a pas de source directe, même pas la possibilité de substitutions dans les grains de pyrite (elle-même quasiment absente). On peut penser à des traces de réactions d'oxydation passées et à des précipités secondaires qui seraient restés dans le milieu et qui seraient relargués graduellement au gré des lessivages. Les concentrations initiales sont élevées à cause du passif de contamination sur cet échantillon. On sait par ailleurs que Mn et Ni peuvent être présents en substitution dans certains silicates (tels la chlorite notamment ; Klein et Hurlbut, 1993).

On note que les concentrations ont tendance à baisser avec le temps, ce qui peut signifier qu'il reste de moins en moins de ces éléments dans le milieu, ou qu'ils deviennent moins solubles avec l'augmentation du pH. Le nickel ne semble pas affecté par le changement de pH, mais on sait qu'il est encore largement soluble proche de la neutralité (Plante, 2010).

En résumé, MOP présente les caractéristiques de résidus peu réactifs mais fortement contaminés par des réactions antérieures. Les concentrations en métaux et en sulfates sont initialement élevées mais décroissent de façon continue au cours des cycles. Les silicates les plus solubles (anorthite) continuent de se retrouver en solution. A terme, la qualité de l'eau d'un résidu comme MO devrait tendre vers une amélioration, mais le temps requis pour lessiver toutes les traces de pré-oxydation peut être très long (par exemple, pour le régime hydrique appliqué ici, les concentrations en sulfates demeurent proches de 500 ppm après 13 cycles). Le relargage de certains métaux semble ralentir en raison de l'augmentation du pH, mais il pourrait augmenter si les conditions venaient à changer (surconcentration (évaporation) ou augmentation de l'acidité du milieu (pluie ou autres apports)). Ces observations seront comparées aux résultats de simulations hydro-géochimiques au chapitre 8.

6.4.3 SNOP et SOP

Les résultats des analyses chimiques effectuées sur les lixiviats des petites colonnes SNOP et SOP sont semblables entre eux et les courbes sont souvent parallèles pour les deux colonnes. Quelques différences d'amplitudes pourraient être reliées aux différences minéralogiques (elles-mêmes très faibles, voir section 4.8). Par conséquent, les résultats seront présentés pour les deux colonnes à la fois. L'interprétation des résultats est ici compliquée par l'ajout d'une couche de sable au sommet des petites colonnes au cours du 7^{e} cycle.

Front de drainage : en raison de l'ajout de la couche de sable au sommet des petites colonnes et du changement de régime hydrique, il est difficile de déterminer le temps d'arrivée du front de drainage. Les concentrations relativement faibles et la non accumulation de contaminants ne montrent pas le mélange et la dispersion caractéristiques du front de drainage.

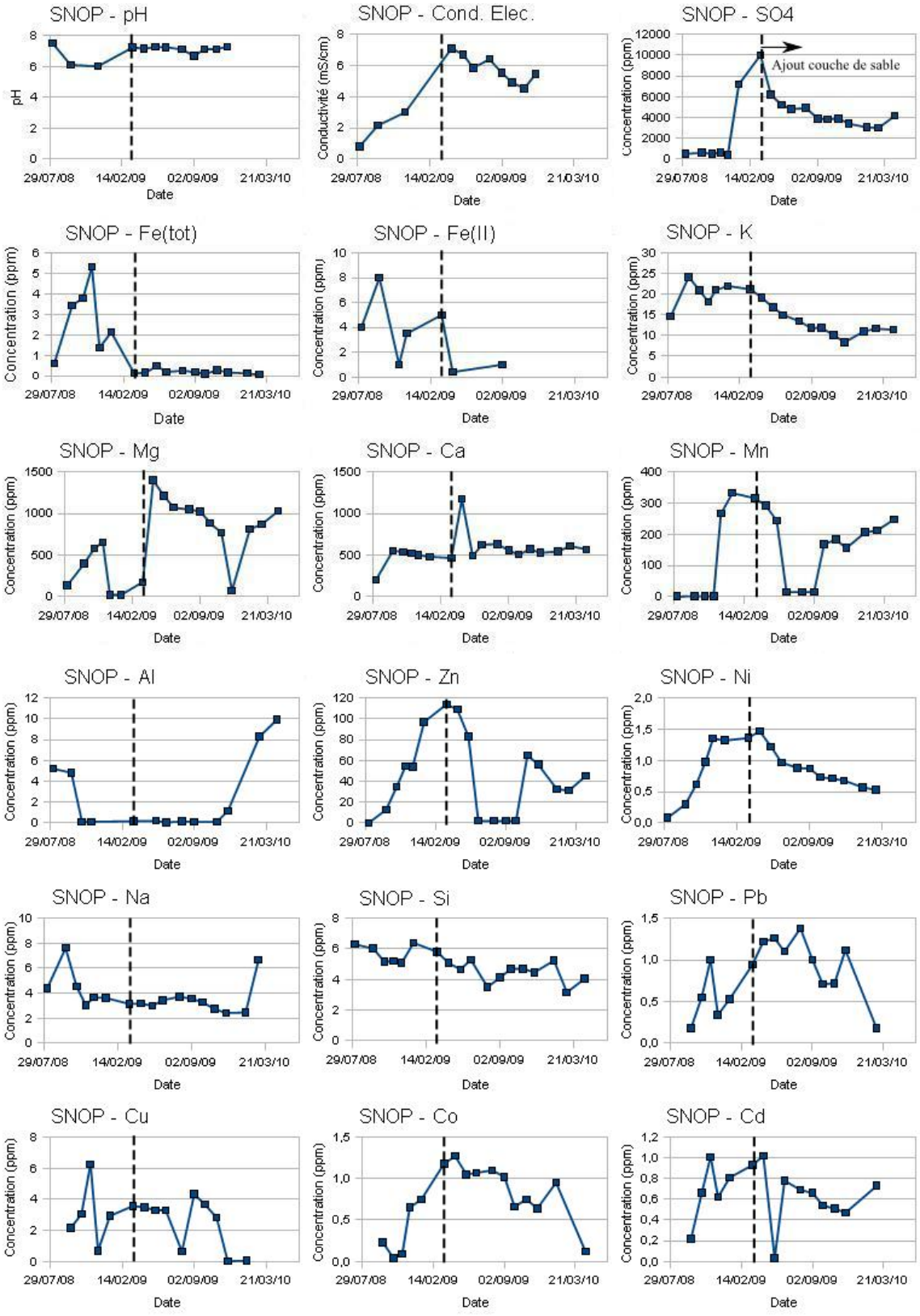


Figure 6.7: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne SNOP à chaque cycle ; les pointillés marquent l'ajout de la couche de sable

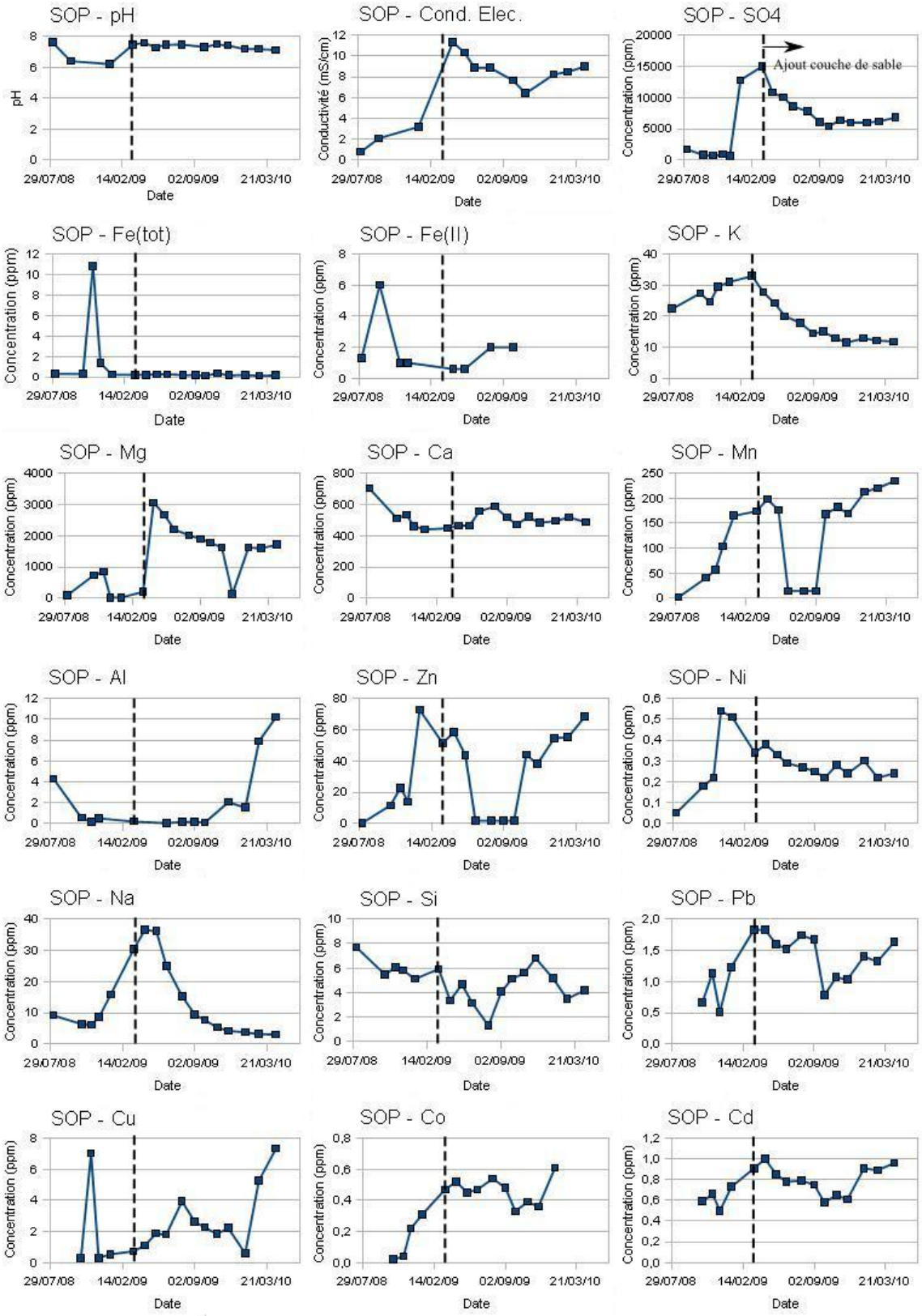


Figure 6.8: Analyses chimiques réalisées sur le lixiviat prélevé à la base de la colonne SOP à chaque cycle ; les pointillés marquent l'ajout de la couche de sable

Régime pseudo-permanent : la concentration de la plupart des éléments suivent la même tendance : une augmentation au cours des 7 premiers cycles puis une diminution continue jusqu'à la fin de l'essai. En règle générale, après le 13^{e} cycle, les concentrations semblent adopter une tendance uniforme (augmentation, diminution ou stabilité des concentrations ; excepté pour Al), ce qui pourrait laisser penser qu'on a atteint un régime pseudo-permanent pour la plupart des éléments.

Oxydation de la pyrite : les pH demeurent légèrement supérieurs à 7,0 tout au long de l'essai. L'ajout de la couche de sable ne semble pas modifier cette tendance. Une légère diminution à environ 6,0 se produit entre les cycles 2 et 6, avec également une augmentation des concentrations en fer dans le lixiviat, mais qui ne semble pas affecter la concentration en sulfates.

Les sulfates sont initialement présents à des concentrations relativement faibles (moins de 1000 ppm). Puis, au 6^{e} cycle, ces concentrations augmentent à plus de 10 000 ppm (15 000 pour SOP) avant de diminuer à partir du 8^{e} cycle jusqu'à atteindre des valeurs autour de 4000 ppm (6000 ppm pour SOP) à la fin de l'essai. Les concentrations obtenues pour SNOP et SOP suivent les mêmes tendances, mais décalées en amplitude, ce qui est logique considérant que SO contient 4% de pyrite, pour seulement 2% dans SNO. Par ailleurs, il est important de noter que l'augmentation brusque des concentrations se produit avant l'ajout de la couverture de sable. Si on fait l'hypothèse que les sulfates proviennent de l'oxydation de la pyrite et qu'ils ne précipitent pas dans les colonnes, on peut estimer la quantité de pyrite oxydée à 5,9 g pour SNOP, soit 7,2% du total, et à 13,0 g pour SOP, soit 6,5% du total. Bien que contenant moins de pyrite que SO, SNO semble être un résidu plus réactif (malgré une désaturation plus avancée dans SOP).

Les concentrations en fer sont plus faibles que le rapport stœchiométrique de la réaction d'oxydation directe. Cependant, les pH élevés expliquent qu'une large part du fer aurait pu précipiter dans la colonne. La coloration des résidus SO (dès l'échantillonnage) confirme en partie cette hypothèse (voir aussi discussion à la section 8.2.3). D'ailleurs, on constate qu'une faible diminution du pH entraine un relargage du fer en solution.

Les conductivités électriques suivent la même tendance que les sulfates, puisque comme pour les autres colonnes, ces derniers constituent presque 50% (en moles) de la quantité totale d'éléments en solution.

Considérant ces résultats, on peut proposer les hypothèses suivantes pour expliquer les comportements dans les colonnes. Le phénomène d'oxydation, et la contamination du lixiviat en résultant, débuterait dès la désaturation du sommet des colonnes, mais les effets sont mesurés avec un temps de retard lié à l'avancée du front de drainage. Le pH diminue, les concentrations en sulfates augmentent, tout comme la conductivité électrique. Deux cycles après l'atteinte d'un régime pseudo-permanent (les concentrations en sulfates semblent se stabiliser après leur forte augmentation), la couche de sable protectrice est ajoutée au sommet des deux petites colonnes. La teneur en eau réaugmente alors dans les résidus (car le sable limite le phénomène d'évaporation), et l'oxydation de la pyrite s'en trouve limitée. Les concentrations de sulfates baissent jusqu'à tendre vers un équilibre (entre réactivité et apport d'oxygène). Le taux d'oxydation est plus faible que précédemment, et ne permet pas l'acidification de la solution.

Présence de carbonates : la variation de concentration en Mg présente deux phases distinctes. La première se caractérise par des concentrations inférieures à 600 ppm (1000 ppm pour SOP) entre le 1^{er} et le 7^{e} cycle. La seconde est une augmentation rapide de la concentration (jusqu'à 1500 ppm et 3000 ppm pour SNOP et SOP respectivement), suivie de la diminution des concentrations jusqu'à des valeurs de 800 ppm (SNOP) ou 1600 (ppm). Dans la seconde phase, les concentrations de Mg suivent assez bien les tendances des concentrations de sulfates. Les concentrations de Ca demeurent à peu près constantes dans le lixiviat des petites colonnes SNOP et SOP, soit environ 500 ppm dans les deux cas. On soupçonne, au vu de ces résultats et du pH qui demeure proche de la neutralité, que les résidus SNO et SO contiennent une certaine fraction de carbonates non mesurés au DRX (mais l'analyse à la fournaise LECO indiquait la présence d'un certain pouvoir tampon dans les résidus SNO et SO). On présente à la figure 6.9 la comparaison des concentrations de sulfates et de magnésium et calcium mesurées dans le lixiviat récupéré à la base des colonnes SNOP et SOP. On constate que celles-ci ne s'alignent pas selon une droite 1:1 mais que les concentrations en Ca et Mg sont (en général) plus élevées que celles découlant de la stœchiométrie de la réaction de neutralisation. On peut expliquer cette observation en supposant que tout le Ca et Mg récupéré ne provient pas forcément de la dissolution des silicates, ou alors qu'on ne récupère par la totalité des sulfates produits par l'oxydation de la pyrite dans les colonnes. Au vu du pH, on peut croire qu'une partie du SO_4 précipite sous forme de gypse. Ces deux hypothèses pourraient également expliquer les concentrations constantes de calcium mesurées (normalement, elles devraient être égales ou

supérieures (en moles) à celles du magnésium or elles sont ici quatre fois inférieures aux valeurs attendues).

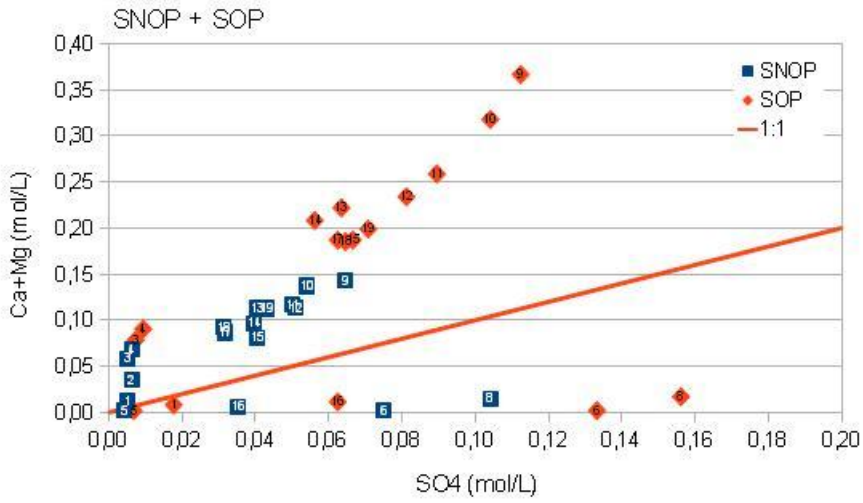


Figure 6.9: Diagramme [SO_4] vs [Ca]+[Mg] dans le lixiviat récupéré à la base des colonnes SNOP et SOP (les numéros indiqués correspondent aux cycles auxquels les mesures ont été réalisées)

Dissolution des silicates : les concentrations des minéraux issus de la dissolution des silicates présentent des comportements différents d'une espèce à l'autre (mais similaires entre les deux colonnes, à l'exception de Na).

Les concentrations de K sont constantes pendant les six premiers cycles (autour de 20 ppm pour SNOP et 30 ppm pour SOP) puis diminuent de façon continue entre le 7^{e} cycle et la fin de l'essai. On note également que pour K et Mg, les concentrations dans SOP sont supérieures à celles dans SNOP.

Les concentrations en Na dans SNOP sont faibles (autour de 4 ppm) avec deux pics aux 3^{e} et 19^{e} cycles. Elles présentent par contre une tendance générale différente dans SOP : des concentrations assez faibles initialement (mais plus élevées que dans SNOP, autour de 10 ppm), puis une augmentation à près de 40 ppm à partir du 5^{e} cycle, pour finir par une diminution continue à partir du 10^{e} cycle (jusqu'à peine 3 ppm au 19^{e} cycle). Le rapport des quantités totales

de Na récupérées dans les lixiviats de SNOP et SOP au cours des essais correspondent au rapport des quantités d'albite dans les deux résidus (1 pour 3 environ).

On peut estimer les taux de dissolution dans les colonnes SNOP et SOP en fin d'essai à : 0,00047% et 0,0029% par cycle pour la muscovite, 0,14% et 4,8% par cycle pour la chlorite et 0,0059% et 0,35% par cycle pour l'albite. On retrouve le fait que la chlorite est plus soluble que l'albite, elle-même plus soluble que la muscovite. La dissolution des silicates dans SOP semble plus rapide que dans SNOP. La plus forte réactivité des résidus SOP entrainerait une acidification locale plus importante qui dissout à son tour d'avantage de silicates avant que le lixiviat ne soit neutralisé à mesure qu'il progresse dans la colonne.

Eléments orphelins : l'évolution des concentrations de Ni, Pb, Cu, Co et Cd est assez variable avec des valeurs faibles. Il s'agirait de minéraux de substitution ou des relargages. Dans les cas de Ni, Co et Cd, on note une tendance similaire à ce que l'on a observé pour SO_4, ce qui laisse penser qu'il s'agirait bien d'éléments de substitution.

Mn et Zn présentent des tendances différentes. D'abord une concentration faible sur 4 ou 5 cycles, puis une forte augmentation qui se maintient 4 autres cycles, avant une chute presque à 0 ppm, puis une remontée sur les 6 derniers cycles. La deuxième chute est difficile à interpréter. Il pourrait s'agit d'une erreur de mesure ou d'un rapport liquide-solide défavorable à toute dissolution ou encore d'un phénomène de précipitation local.

Dans tous les cas, les concentrations augmentent en fin d'essai, indiquant un équilibrage des concentrations par rapport à l'oxydation des sulfures dans le haut des colonnes.

En résumé, les résidus dans les colonnes SNOP et SOP ont des comportements similaires. Les deux résidus s'oxydent et produisent une certaine quantité d'acide qui serait neutralisée par ce qui semble être de la dolomite. Les concentrations en sulfates sont notamment importantes, mais la plupart des autres éléments précipitent en raison du pH proche de la neutralité.

CHAPITRE 7 SIMULATIONS HYDROGÉOLOGIQUES

La modélisation hydrogéologique de l'écoulement dans les grandes et petites colonnes se fait essentiellement au moyen du logiciel Vadose/W (version 2007 ; voir section 2.6.1). L'objectif est double. Dans un premier temps, il s'agit de valider et calibrer[1] les modèles numériques, c'est-à-dire de reproduire les essais de laboratoire et de construire le modèle numérique de telle sorte que les résultats des simulations reproduisent les mesures expérimentales. Ensuite, on réalise une analyse paramétrique sur les principaux paramètres affectant le régime hydrique dans les résidus (niveau de nappe, épaisseur du recouvrement, configuration de la couverture, matériaux employés, conditions climatiques). L'objectif final est de transposer ces résultats à des échelles de temps et d'espace plus larges afin de déterminer l'efficacité du recouvrement retenu et éventuellement d'y proposer des alternatives. Les résultats présentés dans ce chapitre seront également employés pour construire les modèles numériques hydrogéochimiques dans le chapitre 8.

7.1 Construction des modèles numériques

7.1.1 Construction géométrique

Les modèles numériques des essais en colonne sont définis à deux dimensions (contrainte du logiciel) mais sont construits comme des modèles 1D. La forme des colonnes dans les simulations est parallélépipédique (une profondeur de 1 m est considérée par défaut par Vadose/W, mais les écoulements ne sont pas simulés dans cette direction) avec une seule cellule (pleine largeur) par élévation. Le maillage vertical est fixé à 1 cm sur toute la hauteur des colonnes (résidus et couverture) pour la phase de calibration et à 5 cm pour les analyses paramétriques (et les modèles de terrain). La taille des éléments est donc très inférieure à l'AEV des matériaux étudiés dans les colonnes (entre 1 et 3 mètres), ce qui permet d'obtenir un bon compromis entre vitesse de calculs et convergence (voir aussi discussion à la section 7.3.8).

---

1 Tout au long du document, le terme de « calibration », anglicisme usuellement employé comme synonyme d'« étalonnage » ou de « calage », sera aussi utilisé.

Afin de reproduire la configuration des colonnes, la largeur du modèle est choisie de sorte à respecter le rapport des diamètres des sections. Il a en effet été constaté (voir chapitre 3) que les sections des colonnes n'avaient pas toutes le même diamètre dans le montage expérimental. Normalement, on s'attend à ce que cela n'ait qu'une incidence très limitée sur l'écoulement, mais afin de s'en assurer, il a été décidé de le prendre en compte dans les simulations (voir aussi discussion à la section 7.3.6). Comme il n'est pas possible de contrôler les raccords entre cellules selon l'axe de la profondeur du modèle numérique, le choix a été fait de conserver toutes les profondeurs des éléments constantes et égales à 1 m. Seule varie donc la largeur des sections (voir figure 7.1.a et b). Pour éviter les distorsions d'échelle, l'aire des sections est réduite à 1/10 de leur véritable valeur (mais le rapport des surfaces des sections est conservé).

Les volumes et les débits simulés sont affectés par ces choix géométriques. Aussi les débits de sortie simulés sont ils comparés aux résultats expérimentaux sous forme de rapports (volume de sortie sur volume ajouté) et de bilans hydriques.

Les parois verticales du modèle numérique sont imperméables et des conditions frontières variables sont appliquées au sommet et à la base des colonnes. Au sommet des colonnes, on définit une couche de surface très fine (1 mm), dans le seul but de pouvoir appliquer une condition frontière de type climatique (une contrainte du logiciel). Ses propriétés sont les mêmes que les matériaux directement sous-jacents (exception faite des modèles avec CEBC, voir plus bas). Pour les simulations des essais en grande colonne, cette couche de surface a le diamètre de la plus grande section de colonne, afin d'éviter de laisser un espace libre où l'eau pourrait s'écouler et s'accumuler (voir figure 7.1).

Pour reproduire le comportement de la céramique et du tube en U qui servent à contrôler le niveau de nappe, on crée un matériau fictif dont la conductivité hydraulique est constante et égale à celle de la céramique et dont la teneur en eau volumique est constante et égale au rapport du volume réel du tube en U sur le volume dans le modèle (le volume d'eau disponible dans le tube en U est donc le même dans les expériences et dans les simulations). La hauteur des éléments est fixée à 10 cm pour le tube en U (il demeure saturé en tout temps). La contraction du diamètre à la base des colonnes (bords métalliques de la céramique) est également prise en compte (des schémas de la géométrie des céramiques et de leurs serres métalliques, ainsi que leurs

dimensions, sont présentés à l'annexe 7.1). Pour la couche de surface et la céramique, un maillage triangulaire est employé.

La figure 7.1 présente le modèle utilisé pour la simulation des grandes colonnes.

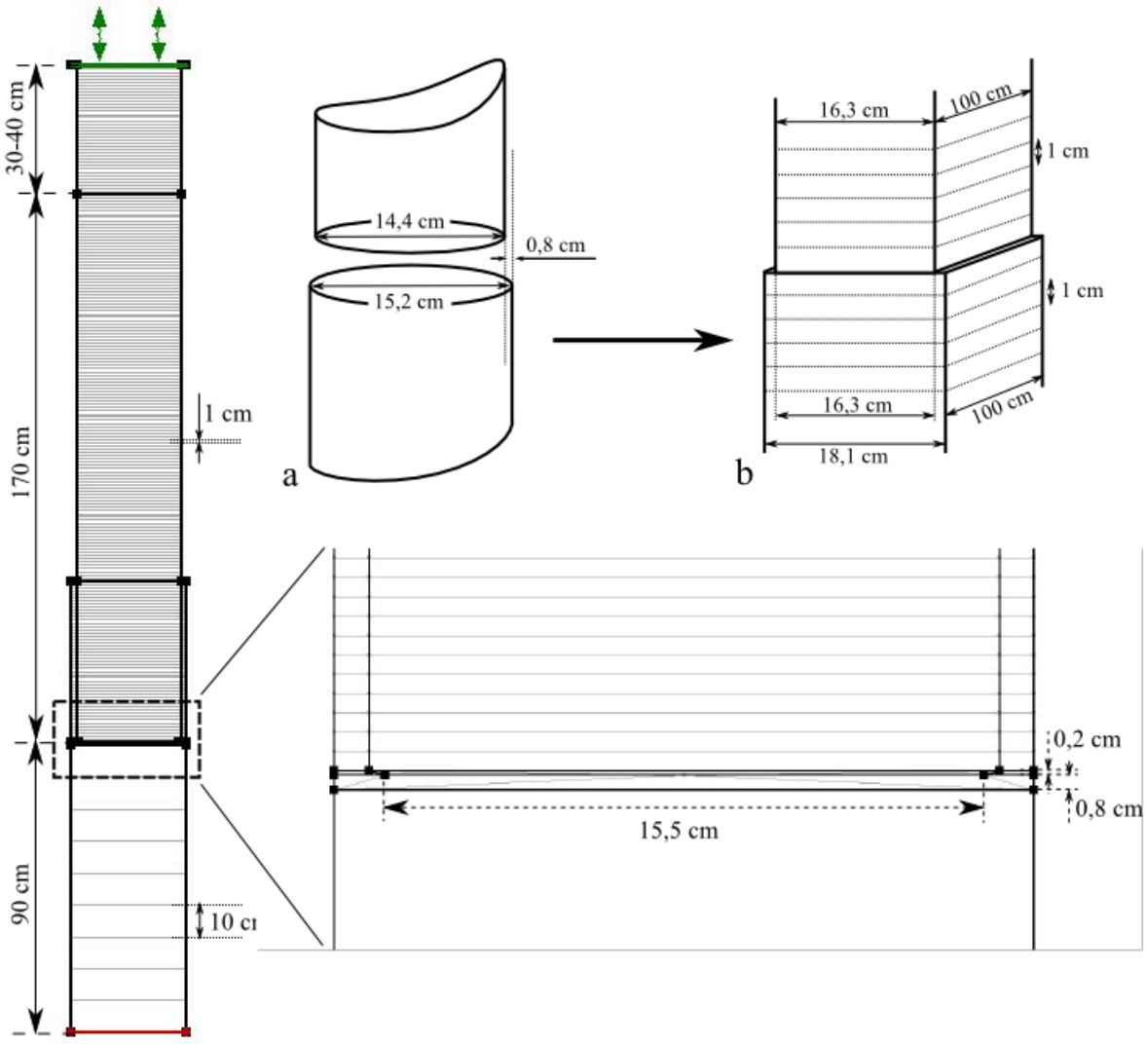


Figure 7.1: Modèle numérique d'une colonne tel que construit dans Vadose/W avec détail de l'interface résidus/céramique ; les schémas a et b montrent la construction expérimentale et la conceptualisation numérique des colonnes

Les essais en petite colonne sont également simulés au moyen du logiciel Vadose/W (figure 7.2). Bien que leur comportement hydrogéologique ait été moins suivi pendant les essais, ces

simulations demeurent nécessaires pour déterminer les conditions frontières à appliquer aux modèles Min3P. En raison du manque de données, les mesures des pressions et des teneurs en eau volumiques dans les petites colonnes ne seront pas employées pour la calibration, mais plutôt pour s'assurer que les ajustements réalisés à partir des résultats dans les grandes colonnes s'appliquent également à des modèles où les conditions frontières sont sensiblement différentes.

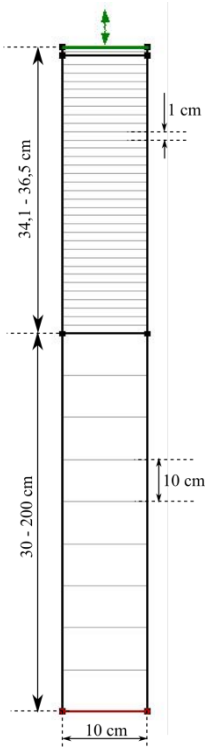


Figure 7.2: Modèle numérique d'une petite colonne dans Vadose/W. L'épaisseur des résidus varie entre 34,1 et 36,5 cm et la succion appliquée est comprise entre -30 cm et -2 m (voir aussi section 3.4)

Pour l'analyse paramétrique et les simulations des conditions de terrain, les modèles numériques sont aussi des modèles 1D (sans variation de diamètre ; les calculs sont accélérés puisqu'on peut supprimer ainsi quelques cellules). En raison de l'augmentation de la taille des modèles (hauteur de plus de 10 mètres), la taille des mailles selon l'axe vertical est fixée à 5 cm. Ces choix seront discutés et justifiés ultérieurement (voir section 7.3).

7.1.2 Paramètres de convergence

La convergence est calculée au moyen de la conductivité hydraulique des points gaussiens (Gauss point conductivity, order of magnitude) avec un nombre maximum d'itérations de 15 (ou 50 pour certains modèles plus complexes) et une tolérance de 0,01%. Le taux de variation de la conductivité hydraulique au cours d'un pas de calcul est fixé à 1,02 (variation maximale de 0,1 et minimale de 10^{-4}). Le solver résout les équations de façon parallèle.

Les pas de temps sont adaptatifs, avec un minimum de 0,0001 seconde et un maximum d'une journée. Ils sont évalués selon le paramètre "Nodal Head" (i.e. la charge de pression aux nœuds) avec une variation maximale acceptable de 2,5%.

Les résultats sont sauvegardés pour chaque jour de la simulation.

7.1.3 Courbes de rétention d'eau initiales et simulation de l'effet d'hystérésis

Les courbes de rétention d'eau des matériaux ont été déterminées en cellule Tempe (voir section 4.5) et par des méthodes prédictives (voir section 2.2.3). Néanmoins, ces résultats ne sont pas forcément représentatifs de ce qui se passe réellement dans les colonnes, notamment en raison des phénomènes d'hystérésis décrits plus tôt (voir sections 5.3 et 5.4). Aussi les résultats de teneurs en eau et de pressions mesurés directement dans les colonnes au cours des essais de mouillage-drainage sont employés pour modifier les CRE et les adapter aux observations de laboratoire.

Malheureusement, certains capteurs n'ont pas donné de résultats exploitables et il s'avère que l'on manque de données dans un certain nombre de cas. Malgré les différences d'indices des vides mesurés dans les matériaux de couverture (voir section 5.1.1), on combine les résultats pour améliorer l'estimation de la courbe de rétention d'eau, et une porosité moyenne unique est choisie. Cette hypothèse semble justifiée par le fait que les couples (teneur en eau - pression) sont presque confondus entre les deux couvertures faites du même matériau (voir figure 7.3).

Les résultats expérimentaux (points) et les courbes préliminaires retenues (droites) sont présentés à la figure 7.3. On y compare également la courbe descriptive obtenue par les essais en cellule Tempe (modèle de van Genuchten (1980)). Les courbes prédictives en mouillage et en drainage ont été obtenues avec le modèle de MK (Maqsoud et al., 2006), mais elles ne sont pas présentées ici pour plus de clarté. Elles sont compilées à l'annexe 7.2. Les courbes en mouillage n'ont été

calculées qu'à titre indicatif, car le modèle a d'abord été développé pour des sables (Maqsoud et al., 2006).

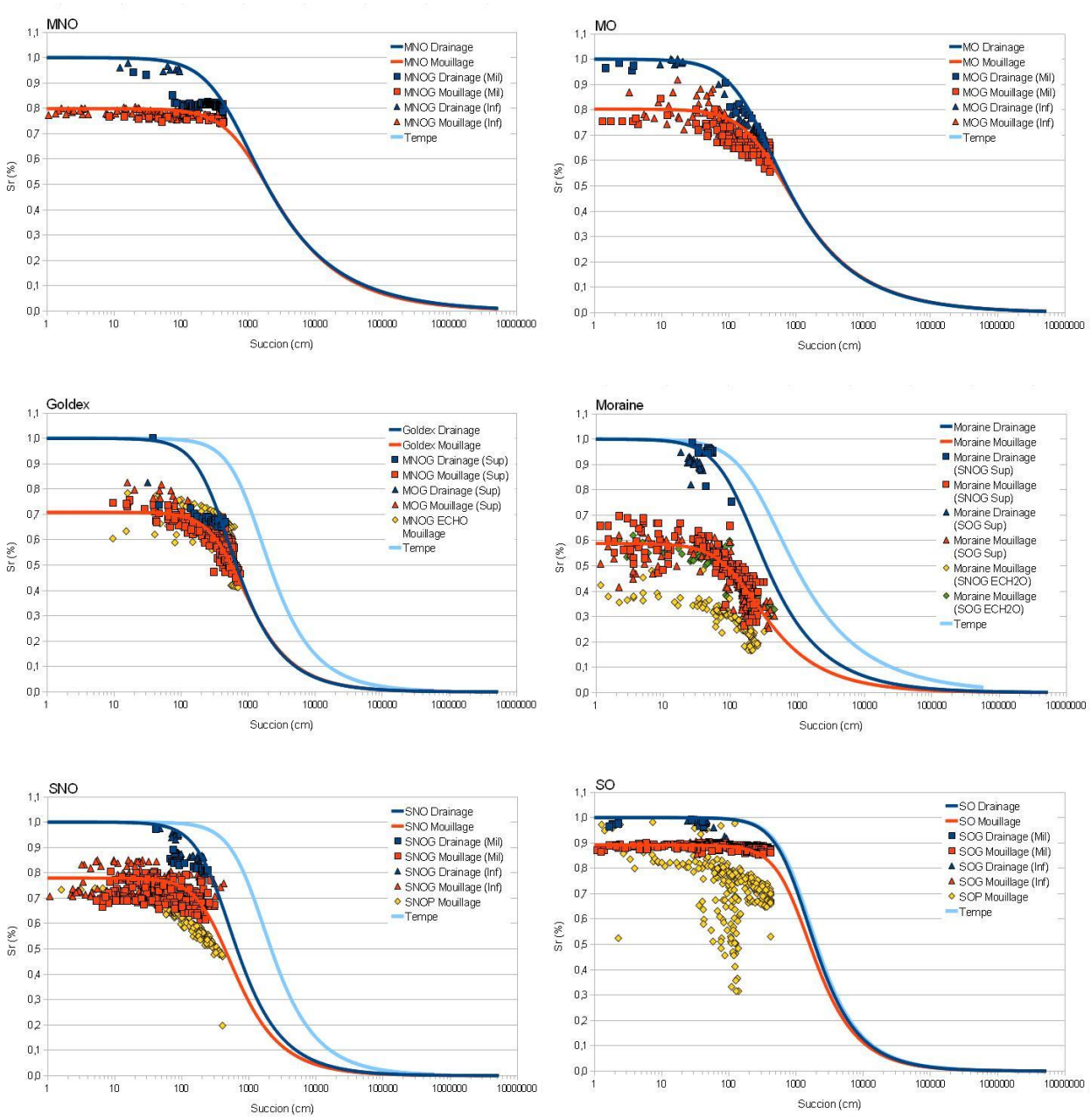


Figure 7.3: Courbes préliminaires de rétention d'eau en mouillage et en drainage, employées dans les premières simulations, et mesures expérimentales dans les colonnes (couples θ-ψ) et dans les cellules Tempe

Le choix de la courbe de rétention d'eau initiale pour chaque matériau nécessite quelques justifications et précisions. Tout d'abord, on utilise l'équation de van Genuchten (1980) pour décrire les CRE des matériaux analysés. Ce choix permet une comparaison entre les résultats des simulations réalisées avec Vadose/W et avec Min3P, lequel n'utilise que le modèle de vG (voir chapitre 8). Cela permet également de bien lisser les courbes dans Vadose/W et d'améliorer la convergence des calculs. On fixe systématiquement la teneur en eau résiduelle $\theta_r = 0$ pour mieux approcher le modèle MK (qui impose une teneur en eau nulle pour des succions supérieures à 10^7 cm ; voir aussi Fredlund et al., 1994). Les courbes en drainage et en mouillage sont ajustées afin qu'elles se rejoignent à des succions élevées de façon à faciliter la transition numérique lors du changement de paramètres dans les simulations. Enfin, on observe parfois (surtout dans le cas de SNOG) une modification progressive de la teneur en eau volumique à satiation θ_{sat} au cours des cycles de mouillage-drainage. Il s'agit possiblement de l'évolution progressive du phénomène d'hystérésis (que l'on remarquait d'ailleurs également à la figure 5.8.b). Ce phénomène ne sera pas pris en compte ici, et on considère uniquement deux courbes : une courbe de rétention d'eau en drainage pour le premier cycle et une courbe de rétention d'eau en mouillage pour tous les cycles suivants (pour la simulation des colonnes).

Les ajustements suivants sont aussi apportés :

- MNO : en raison du manque de données concernant la CRE correspondant au premier cycle (drainage ; points rouges), on choisit la courbe obtenue par les essais en cellule Tempe (les deux courbes sont donc superposées dans le graphique). On observe une variation brusque du degré de saturation au cours du premier cycle : d'abord constant et égal à 1 (ou 100%), S_r diminue rapidement pour rejoindre la courbe en mouillage. Pour la courbe en mouillage (points jaunes), on observe un plateau correspondant à l'état de satiation des résidus (S_{rmax}). L'inflexion de la CRE n'est cependant pas très nette, et on ne dispose d'information que sur le début de la courbe. L'ajustement est donc principalement basé sur θ_{sat}, et les paramètres α_{vG} et n_{vG} du modèle de van Genuchten (1980) sont ajustés visuellement à partir des paramètres de la courbe en drainage ;
- MO : la courbe obtenue par les essais en cellule Tempe suit relativement bien les valeurs mesurées dans la colonne lors de la désaturation au premier cycle : les mêmes paramètres sont donc employés. Pour les cycles en mouillage les points semblent rejoindre ceux de la

courbe en drainage pour les succions plus élevées. Le paramètre n_{vG} (influençant la pente) de la courbe en mouillage est donc le même que pour la courbe en drainage, et α_{vG} est modifié pour suivre au mieux les résultats expérimentaux (cycles 2 et suivants) ;

- Goldex : les données au premier cycle sont trop incomplètes pour définir une courbe en drainage représentative. On se base donc sur les résultats en mouillage pour lesquels les paramètres sont définis au moyen d'un ajustement de la CRE par RETC (van Genuchten et al., 1991). La pente est légèrement modifiée pour mieux reproduire les résultats obtenus en cellule Tempe. Les mêmes paramètres sont employés pour la détermination de la CRE en drainage en ajustant θ_{sat} et α_{vG}. On dispose également des données des sondes ECH2O. Bien que celles-ci ne puissent pas être directement utilisées pour calibrer la CRE, en raison de la distance (une vingtaine de centimètres) entre la sonde et le capteur de pression, elles peuvent néanmoins donner une indication de l'allure de la CRE (notamment la pente qui est liée à n_{vG}) ;
- Moraine : la moraine présente l'effet d'hystérésis le plus marqué parmi tous les matériaux étudiés. Ici, le degré de saturation S_r ne dépasse pas 60% en mouillage. On note que le comportement de la moraine dans les colonnes SNOG et SOG, pourtant compactée à des indices des vides légèrement différents, n'est pas vraiment distinguable. Par la suite, on ne considère donc qu'un seul matériau "moraine". L'ajustement de la courbe en mouillage se fait ici au moyen du logiciel RETC avec le modèle de van Genuchten (1980). Comme précédemment, les mesures des sondes ECH2O permettent de confirmer l'allure générale de la courbe mais ne peuvent pas être employés directement en raison de la distance entre les capteurs. La courbe en drainage est obtenue en reprenant les mêmes paramètres α_{vG} et n_{vG}, et en modifiant la teneur en eau maximale (qui est prise égale à la porosité, $\theta_{sat} = n$) ;
- SNO et SO : pour la courbe de drainage et de mouillage, on emploie le paramètre n_{vG} obtenu pour les mesures en cellule Tempe, et on ajuste les paramètres α_{vG} et θ_{sat} des courbes. Le paramètre α_{vG} est identique dans les courbes en drainage et en mouillage. Pour les deux matériaux, les données des petites colonnes sont également disponibles, mais comme pour les sondes ECH2O, la distance entre la sonde TDR et le tensiomètre ne permet pas de les employer directement pour calibrer la CRE. Ces données permettent cependant de confirmer l'allure générale des courbes décrites précédemment. Dans le cas

de SNO, la pente obtenue pour les résultats en petite colonne semble plus faible que celle obtenue dans les grandes colonnes.

Le tableau 7.1 reprend les paramètres des courbes de rétention préliminaires de chaque matériau tels qu'ils ont été entrés dans les modèles numériques. Ces courbes de rétentions d'eau sont employées pour réaliser les premières simulations préliminaires des essais en colonne. En fonction des résultats, comparés à la fois aux mesures réalisées au cours des essais et aux profils de teneurs en eau mesurés au démontage des colonnes, une calibration plus précise peut être réalisée. Les modifications apportées à la courbe de rétention d'eau sont alors les plus légères possibles (voir plus loin pour plus de détails).

Tableau 7.1: Paramètres du modèle de van Genuchten (1980) pour les courbes de rétention d'eau en mouillage et en drainage (valeurs préliminaires)

Matériaux	Porosité n (-)		θ_{sat} (-)	θ_r (-)	α_{vG} (m^{-1})	n_{vG} (-)
MNO	0,438	Drainage	0,438	0,000	0,207	1,48
		Mouillage	0,350	0,000	0,110	1,52
MO	0,401	Drainage	0,401	0,000	0,477	1,52
		Mouillage	0,322	0,000	0,300	1,52
Goldex	0,422	Drainage	0,422	0,000	0,300	1,84
		Mouillage	0,299	0,000	0,190	1,84
SNO	0,346	Drainage	0,346	0,000	0,300	1,85
		Mouillage	0,270	0,000	0,300	1,85
SO	0,359	Drainage	0,359	0,000	0,100	1,90
		Mouillage	0,320	0,000	0,100	1,90
Moraine	0,357	Drainage	0,357	0,000	0,785	1,63
		Mouillage	0,210	0,000	0,785	1,63

En raison du temps de retard dans les mesures de la succion (telle que mentionné, la bougie de céramique employée avec les tensiomètres et le milieu environnant, peu perméables, induisent un certain délai dans les mesures de pression), il est probable que les CRE déterminées ici tendent à sous-estimer l'AEV des matériaux étudiés. La calibration des résultats, notamment grâce aux

profils du degré de saturation au démontage, vise à corriger ces erreurs (du moins en partie). Rappelons également qu'il existe une certaine incertitude sur les mesures de θ_w (voir calibration des senseurs à la section 3.3.3.2).

L'hystérésis n'est pas prise en compte dans Vadose/W. Pour simuler ce phénomène, on change manuellement les propriétés des matériaux aux cours des calculs (après le premier cycle). Ainsi, les simulations au premier cycle sont réalisées avec les courbes de rétention d'eau en drainage, et les courbes de rétention en mouillage sont utilisées au cours des cycles suivants.

La définition de la porosité et de θ_{sat} ne sont pas séparées dans Vadose, ce qui signifie que même si les teneurs en eau sont correctes, le calcul du degré de saturation peut être erroné (car la porosité n est considérée égale à θ_{sat}). Ceci limite la représentativité des calculs de flux d'oxygène dans les colonnes avec Vadose/W (voir aussi section 7.1.8), qui sont typiquement sous-estimés par rapport aux valeurs basées sur S_r réel.

7.1.4 Fonctions de perméabilité initiales

La détermination des fonctions de perméabilité se fait par méthode prédictive en employant les courbes de rétention d'eau décrites plus haut (en mouillage et en drainage), les valeurs de la conductivité hydraulique saturée déterminées aux chapitres 5 et 6 (tableaux 5.2 et 6.2) et le modèle de Mualem (1976) - van Genuchten (1980).

On fait ici l'hypothèse que, malgré le phénomène d'hystérésis observé, qui induit une différence de degré de saturation S_r entre les cycles de mouillage et de drainage, la conductivité hydraulique à satiation des matériaux demeure la même ($k(S_{rmax}) = k_{sat}$). On suppose ainsi implicitement que les pores qui ne se remplissent pas d'eau au mouillage ne se trouvent pas sur le chemin de l'écoulement et n'influent donc pas (ou peu) sur la vitesse d'écoulement.

Par ailleurs, on impose une limite inférieure aux conductivités hydrauliques à 10^{-14} m/s (voir notamment Fredlund et al., 1994, Mbonimpa et al., 2006). Ce choix, basé en partie sur des observations expérimentales, permet d'éviter des problèmes numériques dans certains calculs.

Les fonctions de perméabilité pourront être, comme les courbes de rétention d'eau, modifiées et calibrées pour mieux reproduire numériquement les résultats de laboratoire.

Pour prendre en compte le phénomène d'hystérésis, on emploie les courbes de perméabilité de la même façon que les CRE, à savoir qu'on change les paramètres des matériaux au cours des calculs (au début du cycle 2 dans les simulations des essais en colonne).

Les fonctions de perméabilité préliminaires sont présentées à la figure 7.6 (plus loin).

7.1.5 Conditions initiales

Pour établir les conditions initiales dans les simulations des essais de laboratoire, on applique un niveau de nappe constant (u = 0m) au sommet des colonnes (régime permanent sans écoulement ; les résidus sont saturés). Pour l'étude paramétrique et les simulations des conditions de terrain, on impose une profondeur de nappe constante (la même que dans le reste des calculs) en régime stationnaire, sans écoulement et sans évaporation.

La température initiale est fixée à 20°C pour les simulations des essais en colonne (et à 10°C pour les simulations des conditions de terrain). Lorsque les flux d'oxygène sont calculés dans les simulations, on applique une condition frontière atmosphérique ($[O2]_i$ = constante = 276 g/m^3) au sommet des modèles numériques.

7.1.6 Conditions frontières supérieures et données climatiques

Au sommet de la colonne, on applique une condition frontière de type « climatique ». Les paramètres sont ceux mesurés au cours de l'expérience au moyen du capteur de température et d'humidité relative installé près du sommet des colonnes. Les mesures ayant été prises chaque heure, on est en mesure de déterminer les minimums et maximums journaliers des températures et de l'humidité relative (figure 5.3). La variation sur 24h est supposée être de forme sinusoïdale (choix paraissant le plus réaliste). La vitesse du vent est considérée nulle en tout temps.

Dans les simulations, on permet l'accumulation d'eau au sommet des colonnes. L'ajout d'eau est simulé comme une précipitation d'une heure (en d'autres termes, il pleut 10 cm d'eau en 1 heure). Le choix de la durée des précipitations est flexible et vise ici à minimiser le temps que prend l'adjonction d'eau dans les simulations (au laboratoire, l'ajout d'eau est réalisé en quelques minutes).

L'évaporation peut-être imposée ou calculée automatiquement par le logiciel. Les mesures au laboratoire indiquent une moyenne d'environ 1,76 mm/jour ; dans le cadre d'autres études

réalisées au laboratoire, des valeurs de 2,5 mm/j (Ouangrawa, 2007) ou comprises entre 1,5 et 2,5 mm/j (Aachib, 1997) ont été mesurées. Le code Vadose estime quant à lui l'évaporation potentielle à environ 2,6 mm/j à partir des mesures de température et d'humidité au laboratoire.

Pour les simulations des essais en grande colonne, on laisse Vadose calculer l'évaporation à partir des données climatiques mesurées au laboratoire. On reviendra sur cette hypothèse dans le chapitre sur l'analyse de sensibilité (voir sections 7.3.2 et 7.3.4).

Pour les petites colonnes, en raison des dimensions réduites des modèles et des risques d'influences mutuelles des conditions frontières (c'est-à-dire que l'évaporation pourrait modifier la condition frontière inférieure), on impose la valeur du flux d'évaporation potentielle ETP (voir section 7.2.2 pour plus de détails).

Pour l'étude paramétrique, on s'appuie sur des données climatiques simplifiées, où les paramètres sont constants et égaux aux moyennes des variations annuelles dans le laboratoire. On cherche à simplifier les modèles pour permettre une analyse relativement rapide des comportements et une meilleure comparaison des paramètres testés.

Pour les modèles de terrain enfin, on s'appuie sur les données fournies par Environnement Canada à partir de l'été 2007 et mesurées sur l'aéroport de Val d'Or. Les données compilées sur une année sont reproduites cycliquement. On considère également des années "sèches" où l'on impose des précipitations nulles pendant les deux mois d'été (juillet et août). La figure 7.4 présente les variations de la température, de l'humidité relative, de la vitesse du vent ainsi que les précipitations pour une année normale (précipitations annuelles = 844 mm/an) et une année sèche (630 mm/an) basées sur les données d'Environnement Canada.

7.1.7 Conditions frontières inférieures

Les conditions frontières inférieures sont généralement imposées en fixant la pression d'eau à la base des colonnes (i.e. le niveau de nappe ou u= 0 m).

Expérimentalement, le tube en U, qui sert à contrôler le niveau de nappe, demeure saturé tout au long de l'essai. En simulant les colonnes selon les conditions climatiques du laboratoire, on constate qu'un débit d'eau non négligeable remonte à travers les résidus pour compenser les pertes d'eau liées à l'évaporation. Les succions et les teneurs en eau volumiques atteignent alors des valeurs plus élevées que celles mesurées (voir aussi section 7.3.3).

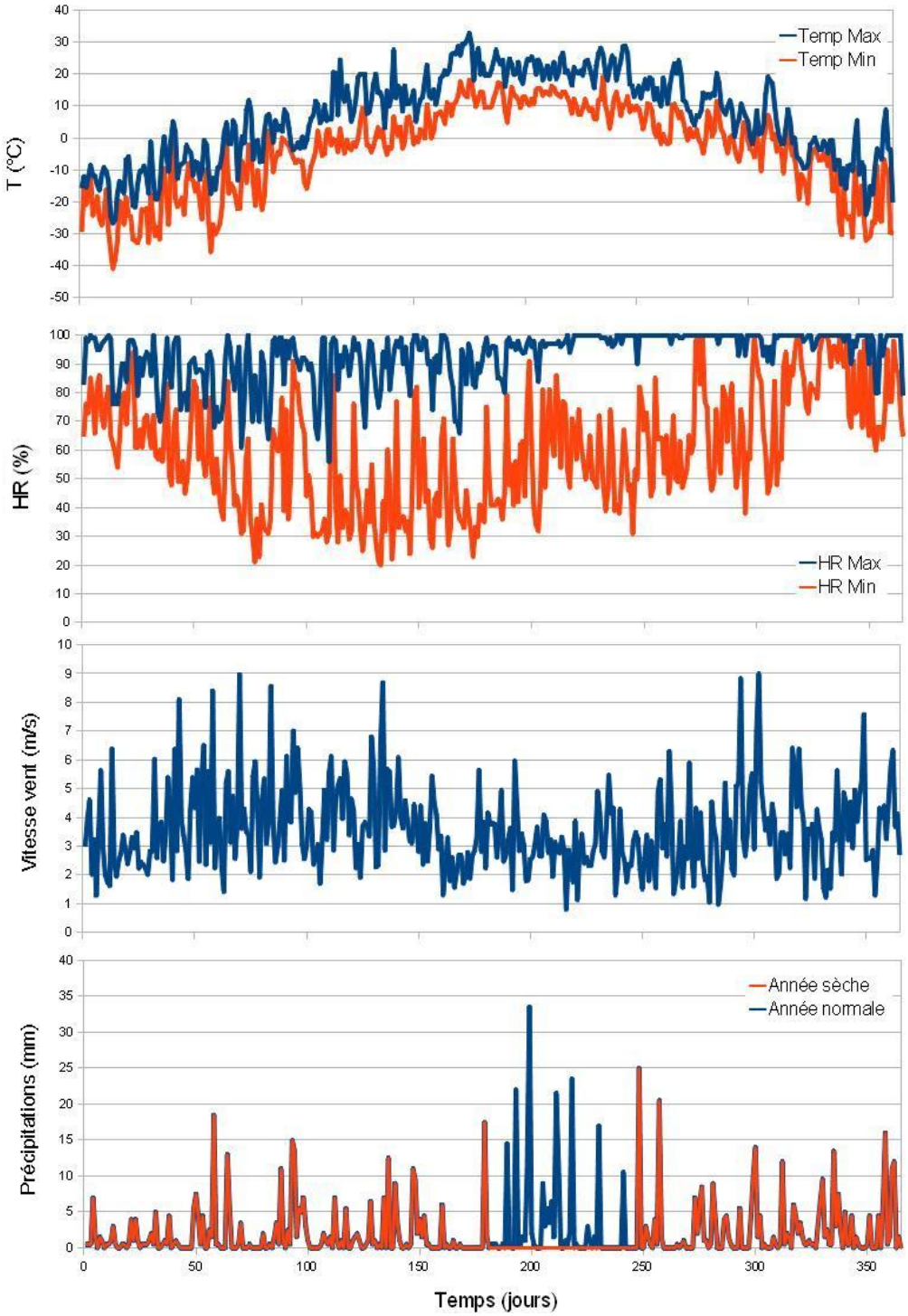


Figure 7.4: Conditions climatiques (températures maximales et minimales, humidités relatives maximales et minimales, vitesses des rafales du vent et précipitations) utilisées dans les simulations des conditions de terrain pour une année typique et une année sèche (données d'Environnement Canada pour Val d'Or)

Pour corriger ce problème, on impose une charge h de -0,9 m ±0,001 m à la base des grandes colonnes (z = -0,9 m). Par défaut, Vadose/W impose un débit nul lorsque la charge est inférieure à l'élévation (h < z). En d'autres termes, lorsque l'eau sort à la base de la colonne (écoulement négatif), la charge est fixée à h_1 = -0,899 m, et l'eau peut s'écouler. Lorsque l'écoulement devient positif (écoulement vers le haut), indiquant une réalimentation des résidus dans la colonne, on applique une charge h_2 = -0,901 m. La succion imposée dans les colonnes demeure ainsi réaliste, et on empêche une remontée d'eau trop marquée dans les résidus.

La détermination des temps de basculement de la charge h_1 à h_2 (et inversement) se fait automatiquement au moyen d'une fonction add-in (Geostudio SDK) spécialement développée pour cet usage (voir annexe 7.3).

Dans le cas où l'on souhaite modéliser un cas réel de terrain, ces contraintes ne sont plus de mises : la nappe permet de maintenir un degré de saturation en équilibre avec les différentes succions appliquées (impliquant l'évaporation).

Des simulations ont été réalisées en imposant les débits mesurés expérimentalement (voir section 5.1.5) comme condition frontière inférieure. Ces tests se sont avérés non concluants. Les valeurs de pressions et de teneurs en eau étaient irréalistes, et d'importants problèmes de convergence ont été rencontrés. Il n'est pas certain que le code Vadose/W puisse correctement estimer les débits de sortie (voir aussi discussion à la section 7.2.1).

7.1.8 Autres paramètres du modèle

Vadose intègre un module de calcul des flux d'oxygène. Au cours de ce projet, des travaux conjoints avec l'équipe de développement du logiciel (Geoslope Inc.) ont permis de corriger une déficience du modèle (jusqu'ici incorrect). La nouvelle version du logiciel (7.18) prend en compte la constante du taux de réaction K_r et corrige les paramètres des lois de Fick en fonction de la teneur en eau volumique équivalente θ_{eq} (ce qui n'était pas le cas auparavant).

La méthode employée ici pour simuler le phénomène d'hystérésis donne de bons résultats quant aux teneurs en eau. Toutefois, le degré de saturation est faussé par le fait que Vadose assimile teneur en eau saturée (ou à satiation, θ_{sat}) et porosité. Ceci fait que les matériaux peuvent se resaturer complètement à chaque cycle de mouillage (ce qui n'est pas observé en pratique). Cette saturation complète diminue la porosité à l'air et donc par la même occasion le coefficient de

diffusion effectif D_e de l'oxygène dans la colonne. Pour cette raison, les flux d'oxygène estimés par Vadose/W ne sont généralement pas réalistes en conditions transitoires dans les simulations des essais en colonne.

Dans les simulations des recouvrements alternatifs, les courbes de rétention d'eau en drainage seront employées dans les couvertures, ce qui permettra d'évaluer correctement les degrés de saturation. Dans ces cas, le calcul des flux d'oxygène sera inclus dans les simulations avec Vadose. Ces résultats permettront de comparer l'efficacité des différentes couvertures analysées.

7.2 Calibration et validation des modèles numériques

La première étape du travail de modélisation numérique consiste à comparer les résultats des simulations et ceux obtenus dans les essais de laboratoire et à évaluer si le logiciel permet d'obtenir des résultats similaires. Au besoin, il est possible de modifier le modèle conceptuel, les conditions frontières ou les paramètres d'entrée pour reproduire des phénomènes qui ne sont pas pris en compte par le code (Vadose/W). Dans ce cas, le paramètre sur lequel règne la plus grande incertitude est la courbe de rétention d'eau (et la fonction de perméabilité) de chaque matériau. Comme constaté (voir section 7.1.3), un certain nombre d'hypothèses ont dû être posées pour obtenir les CRE qui ont permis de réaliser les simulations préliminaires. Par conséquent, c'est avant tout ce paramètre qui sera ajusté si nécessaire, sur la base des données expérimentales. Dans tous les cas, les modifications les plus légères possibles seront apportées.

Les sources d'information pour évaluer les CRE sont au nombre de six, soient (classées par ordre d'importance croissante) :

- caractérisation de base en laboratoire et modèles prédictifs de la CRE et de la fonction de perméabilité ;
- essais en cellule Tempe et ajustement de la CRE sur les points expérimentaux ;
- couples teneurs en eau volumiques/pressions mesurés dans les colonnes au cours des essais de drainage ;
- variations des pressions (positives ou négatives) mesurées dans les colonnes au cours du temps ;
- variations des teneurs en eau dans les colonnes au cours du temps ;

- teneurs en eau volumiques mesurées au démontage des colonnes.

L'objectif est d'abord de reproduire le profil de teneurs en eau final et la variation des teneurs en eau et pressions au cours du temps, tout en restant le plus près possible des autres mesures et modèles prédictifs.

Un un modèle doit également être validé. Cette étape consiste à vérifier que le modèle est en accord avec les équations analytiques et qu'il est en mesure de reproduire des problèmes simples ou bien documentés (Chapuis et al., 2001). Dans ce cas, les logiciels employés ont déjà fait l'objet de validations antérieures dans le cadre d'autres projets (notamment Gosselin (2007) et Pabst (2008) pour Vadose et Ouangrawa (2009) pour Min3P).

7.2.1 Essais en grandes colonnes

7.2.1.1 Ajustement de certains paramètres

Les premiers modèles, réalisés avec les paramètres initiaux présentés plus haut, ont généralement donné des résultats relativement proches des mesures expérimentales. Néanmoins, afin d'améliorer la représentativité des modèles, quelques modifications ont été apportées aux courbes de rétention d'eau et aux fonctions de perméabilité.

De façon générale, si le profil de teneur en eau simulé diffère des valeurs au démontage, on modifie les paramètres θ_{sat} (teneur en eau de satiation), α_{vG} et n_{vG} de la CRE. Si les variations du degré de saturation ou de la pression et les débits de sortie simulés sont trop rapides ou trop lents, on modifie la valeur de la conductivité hydraulique saturée k_{sat}. Ce dernier paramètre influe également sur la durée du plateau visible sur les courbes du degré de saturation et de pression au début de chaque cycle.

Avec ces modifications, on compare les teneurs en eau mesurées au démontage des colonnes à différentes élévations et les profils simulés à la fin de chaque cycle. Considérant la bonne répétabilité des mesures de teneur en eau dans les colonnes, on fait l'hypothèse que le profil du degré de saturation dans les colonnes à la fin de chaque cycle est pratiquement le même.

Les variations du degré de saturation et de la pression au cours du temps permettent également d'ajuster les valeurs extrêmes (i.e. les teneurs en eau et pressions maximales et minimales).

Finalement, après ces modifications relativement mineures, on obtient des résultats de simulation très proches des valeurs expérimentales. Les courbes de rétentions d'eau finales sont présentées à la figure 7.5. Les paramètres de van Genuchten de ces courbes sont regroupées dans le tableau 7.2 et comparés aux paramètres des courbes initiales (ou préliminaires). On présente également dans ce tableau les valeurs calibrées des conductivités hydrauliques saturées. Enfin, on présente les fonctions de perméabilité initiales et finales (avec hystérésis) à la figure 7.6.

La figure 7.7 présente la comparaison des résultats expérimentaux (valeurs de teneur en eau au démontage) avec les profils modélisés à la fin de chaque cycle.

Tableau 7.2: Paramètres du modèle de van Genuchten (1980) pour les courbes de rétention d'eau, en mouillage et en drainage, et valeurs de la conductivité hydraulique saturée des matériaux utilisés dans les modélisations après calibration. Entre parenthèses : modifications par rapport aux paramètres initiaux

		θ_{sat} (-)	S_{rmax}	α_{vG} (m^{-1})	n_{vG} (-)	k_{sat} (m/s)
MNO	Drainage	0,438 (-)	1,00	0,055 (-0,152)	1,52 (+0,04)	$8{,}8.10^{-8}$ (x0.15)
	Mouillage	0,345 (-0,005)	0,79	0,035 (-0,075)	1,52 (-)	
MO	Drainage	0,401 (-)	1,00	0,400 (-0,077)	1,60 (+0,08)	$5{,}0.10^{-7}$ (x0.45)
	Mouillage	0,350 (-0,028)	0,87	0,300 (-)	1,60 (+0,08)	
Goldex	Drainage	0,422 (-)	1,00	0,175 (-0,125)	1,84 (-)	$1{,}0.10^{-7}$ (x0.13)
	Mouillage	0,320 (+0,021)	0,76	0,125 (-0,065)	1,90 (+0,06)	
SNO	Drainage	0,346 (-)	1,00	0,300 (-)	1,35 (-0,50)	$1{,}0.10^{-7}$ (x0.25)
	Mouillage	0,280 (+0,010)	0,81	0,175 (-0,125)	1,35 (-0,50)	
SO	Drainage	0,359 (-)	1,00	0,100 (-)	1,90 (-)	$4{,}0.10^{-8}$ (x0.21)
	Mouillage	0,320 (-)	0,89	0,100 (-)	1,90 (-)	
Moraine	Drainage	0,357 (-)	1,00	0,785 (-)	1,63 (-)	$6{,}0.10^{-7}$ (x0.20)
	Mouillage	0,210 (-)	0,59	0,400 (-0,285)	1,63 (-)	

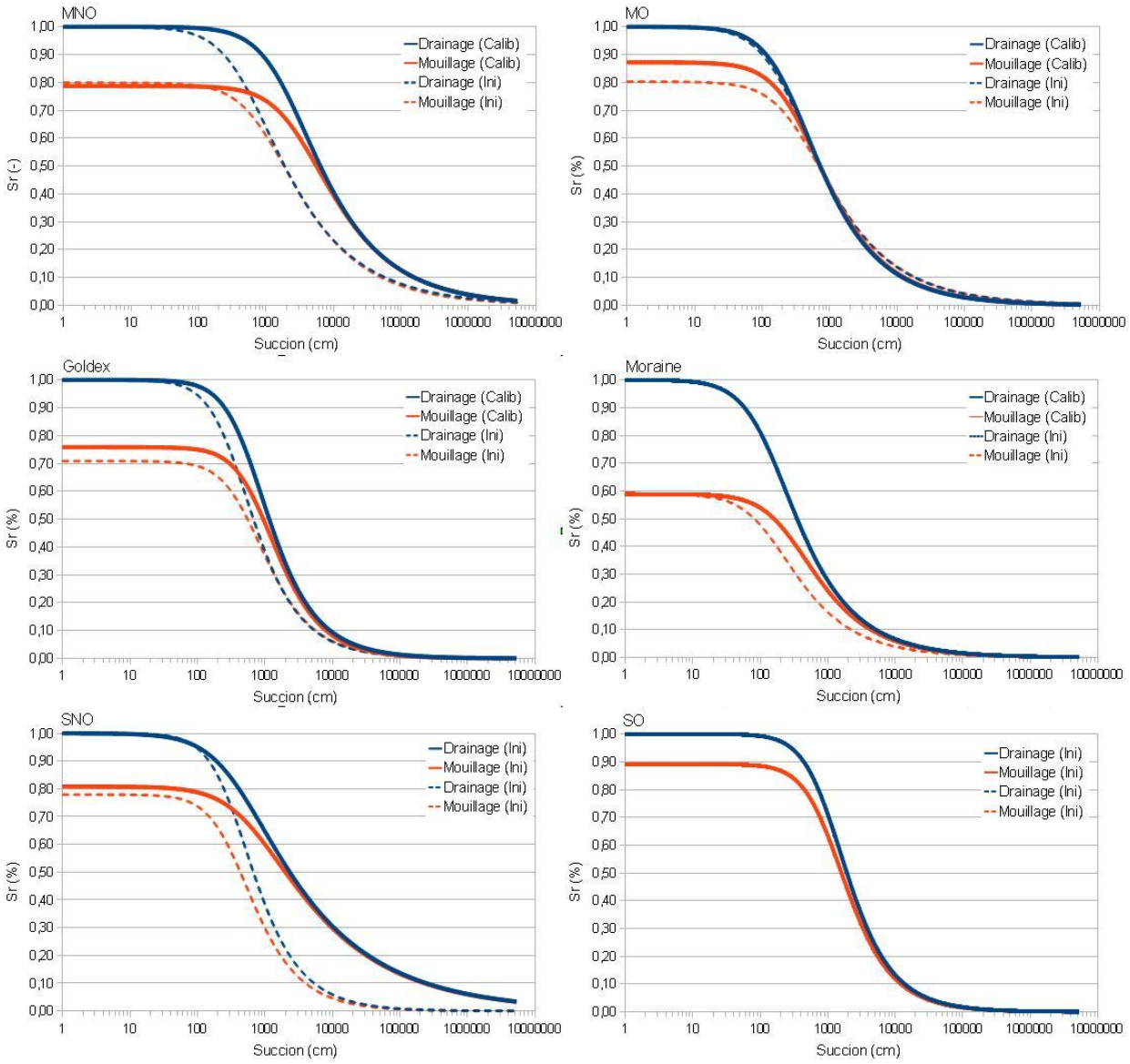


Figure 7.5: Courbes de rétention d'eau en mouillage et en drainage, calibrées à partir des mesures expérimentales dans les essais en grandes colonnes (traits pleins) ; courbes initiales (tiretés)

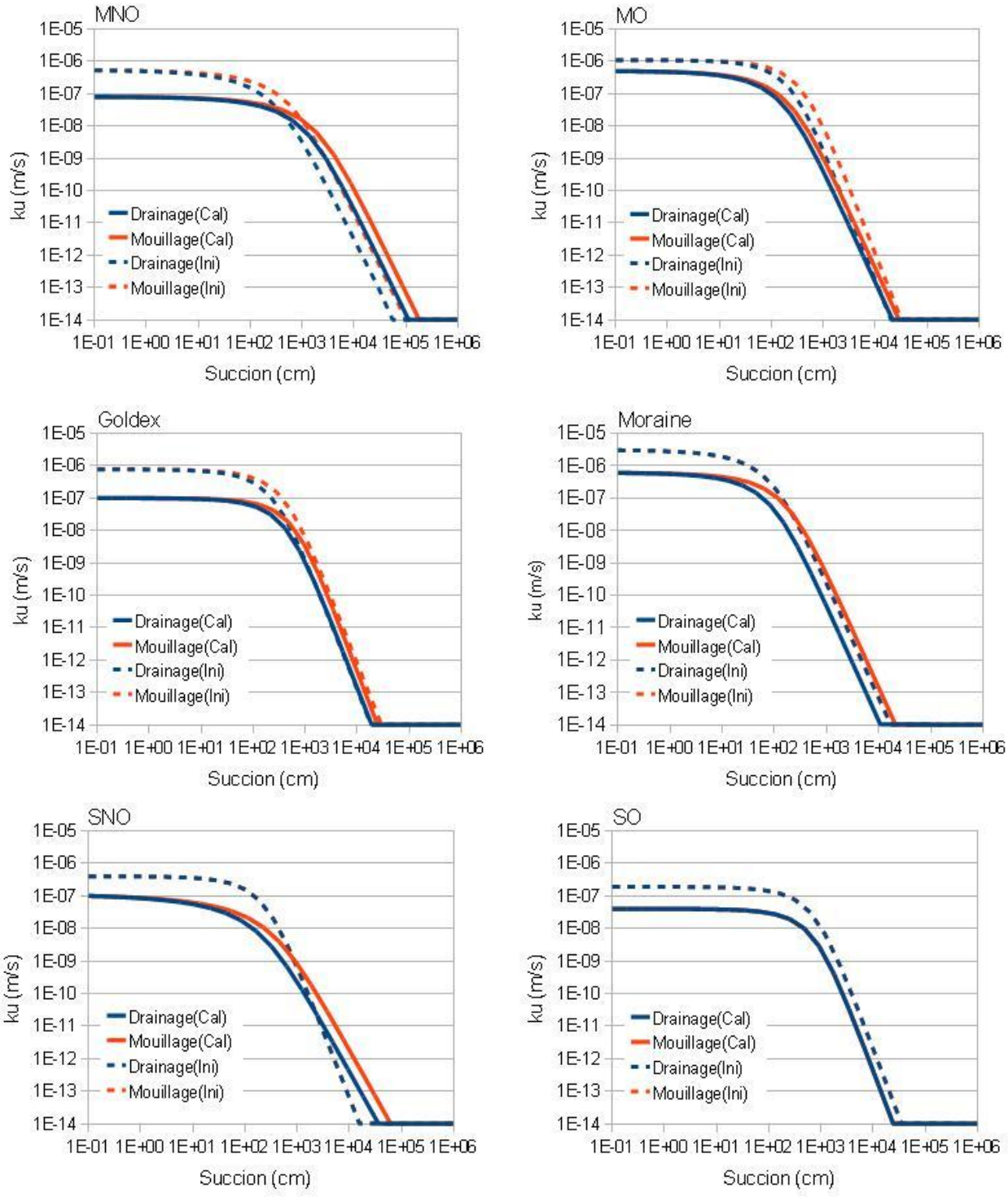


Figure 7.6: Fonctions de perméabilité en mouillage et en drainage initiales (tiretés) et après calibration (traits pleins)

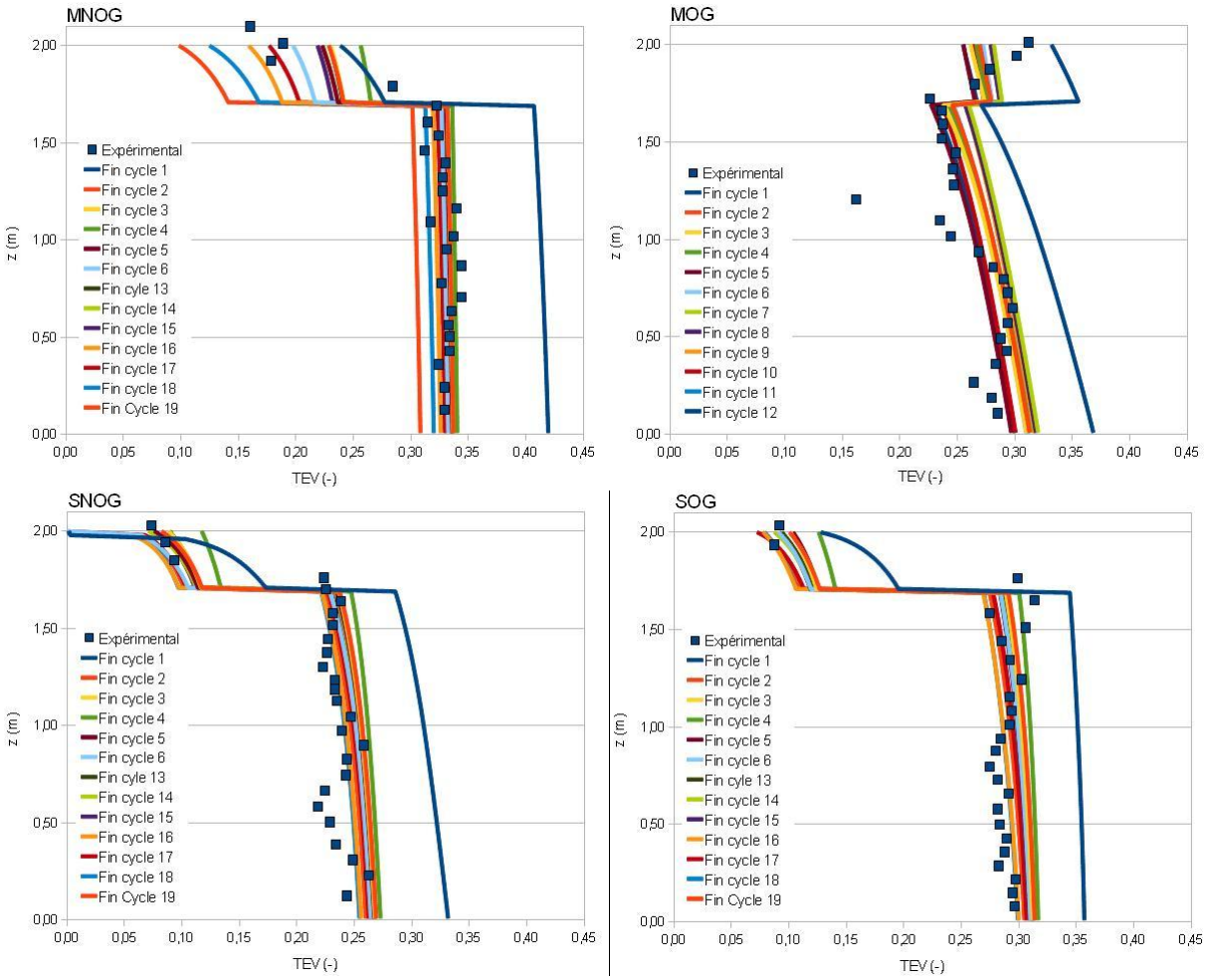


Figure 7.7: Teneurs en eau volumiques mesurées au démontage (points) et profils simulés avec Vadose à la fin de certains cycles (lignes)

Les résultats présentés au tableau 7.2 permettent de confirmer que les courbes de rétention d'eau n'ont subi que des modifications mineures au cours de la calibration. La plupart des teneurs en eau à satiation θ_{sat} n'ont pas été modifiées ou alors elles ont été augmentées ou diminuées de 2,8% au maximum. Les valeurs du paramètre n_{vG} ont également été peu modifiées (généralement augmentées, sauf pour les résidus SNO). Les variations sont inférieures à 0,08, soit moins de 5% de la valeur de n_{vG}. Dans le cas de SNO, le changement est plus important afin de mieux représenter les tendances observées avec les résultats des petites colonnes (pente plus faible). Les modifications apportées au paramètre α_{vG} (associé à la pression d'entrée d'air) sont plus importantes et peuvent atteindre 0,285 et donc dépasser 75% de la valeur initiale. On constate également que les valeurs initiales étaient presque toutes surestimées par rapport aux valeurs

calibrées. On explique ces différences par deux raisons. La première est que l'estimation du paramètre α_{vG} dans les CRE initiales a été rendue difficile en raison du manque de donnée sur la position du point d'inflexion de la teneur en eau (on ne dispose souvent que du début de la courbe de désaturation). La seconde est que les capteurs de pressions présentent un certain temps de retard en raison de la faible conductivité hydraulique de la bougie de céramique employée dans le montage et des matériaux eux-mêmes. Par conséquent, les CRE obtenues grâce aux couples teneurs en eau - succion tendent à sous-estimer l'AEV et à surestimer le paramètre α_{vG}. Les mesures de teneurs en eau au démontage ont permis de corriger ces résultats.

On constate également sur la figure 7.6 que les modifications apportées aux fonctions de perméabilité sont relativement limitées dans la plupart des cas. Les valeurs de k_{sat} sont divisées par 4 en général (au maximum par 7) et les fonctions de perméabilité initiales et calibrées sont distantes de moins d'un ordre de grandeur. On constate également que les conductivités hydrauliques saturées k_{sat} estimées initialement semblent systématiquement avoir été surestimées. Les valeurs plus faibles obtenues par calibration pourraient s'expliquer par l'effet de l'hystérésis sur l'écoulement. La valeur de la conductivité hydraulique des céramiques placées à la base des colonnes n'a pas été modifiée ici, mais qu'elle pourrait elle aussi avoir été surestimée.

On peut remarquer à la figure 7.7 que :

- les profils de teneurs en eau simulés suivent assez bien les mesures de teneurs en eau réalisées au démontage des colonnes, en particulier dans les résidus. Sachant que les valeurs de teneurs en eau se reproduisent bien d'un cycle à l'autre (voir section 5.3), on présente certaines courbes obtenues à la fin de quelques cycles dans les simulations. Le fuseau des profils englobe la plupart des mesures. Les différences entre chacun des profils simulés sont généralement inférieures à 3% (en dehors du premier cycle) ;
- les profils simulés donnent des valeurs de teneurs en eau globalement similaires aux valeurs mesurées dans les couvertures. Dans le cas de MNOG, les teneurs en eau simulées dans la couverture semblent plus variables que dans les résidus d'un cycle à l'autre. On peut expliquer ces différences par le rôle très important de l'évaporation dans les simulations (voir 7.2.3 pour plus de détails).

7.2.1.2 Résultats avec paramètres ajustés

Une fois la calibration effectuée, les variations des teneurs en eau (ou des degrés de saturation) et des pressions d'eau au cours du temps ont été comparées pour les trois couples de capteurs installés sur chacune des colonnes. On présente les résultats pour les capteurs MNOG Sup aux figures 7.8 et 7.9. Les débits mesurés et modélisés sont également comparés à la figure 7.10. En raison du nombre important de résultats, et parce qu'ils sont tous assez semblables, seules ces courbes seront présentées ici. Tous les résultats sont présentés à l'annexe 7.4.

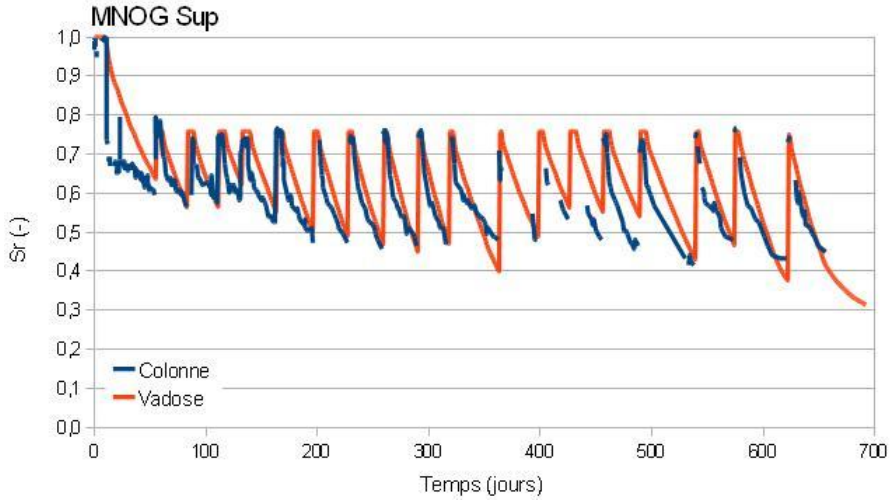


Figure 7.8: Variation des degrés de saturation (mesurés et simulés) dans la colonne MNOG, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture

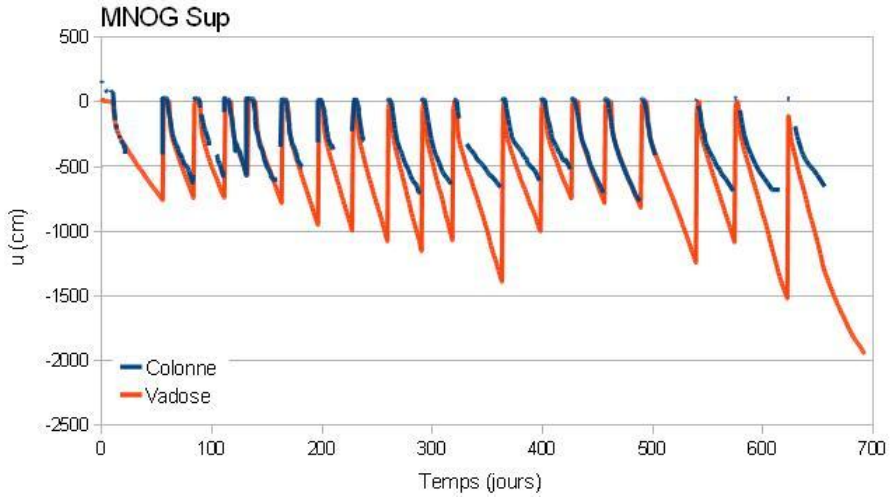


Figure 7.9: Variation des pressions d'eau (mesurées et simulées) dans la colonne MNOG, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture

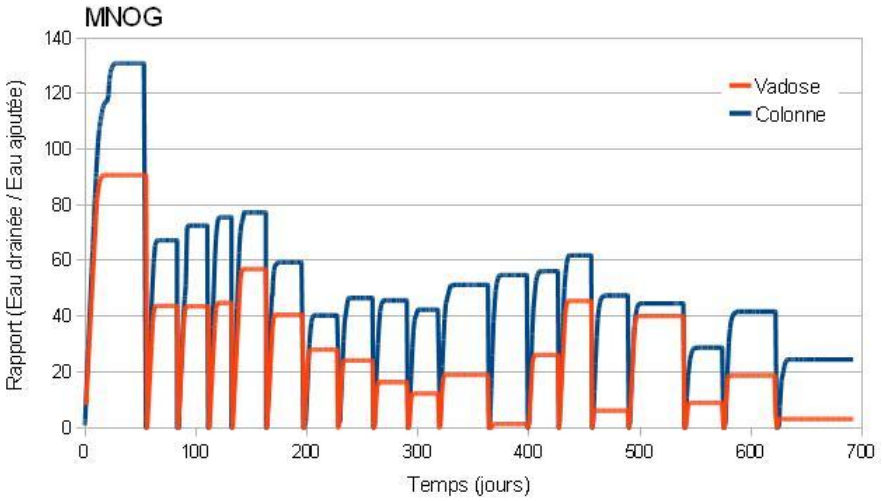


Figure 7.10: Rapport des débits sortants mesurés et simulés dans la colonne MNOG (rapports eau drainée/eau ajoutée à chaque cycle)

On constate aux figures 7.8 et 7.9 (ainsi que sur celles présentées en annexe) que :

- les variations du degré de saturation S_r au cours du temps sont globalement bien reproduites. On note au début de chaque cycle la présence d'un pic lié à l'ajout d'eau au sommet de la colonne, puis la décroissance du degré de saturation au cours du temps. Le palier au début de chaque cycle est bien simulé ainsi que les pentes des courbes. Les valeurs du degré de saturation mesuré et simulé en fin de cycles sont généralement proches (± 0,05). Comme observé dans certains profils de teneur en eau (voir figure 7.7), le degré de saturation simulé pour le dernier cycle semble atteindre des valeurs plus faibles que celles mesurées (-0,10 ici si le degré de saturation suit la même tendance que sur la première partie du cycle). Les résultats pour les autres capteurs installés sur la colonne MNOG (Mil et Inf, voir annexe 7.4) semblent indiquer que le degré de saturation tend vers un pallier au dernier cycle. Cette différence entre degrés de saturation mesurés et simulés à la fin du dernier cycle est plus important dans les résultats des simulations de la colonne MNOG (i.e. celle pour laquelle le dernier cycle de séchage a duré le plus longtemps). Les résultats simulés et mesurés dans les autres grandes colonnes sont plus proches (moins de 5% de différence). Quand la période de sécheresse dure un certain temps, il semble que le modèle numérique ait tendance à surestimer la désaturation des matériaux (dans les conditions d'essai en colonne, i.e. sans nappe libre) ;

- les simulations donnent des résultats moins bons pour les variations du degré de saturation au premier cycle. Ceci est lié à la diminution brusque de la teneur en eau lors du premier cycle de drainage (déjà observé dans certaines courbes de rétention d'eau, voir section 7.1.3). Il a été impossible de reproduire ce phénomène dans les simulations ;
- les résultats sur les valeurs de la pression d'eau sont plus mitigés. Ici, on dispose de relativement peu de données expérimentales pour la comparaison (en raison de capteurs défectueux). Les capteurs de pression ont tendance à se désaturer lorsque la succion devient trop importante (elle peut descendre très bas selon les modèles), ce qui limite le nombre de données en fin de cycle pour les succions les plus importantes. En outre, les capteurs ont une limite physique, soit ±1000 cm (soit environ 15 psi ou 100 kPa) pour les capteurs installés dans les couvertures et ±340 cm (5 psi ou 35 kPa) pour les capteurs installés dans les résidus réactifs. Cette limite a été atteinte pour certains capteurs (expérimentalement, certains capteurs de ±5 psi ont pu atteindre des succions autour de 420 cm environ). Enfin, il y a un décalage dans le temps lié au temps de réponse du capteur lui même (la bougie de céramique employée, ainsi que la faible perméabilité des matériaux autour, induisent un certain délai dans la réponse). Aussi observe-t-on expérimentalement des paliers plus longs sous une pression positive alors que la désaturation a déjà débuté (les teneurs en eau mesurées diminuent plus rapidement). Pour ces raisons, on considère qu'une incertitude plus grande règne autour des valeurs de pression mesurée. Malgré ces différences entre données expérimentales et numériques, on considère que la calibration est globalement satisfaisante ;
- on constate d'importantes différences de débits entre les résultats expérimentaux et les simulations. Celles-ci sous-estiment largement le débit de sortie à la base des colonnes. Les différences dans les rapports de récupération (volume drainé/volume ajouté) peuvent aller jusqu'à 30% (i.e. les rapports des volumes d'eau drainée par rapport aux volumes d'eau ajoutés peuvent être jusqu'à 30% plus faibles dans les simulations que dans les essais de laboratoire). Par contre, la vitesse à laquelle l'eau sort au bas des colonnes (pente de la courbe du rapport eau drainée/eau ajoutée à la figure 7.10) est bien reproduite dans les simulations.

On peut faire plusieurs hypothèses pour expliquer les écarts de débit entre essais et simulations : la surestimation de l'évaporation par le code Vadose (qui tend à diminuer la proportion d'eau drainée), l'utilisation d'une condition frontière inférieure modifiée pour empêcher la remontée d'eau dans les colonnes simulées, la non prise en compte de la succion osmotique, liée à la contamination de l'eau interstitielle (e.g. Hillel, 1998), dans l'estimation de l'évaporation par le code, et le fait que Vadose ne fournisse les résultats de débits que chaque jour (contrainte liée à l'emploi d'une condition climatique). Dans ce dernier cas, il est probable que les volumes d'eau cumulés calculés à la fin de certaines journées incluent une part d'eau de réalimentation et qu'ils sous-estiment les débits sortants à la base des colonnes.

On compare à la figure 7.11 les rapports des volumes d'eau évaporés et drainés, à la fois pour le modèle numérique et dans la colonne MNOG. Dans ce dernier cas, on fait l'hypothèse que le profil de teneur en eau dans la colonne est le même à la fin de chaque cycle que celui mesuré au démontage (car les teneurs en eau volumiques θ_w mesurées sont proches).

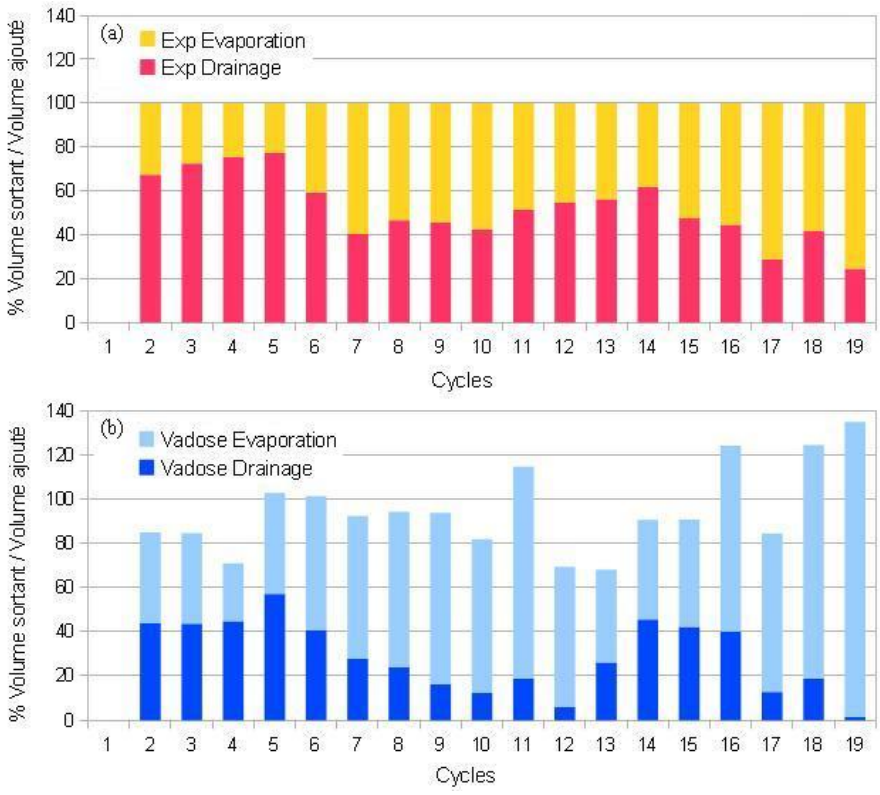


Figure 7.11: Rapports des volumes d'eau évaporés et drainés dans les grandes colonnes selon les valeurs mesurées (a) et simulées (b) à chaque cycle. Les résultats sont présentés sous forme de rapports (eau drainée et eau évaporée/eau ajoutée)

On constate à la figure 7.11 que dans tous les cas, Vadose surestime l'évaporation par rapport aux mesures de laboratoire, mais que globalement, le volume total (eau drainée + eau évaporée) est à peu près le même (100% de l'eau ajoutée ±20% dans 12 des 18 cycles). Entre les cycles 2 et 19, le rapport moyen des volumes d'eau drainés sur les volumes d'eau ajoutés est d'environ 95% dans les simulations, ce qui confirme l'hypothèse précédente. On note également que les tendances sont généralement les mêmes d'un cycle à l'autre, i.e. lorsque le volume d'eau drainé mesuré est plus important dans les colonnes, il l'est aussi dans les simulations.

Les tendances liées aux résultats pour les autres colonnes MOG, SNOG et SOG sont similaires (voir annexe 7.4).

7.2.2 Petites colonnes

Les calibrations présentées plus haut ont été réalisées à partir des résultats en grandes colonnes uniquement. On fait l'hypothèse que les résidus ont des propriétés à peu près identiques dans les petites colonnes (il s'agit des mêmes échantillons).

La seule différence notable entre les résidus dans les grandes et les petites colonnes est l'indice des vides (la mise en place et la consolidation sont différentes). Par conséquent, dans les simulations des essais en petites colonnes :

- les paramètres α_{vG}, n_{vG}, m_{vG} et θ_r des courbes de rétentions d'eau (modèle de van Genuchten, 1980) sont identiques à ceux des résidus dans les grandes colonnes. La teneur en eau volumique maximale θ_{sat} de la courbe en drainage est prise égale à la porosité n. Pour obtenir le paramètre θ_{sat} de la courbe en mouillage, on multiplie la porosité n par le degré de saturation (ou de satiation) maximal des résidus dans les grandes colonnes. Les courbes de rétention d'eau exprimées en degré de saturation sont donc identiques à celles obtenues pour les grandes colonnes (voir figure 7.5) ;
- les fonctions de perméabilité sont estimées de la même manière que pour les grandes colonnes, en se basant sur les nouvelles courbes de rétention d'eau et les valeurs estimées des conductivités hydrauliques saturées dans chaque petite colonne. Comme énoncé à la section 6.1.2, on fait l'hypothèse que les conductivités hydrauliques saturées dans les petites colonnes sont semblables à celles dans les grandes colonnes.

Géométriquement, les modèles des petites colonnes sont plus simples que les grandes colonnes (il n'y a aucune variation de diamètre des sections). On utilise donc un modèle parallélépipédique 1D de 1 m² de surface, avec des parois latérales imperméables, et des éléments de 1 cm de haut.

Les conditions initiales sont établies en simulant une colonne saturée avec une nappe placée au sommet des résidus en régime permanent (sans écoulement).

Les conditions frontières inférieures sont identiques à celles appliquées pour les grandes colonnes, sauf qu'au lieu de -90 cm, la succion est choisie en fonction des conditions de laboratoire (voir section 3.4.4). Comme pour les grandes colonnes, on empêche la remontée d'eau à la base des petites colonnes dans les simulations.

Les conditions frontières supérieures sont de type climatique. En raison de la taille réduite des colonnes, une trop grande évaporation peut influer sur la condition frontière inférieure (teneurs en eau irréalistes, succions non représentatives...). Il a donc été décidé d'imposer une valeur d'évaporation potentielle (ETP) plutôt que de laisser le logiciel la calculer. Celle-ci a été choisie égale à 1,76 mm/j telle que mesurée au laboratoire dans les cuvettes d'eau libre. Cette valeur a ensuite été ajustée pour mieux reproduire les résultats expérimentaux.

Par ailleurs, on rappelle qu'une couche de sable lâche de 2 à 4 cm d'épaisseur a été installée au sommet des petites colonnes afin de limiter l'évaporation et la dessiccation des résidus (voir section 3.4.1). Dans ce cas, plutôt que de reproduire cette couche de sable dans les modèles numériques, l'évaporation potentielle imposée a été diminuée (ce qui correspond bien au rôle de la couche de sable), avec une valeur calibrée basée sur les résultats de laboratoire. Le tableau 7.3 reprend les valeurs d'évaporation potentielle (ETP) imposées dans les simulations (après calibration). On remarque que les valeurs d'ETP imposées dans les simulations des essais en petite colonne varient passablement (du simple au double dans certains cas). En réalité, les matériaux ont des propriétés semblables entre eux et les couches de sables ont des dimensions et des indices des vides comparables et on s'attend à ce que l'évaporation dans les petites colonnes soit donc similaire également. Mais, si on impose des valeurs d'ETP uniformes, les variations du degré de saturation et de la succion dans les colonnes ne suivent pas les résultats de laboratoire. La petite taille des colonnes, l'intensité de l'évaporation, et d'autres problèmes numériques (influence de la condition frontière supérieure sur la condition frontière inférieure), entraînent une

forte sensibilité des résultats à la valeur d'ETP. Le fait d'imposer une valeur d'ETP plutôt que de la laisser calculer par le code Vadose/W n'a donc résolu qu'une partie du problème.

Tableau 7.3: Evaporation potentielle (ETP) appliquée dans les simulations des essais en petite colonne, en fonction de la présence ou non de la couche de sable lâche à leur sommet

	Evaporation potentielle (mm/j)	
	Sans la couche de sable	Avec la couche de sable
MNOP	X	0,528
MOP	X	0,528
SNOP	1,700	0,400
SOP	2,000	0,800

Comme pour les grandes colonnes, on compare les teneurs en eau et les succions mesurées dans les petites colonnes à celles obtenues par les simulations. Les résultats sont présentés dans les figures 7.12 et 7.13. Comme précédemment, on présente les résultats d'une seule petite colonne, à savoir SNOP. Tous les autres résultats, similaires, sont regroupés à l'annexe 7.5. La comparaison des débits de sortie mesurés et simulés est présentée à la figure 7.14.

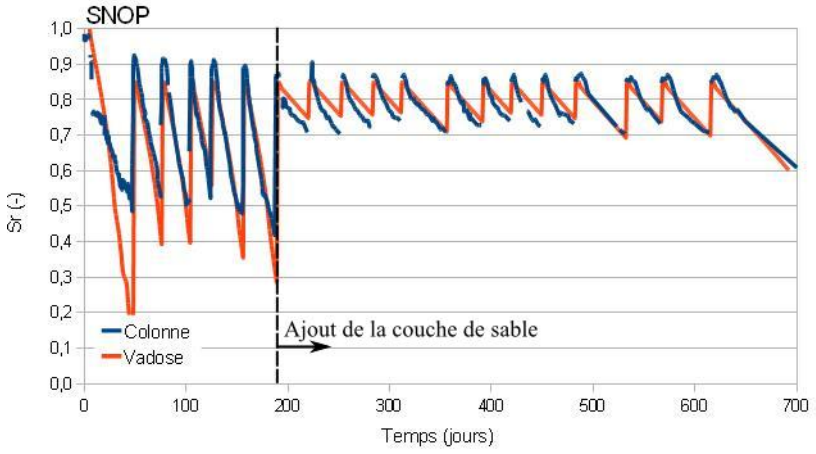


Figure 7.12: Variation du degré de saturation dans les 15 cm supérieurs de la petite colonne SNOP (moyenne), observé expérimentalement et simulé ; la couche de sable a été ajoutée au cycle 7

On constate sur la figure 7.12 que le modèle numérique reproduit bien les variations du degré de saturation pour les premiers cycles, en l'absence de couche de sable, ainsi que pour les cycles suivants où la couche de sable est ajoutée en surface pour limiter l'évaporation. Les amplitudes sont bien respectées et la vitesse de désaturation simulée est similaire à celle mesurée. On note néanmoins une tendance à surestimer d'environ 10% la désaturation sans la couche de sable, ce que l'on suppose être lié à une surestimation de l'évaporation. Cependant, on ne dispose pas d'assez de résultats de pression (voir figure 7.13) pour mieux estimer l'intensité de celle-ci. Comme pour les grandes colonnes, on constate également que lorsque la sécheresse se prolonge (comme au dernier cycle), les simulations tendent à surestimer la perte d'eau par évaporation.

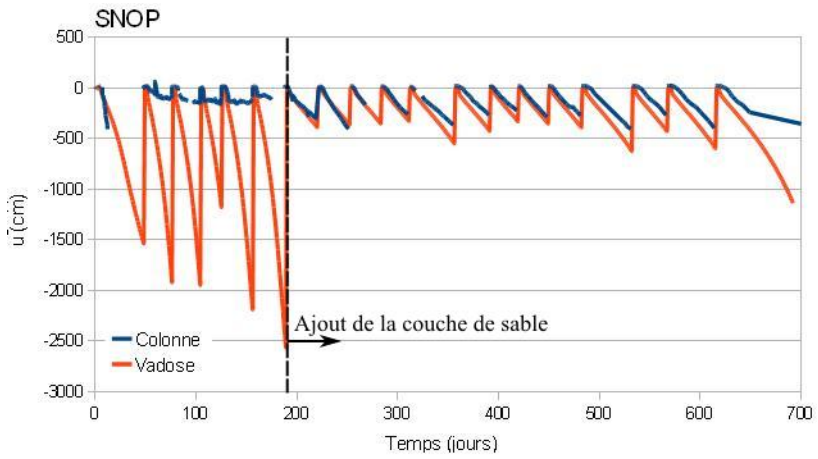


Figure 7.13: Variation des pressions d'eau mesurées et simulées au centre de la petite colonne SNOP

La figure 7.13 montre que les succions simulées dans la première phase de l'essai (sans couche de sable) sont plus importantes (en valeur absolue) que celles mesurées. Le modèle semble surestimer l'effet du phénomène d'évaporation, mais les résultats expérimentaux ne sont pas nécessairement représentatifs non plus. On a des raisons de penser que les capteurs se sont désaturés et ont cessé de fournir des résultats valides quelques jours après le début des six premiers cycles. Ils ont par ailleurs une limite physique de lecture autour de 1000 cm (ou 100 kPa). L'estimation des succions dans la seconde phase de l'essai (après l'ajout de la couche de sable) est bien meilleure (les succions atteignent des valeurs moins importantes ; à l'exception du dernier cycle).

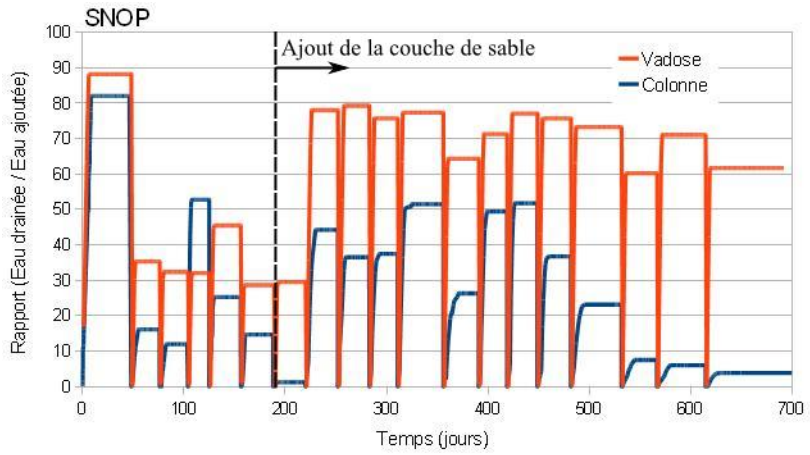


Figure 7.14: Débits mesurés et simulés à la sortie de la petite colonne SNOP. Les résultats sont présentés sous forme de rapport : eau sortie/eau ajoutée

On constate sur la figure 7.14 que les débits sont généralement surestimés par le modèle numérique (contrairement à ce qui a été observé dans les simulations des essais en grande colonne). La vitesse d'écoulement simulé est semblable à celle mesurée, surtout dans la première moitié de l'essai (les courbes simulées ont ensuite tendance à s'éloigner des résultats expérimentaux). On remarque également que la vitesse d'écoulement mesurée tend à ralentir au cours des cycles (la pente de la courbe diminue). Il semblerait que la conductivité hydraulique diminue progressivement au cours de l'essai, ce qui semble être confirmé par la diminution du volume d'eau drainé. Ce phénomène, observé également dans les résultats des autres essais en petite colonne, n'est pas reproduit dans les simulations.

7.3 Analyse de sensibilité et étude paramétrique

Un certain nombre d'hypothèses ont été formulées pour la construction des modèles numériques visant à simuler les essais en grande et petite colonne. Afin d'estimer l'impact des valeurs des principaux paramètres et permettre d'identifier les paramètres clefs pour la construction des simulations des conditions de terrain, plusieurs simulations additionnelles ont été réalisées. Elles utilisent les valeurs calibrées de la CRE (l'hétérogénéité des matériaux sur le terrain et la variabilité de leur CRE seront analysées à la section 7.5) avec un paramètre modifié à la fois. On compare ensuite les résultats des degrés de saturation et des succions pour évaluer les différences. L'effet des paramètres suivants a été évalué (les résultats sont décrits en détail à l'annexe 7.6) :

- la prise en compte de l'évaporation (annexe 7.6.1) est capitale dans la simulation des essais en colonne et essentielle à l'estimation de l'efficacité des recouvrements ;
- l'application d'une nappe libre à la base des modèles numériques des essais en colonne (annexe 7.6.2) ne permet pas de reproduire les observations de laboratoire. La condition frontière inférieure telle qu'imposée dans les simulations, et qui consiste à bloquer le flux de réalimentation par le bas, s'est avérée efficace pour reproduire les conditions de laboratoire. Expérimentalement, le blocage du flux de réalimentation permet de désaturer plus avant les résidus (et donc d'augmenter le flux d'oxygène et la génération de DMA). Cette approche est préconisée pour étudier le comportement des couvertures en laboratoire, en particulier lorsque l'AEV des matériaux testés est élevé (comme c'est le cas ici). Si l'on souhaitait reproduire des conditions plus proches de celles du terrain, il serait utile d'installer un réservoir d'eau à pression atmosphérique à l'extrémité du tube en U pour permettre une réalimentation des colonnes par la base (avec une mèche pour permettre la remontée capillaire de l'eau). Dans ce cas, les résidus se désatureraient moins ;
- l'application d'un flux d'évaporation (mesuré au laboratoire) ou son estimation par Vadose/W, à partir des données climatiques, donnent des résultats similaires pour les essais en grande colonne (annexe 7.6.3). Par la suite, on laissera le logiciel simuler l'évaporation (excepté dans pour les modèles assez petits où les conditions frontières supérieures et inférieures s'influencent mutuellement, comme pour les petites colonnes) ;
- la prise en compte du phénomène d'hystérésis est nécessaire pour reproduire les observations de laboratoire (annexe 7.6.4). Dans les modèles de terrain, les résidus se verront systématiquement attribuer les paramètres de la CRE en mouillage. Considérant qu'ils ont été entreposés pendant de nombreuses années dans les parcs, laissés exposés aux intempéries, et que la nappe est profonde, on peut considérer qu'ils ont été suffisamment asséchés. Sous la nappe, les résidus sont (par définition) supposés saturés. En ce qui concerne la couverture, tout dépendra des cas (voir section 7.4 et 7.5) ;
- la géométrie des grandes colonnes peut être simplifiée (annexe 7.6.5). Par la suite, on emploiera exclusivement des modèles parallélépipédiques 1D de 1 m² de surface pour accélérer les calculs (moins d'éléments) et faciliter la comparaison des résultats ;

- la modélisation du tube en U et de la céramique est satisfaisante (annexe 7.6.6) et les éventuelles erreurs occasionnées par les hypothèses posées à cet effet sont négligeables ;
- l'effet de la taille du maillage est limité dans les simulations (annexe 7.6.7). Par la suite, on considérera donc généralement un maillage avec des éléments de 5 cm, ce qui permettra de contrôler le temps de calcul et d'avoir une précision suffisante sur les paramètres hydrogéologiques. Le cas des stériles employés dans l'étude de méthodes alternatives de recouvrement sera détaillé plus tard (voir section 7.6).

L'étude de sensibilité a permis de vérifier que les paramètres employés dans les simulations étaient satisfaisants. On a vu que certaines conditions (évaporation, condition frontière inférieure, hystérésis) étaient cruciales pour bien modéliser les colonnes. A l'inverse, d'autres paramètres se sont avérés moins critiques, tels la géométrie des colonnes, la présence de la céramique à la base de celles-ci ou encore le maillage. En complément de l'analyse de sensibilité précédente, on réalise également une étude paramétrique. Un des objectifs de ce projet étant d'évaluer l'efficacité de différents recouvrements, il s'agit ici de quantifier l'influence de paramètres clefs de la restauration. On considère alors des paramètres qui peuvent varier sur le terrain, à savoir :

- la profondeur de nappe : des mesures *in-situ* ont montré une grande fluctuation, tant géographique (en divers points des parcs) que temporelle (voir aussi chapitre 4) ;
- l'ampleur de l'évaporation : l'évaporation a été mesurée au laboratoire, mais pas sur le terrain. Les conditions climatiques peuvent varier quotidiennement, mensuellement et d'une année sur l'autre, en particulier dans le contexte actuel de changements climatiques ;
- l'épaisseur de la couverture : sur le site Manitou, il est prévu d'installer une couverture de résidus Goldex d'environ 1 mètre, mais celle-ci pourrait être adaptée selon les besoins. Sur le site Selbaie, l'épaisseur de la couverture varie (d'après les mesures dans des tranchées) entre 1 et 2 mètres environ.

Comme pour l'analyse de sensibilité, des modèles numériques types ont été employés, pour lesquels on a fait varier un paramètre à la fois. Les résultats détaillés sont décrits à l'annexe 7.7. Ils montrent que la position de la nappe et les propriétés des résidus et des matériaux de couverture sont les facteurs les plus importants. La durée de la phase de sécheresse (drainage et évaporation) est également un paramètre critique.

7.4 Simulations des conditions de terrain

7.4.1 Objectifs et méthodologie

Les calculs précédents ont permis de calibrer les relations utilisées dans les simulations des essais en colonne, de tester la sensibilité des modèles et d'évaluer l'importance de chaque paramètre sur le comportement des systèmes.

En pratique, les parcs à résidus Selbaie et Manitou s'avèrent être très hétérogènes, notamment de par leur historique, et les 4 échantillons de résidus testés dans les colonnes ne sont pas forcément représentatifs des granulométries autre part sur le site. Leur indice des vides peut également varier d'un point à l'autre du parc selon la méthode de déposition employée et le temps de consolidation (e.g. Vick, 1983; Aubertin et al., 2002; Bussière, 2007).

L'objectif visé ici est de tester une gamme de propriétés des résidus tels qu'ils pourraient être sur le site. On fera donc essentiellement varier les propriétés de ceux-ci, de mêmes que les conditions frontières des modèles. La méthode employée consistera à synthétiser l'ensemble des mesures granulométriques et d'indice des vides, selon les mesures sur le terrain et dans divers essais (colonne, Proctor ou autre) et d'en tirer une gamme de propriétés représentatives. L'obtention des courbes de rétention d'eau et des fonctions de perméabilité sera décrite en détail plus bas.

Les conditions climatiques seront représentatives des données de terrain (et non plus du laboratoire ou théoriques ; voir section 7.1.6). Elles permettront d'évaluer l'impact des différentes saisons et en particulier du couvert de neige. Les profondeurs de nappe testées seront choisies pour être réalistes vis-à-vis des mesures, à savoir -2 m, -4 m et -6 m sous l'interface résidus-couverture. Enfin, le modèle d'hystérésis a été employé, c'est-à-dire les courbes en mouillage pour les résidus et les courbes en mouillage et en drainage pour les couvertures. Comme vu plus haut (voir section 7.3.5), ces dernières pourront être alternées selon les cas. Le phénomène de cryosuction n’est pas considéré ici, mais les courbes de rétention d’eau des matériaux de couverture en drainage à la fonte des neiges sont utilisées pour éventuellement leur permettre de se resaturer. Les paramètres géométriques et numériques (convergence) des modèles sont les mêmes que ceux utilisés suite à la calibration des simulations des essais en grande colonne et pour l'analyse de sensibilité.

7.4.2 Propriétés des matériaux

Deux paramètres influencent directement le comportement hydrogéologique des matériaux : la courbe de rétention d'eau et la fonction de perméabilité.

Dans les analyses de sensibilité et paramétriques précédentes, les courbes de rétention d'eau calibrées des matériaux testées ont été employées. De nombreuses données expérimentales étaient disponibles pour déterminer avec assez de précision les paramètres de chaque courbe.

L'objectif ici est de simuler le comportement des matériaux qui n'ont pas été caractérisés aussi précisément et pour lesquels on ne dispose que de quelques propriétés géotechniques de base, comme les courbes granulométriques et les indices des vides en place. En se basant sur l'ensemble des résultats expérimentaux, obtenus tant au laboratoire que sur le terrain (voir chapitre 4), il a été possible de dégager un certain nombre de données caractéristiques et représentatives. Des courbes typiques et distinctes les unes des autres et couvrant l'intervalle des résultats ont alors été sélectionnées.

Les courbes granulométriques retenues sont présentées à la figure 7.15 et leurs caractéristiques sont fournies au tableau 7.4. Le tableau 7.5 synthétise l'ensemble des valeurs d'indice des vides. L'indice des vides le plus faible, e_{min}, correspond en général à la valeur obtenue par essais Proctor modifié ; l'indice des vides moyen e_{moy} est généralement celui dans les colonnes ; et l'indice des vides maximum e_{max} a été habituellement mesuré sur le terrain (par anneau volumique ; voir chapitre 4 pour le détail des mesures). A partir de ces courbes granulométriques (D_{10}, D_{60}) et des indices des vides, les courbes de rétention d'eau de chaque matériau possible (avec chaque courbe granulométrique pour chaque indice des vides) ont été estimées au moyen du modèle MK (présenté à la section 2.2.3). Toutes ont été tracées sur le même graphique (figure 7.16) et quelques unes ont été sélectionnées pour les analyses des conditions de terrain (en trait plein sur la figure 7.16 ; les courbes non utilisées sont en pointillés).

Le choix des CRE a été réalisé de la même manière que pour les courbes granulométriques, afin de couvrir au mieux les possibilités de comportement des résidus et des matériaux de couverture. Pour Manitou, 4 courbes de rétention d'eau ont été retenues, nommées M1 à M4, représentent les résidus les plus fins et les plus compactés, aux résidus les plus grossiers et lâches. Trois courbes ont été retenues pour Goldex (G1 à G3), trois pour Selbaie (S1 à S3) et trois pour la moraine (Mor1 à Mor3).

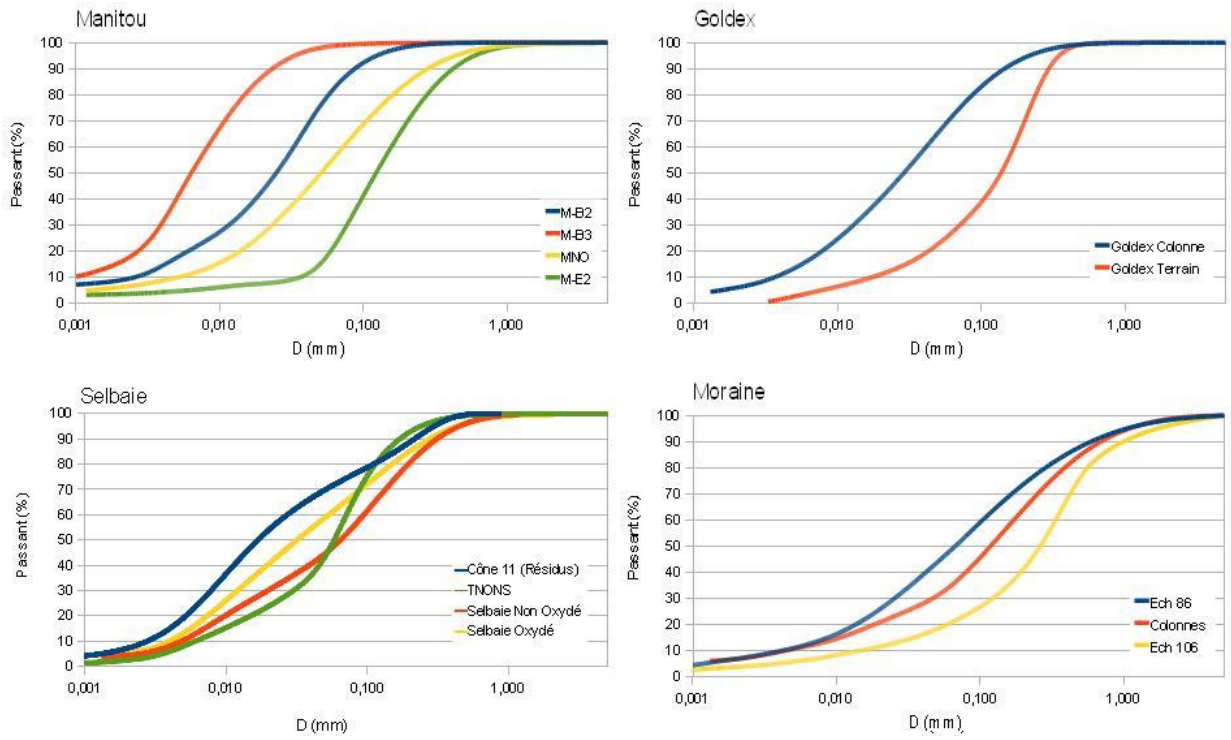


Figure 7.15: Courbes granulométriques retenues pour la simulation des conditions de terrain

Tableau 7.4: Caractéristiques des courbes granulométriques retenues pour les simulations numériques des conditions de terrain (avec leur identification)

Ech.	D_{60} (mm)	D_{10} (mm)	C_U (-)	<75 µm
M-B2	0,034	0,003	11,4	94%
M-B3	0,008	0,001	8,3	100%
MNO	0,072	0,006	12,7	62%
M-E2	0,166	0,042	4,0	30%
G-Col	0,042	0,004	10,9	77%
G-Ter	0,170	0,018	9,5	31%

Ech.	D_{60} (mm)	D_{10} (mm)	C_U (-)	<75 µm
Cône11	0,027	0,003	9,7	75%
TNONS	0,072	0,005	14,4	65%
SNO	0,104	0,005	20,4	52%
SO	0,052	0,004	12,4	65%
Ech 86	0,110	0,004	25,5	52%
MorCol	0,184	0,005	40,0	38%
Ech 106	0,337	0,016	21,7	23%

Tableau 7.5: Intervalle des valeurs des indices des vides mesurés sur le terrain et au laboratoire

	e_{min}	e_{moy}	e_{max}
Manitou	0,400	0,670	1,000
Goldex	0,480	0,720	0,900
Selbaie	0,390	0,560	0,880
Moraine	0,350	0,560	0,780

Les courbes de rétention d'eau retenues ne sont pas toutes représentatives des matériaux présents sur le terrain, notamment en ce qui a trait au choix des indices des vides, dont certains ont été obtenus à l'optimum Proctor. L'idée ici est d'envisager plusieurs cas et d'évaluer les principales tendances de comportement. Le choix des matériaux sera discuté plus loin, au vu des résultats de ces modèles. Par ailleurs, on a pu constater lors de la phase de calibration que les modèles théoriques des courbes de rétention d'eau étaient assez différents des courbes de rétention d'eau réelles mesurées. Il a donc été nécessaire ici de corriger les courbes de rétention d'eau obtenues avec le modèle MK. Pour ce faire, la courbe de rétention prédite et calibrée est comparée pour chaque grande colonne. On a déterminé les facteurs de correction à appliquer sur les paramètres a_c et m_c (et aussi ψ_r dans certains cas), pour passer de la courbe théorique à la courbe « réelle ». Les courbes prédites sont ensuite corrigées grâce à ces facteurs de correction (présentés au tableau 7.6).

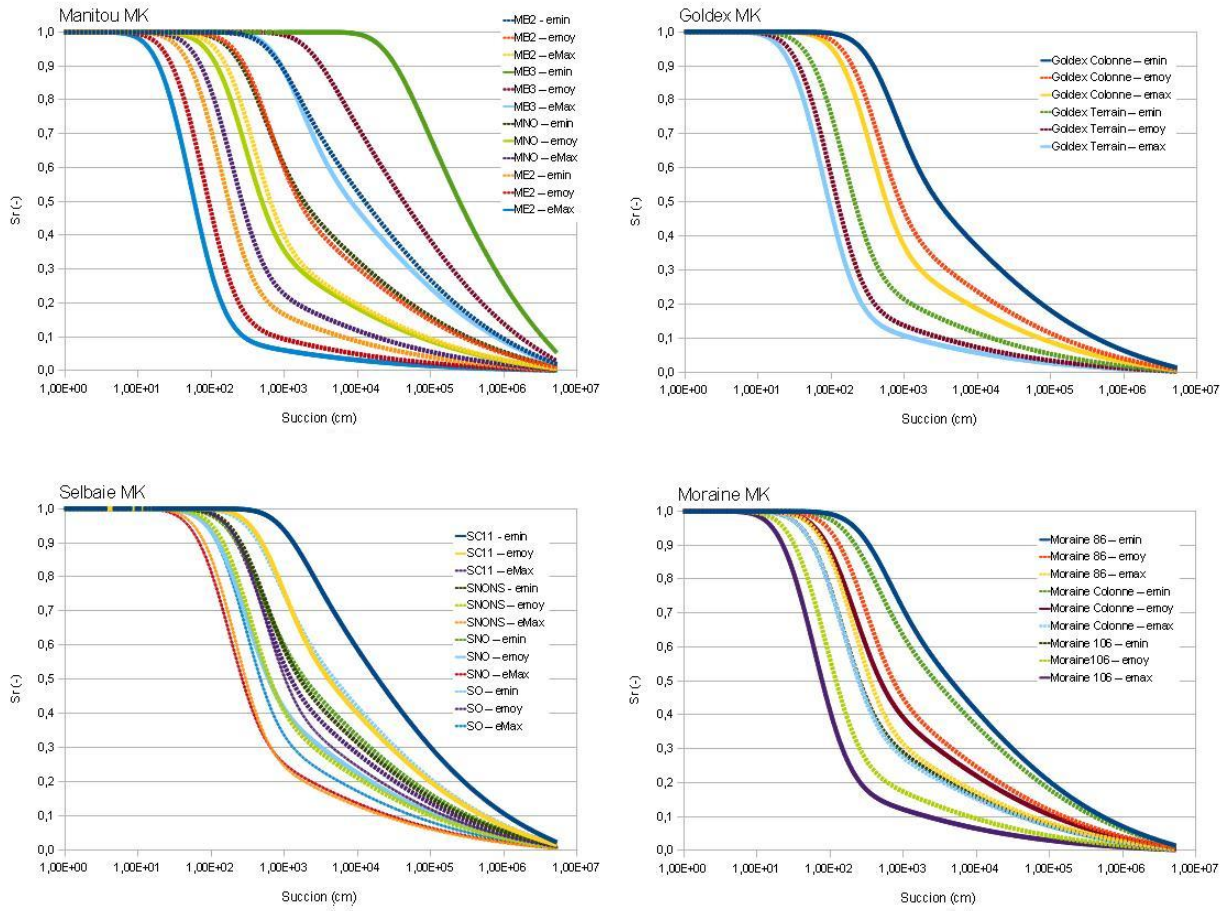


Figure 7.16: Courbes de rétentions d'eau estimées par le modèle MK à partir des courbes granulométriques et des indices des vides mesurés (avant corrections)

Tableau 7.6: Facteurs de correction appliqués aux courbes de rétentions d'eau prédites

Matériaux	Paramètres modifiés
Manitou	Drainage : $3{,}2.a_c$ Mouillage : $3{,}5.a_c$
Goldex	Drainage : $1{,}1.a_c$ et $2{,}2.m_c$ Mouillage : $1{,}4.a_c$ et $2{,}7.m_c$
Selbaie	Drainage : $1{,}9.a_c$ et $0{,}026.\psi_r$ Mouillage : $2{,}2.a_c$ et $0{,}026.\psi_r$
Moraine	Drainage : $0{,}9.a_c$ Mouillage : $1{,}4.a_c$

Pour simuler l'hystérésis, on s'est basé sur les valeurs du degré de saturation maximal mesuré dans les colonnes et utilisé dans les simulations précédentes (voir tableau 7.2 par exemple ; les valeurs sont rappelées au tableau 7.7). Une fois les courbes corrigées, on les a reproduites avec le modèle de van Genuchten (1980) utilisé dans les simulations. Les courbes finales obtenues en vue des simulations des conditions de terrain sont présentées à la figure 7.17. Les paramètres de van Genuchten de ces courbes sont synthétisés dans le tableau 7.8.

Les fonctions de perméabilité des matériaux de terrain ont été obtenues au moyen du modèle de Mualem (1976) - van Genuchten (1980), comme pour les courbes de calibration. La conductivité hydraulique saturée a été estimée pour chaque matériau en s'aidant des prédictions obtenues avec les modèles KC et KCM (présentés à la section 2.2.4), à partir des courbes granulométriques. Les conductivités hydrauliques saturées de ces mêmes matériaux sont présentées au tableau 7.9. On constate que les conductivités hydrauliques couvrent une large gamme de valeurs (jusqu'à trois ordres de grandeur de différences entre elles).

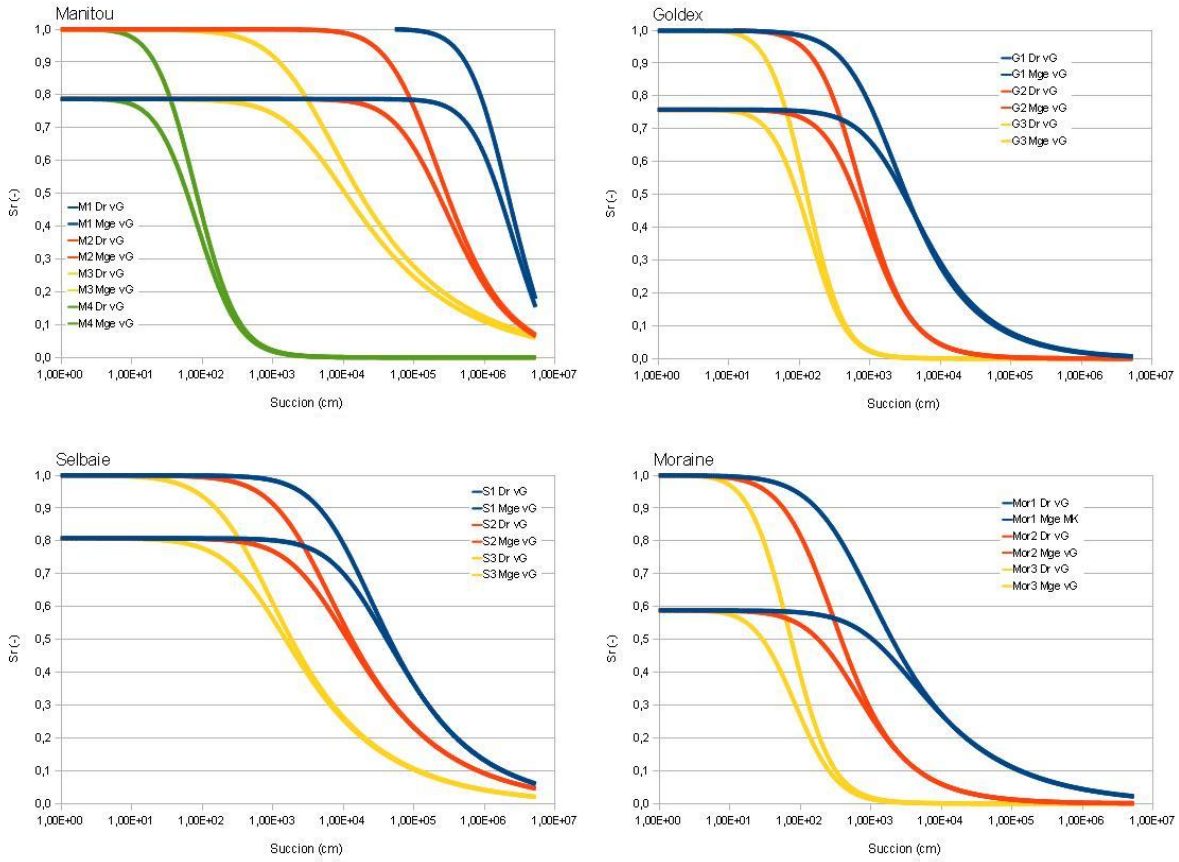


Figure 7.17: Courbes de rétention d'eau (modèle de van Genuchten (1980)) des matériaux retenus pour l'analyse numérique du comportement des résidus sur le terrain

Tableau 7.7: Degré de saturation maximum S_{rmax} estimé pour les matériaux utilisés dans les simulations des conditions de terrain et basé sur les mesures dans les colonnes

Matériaux		S_{rmax}
Manitou	Drainage	1,000
	Mouillage	0,787
Goldex	Drainage	1,000
	Mouillage	0,758
Selbaie	Drainage	1,000
	Mouillage	0,808
Moraine	Drainage	1,000
	Mouillage	0,588

Tableau 7.8: Paramètres du modèle de van Genuchten (1980) des courbes de rétention d'eau des matériaux retenus pour les simulations des conditions de terrain (voir CRE à la figure 7.34)

		θs (-)	θr (-)	α_{vG} (m^{-1})	n_{vG} (-)	m_{vG} (-)
M1	Drainage	0,286	0,000	0,00007	2,30	0,57
	Mouillage	0,225	0,000	0,000065	2,30	0,57
M2	Drainage	0,500	0,000	0,00085	1,70	0,41
	Mouillage	0,394	0,000	0,00067	1,70	0,41
M3	Drainage	0,401	0,000	0,042	1,35	0,26
	Mouillage	0,316	0,000	0,030	1,35	0,26
M4	Drainage	0,500	0,000	1,700	2,50	0,60
	Mouillage	0,394	0,000	1,600	2,50	0,60
G1	Drainage	0,324	0,000	0,090	1,60	0,38
	Mouillage	0,246	0,000	0,050	1,60	0,38
G2	Drainage	0,474	0,000	0,210	2,10	0,52
	Mouillage	0,359	0,000	0,165	2,10	0,52
G3	Drainage	0,474	0,000	1,000	2,90	0,66
	Mouillage	0,359	0,000	0,900	2,90	0,66
S1	Drainage	0,281	0,000	0,010	1,45	0,31
	Mouillage	0,227	0,000	0,006	1,45	0,31
S2	Drainage	0,359	0,000	0,042	1,40	0,29
	Mouillage	0,290	0,000	0,025	1,40	0,29
S3	Drainage	0,359	0,000	0,300	1,40	0,29
	Mouillage	0,290	0,000	0,190	1,40	0,29
Mor1	Drainage	0,259	0,000	0,275	1,40	0,29
	Mouillage	0,153	0,000	0,070	1,40	0,29
Mor2	Drainage	0,359	0,000	0,650	1,70	0,41
	Mouillage	0,211	0,000	0,300	1,70	0,41
Mor3	Drainage	0,438	0,000	1,900	2,50	0,60
	Mouillage	0,258	0,000	1,600	2,50	0,60

Tableau 7.9: Conductivités hydrauliques saturées estimées pour les matériaux lors des simulations des conditions de terrain

Matériaux	k_{sat} (m/s)
M1	$1{,}33.10^{-8}$
M2	$1{,}46.10^{-7}$
M3	$3{,}62.10^{-7}$
M4	$1{,}35.10^{-4}$
G1	$1{,}23.10^{-7}$
G2	$6{,}33.10^{-7}$
G3	$1{,}95.10^{-5}$

Matériaux	k_{sat} (m/s)
S1	$5{,}30.10^{-8}$
S2	$1{,}40.10^{-7}$
S3	$2{,}84.10^{-7}$
Mor1	$5{,}00.10^{-7}$
Mor2	$2{,}50.10^{-6}$
Mor3	$5{,}00.10^{-5}$

Les résidus Manitou M1 (AEV ≈ $4{,}0.10^{3}$ m ; $k_{sat} = 1{,}33.10^{-8}$ m/s) et M2 (AEV ≈ $4{,}0.10^{2}$ m ; $k_{sat} = 1{,}46.10^{-7}$ m/s) sont jugés irréalistes et ne seront par conséquent pas simulés ici. Il en va de même pour les résidus Selbaie S1 (AEV ≈ 50 m ; $k_{sat} = 5{,}3.10^{-8}$ m/s).

On note que les résidus M3 et M4 représentent deux résidus assez différents de ceux habituellement rencontrés sur les sites miniers au Québec (Aubertin et al., 2002; Bussière, 2007). Les résidus M3 (AEV ≈ 10 m ; $k_{sat} = 3{,}62.10^{-7}$ m/s) se classent parmi les silts argileux et représentent la fraction fine et dense des résidus que l'on peut retrouver sur le parc à résidus Manitou. Les résidus M4 quant à eux (AEV ≈ 0,6 m ; $k_{sat} = 1{,}35.10^{-4}$ m/s) constituent la fraction la plus grossière et lâche des résidus prélevés sur le terrain, et ils tiennent d'avantage du silt sableux. On a fait ici le choix de conserver ces deux résidus pour étudier le comportement des résidus Manitou entre deux extrêmes. Les résidus S3 (AEV ≈ 1,5 m ; $k_{sat} = 2{,}8.10^{-7}$ m/s) sont plus proches des propriétés usuelles des résidus de concentrateur des mines en roches dures (Aubertin et al., 2002). Les résidus S2 (AEV ≈ 9 m ; $k_{sat} = 1{,}4.10^{-7}$ m/s) constituent la fraction fine et dense des résidus sur le site Selbaie. Grâce à ces quatre types de résidus on couvre une large gamme de matériaux dans les simulations.

7.4.3 Résultats - Site Manitou

Afin de présenter les principaux résultats des simulations, on utilise les variations du degré de saturation dans la couverture (1 m de résidus Goldex), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture (le bas de la couverture est supposé demeurer plus saturé), tout au long d'une année (de janvier à décembre) pour les divers cas. Les simulations ont été réalisées pour deux ans, mais les résultats se répètent d'une année à l'autre (car les données climatiques utilisées sont les mêmes ; voir section 7.1.6). Les résultats sont présentés à la figure 7.18.

Les simulations se divisent en trois phases (ou trois étape d'analyse sous Vadose/W). Dans la première phase, la simulation est basée sur les courbes de rétention d'eau (et de perméabilité) en mouillage pour les résidus et les couvertures. Cette phase dure jusqu'à la fin de l'hiver (début du dégel). A ce moment débute la seconde phase, où le comportement des résidus est de nouveau simulé avec la courbe de mouillage, mais où les paramètres des couvertures sont ceux en drainage ; on permet aussi aux résidus Goldex de se resaturer à la fonte des neiges. Par la suite, le degré de saturation de la couverture peut diminuer jusqu'à atteindre un minimum au milieu de l'été (minimum local). A ce moment, si le degré de saturation demeure supérieur à la satiation

maximale S_{rmax} (voir tableau 7.7), la courbe en drainage est conservée. C'est ce que l'on observe par exemple dans les cas M2G1 et M3G1 (pour toutes les profondeurs de nappe) et M4G1 et M4G2 (pour le cas où la nappe est à -2 m). Si le degré de saturation est trop petit ($S_r < S_{rmax}$), on utilise les propriétés de la CRE de la couverture en mouillage.

On montre également les profils du degré de saturation et de la pression d'eau pour chaque simulation, le jour où le degré de saturation à la base de la couverture est minimal. Cette date n'est pas toujours la même, et peut varier selon les matériaux, les vitesses d'infiltration, l'amplitude de l'évaporation dans la couverture etc. Néanmoins, de façon empirique, il a été remarqué qu'il s'agissait dans la plupart des simulations, du 188^{e} jour de l'année, soit le 8 juillet. Dorénavant, il serait fait allusion à ce jour comme le plus sec de l'année pour les couvertures. Ces résultats sont présentés aux figures 7.19 et 7.20. On présente également sur ces figures les profils du degré de saturation et de la pression d'eau à la fin de l'hiver (en pointillés), après la fonte des neiges.

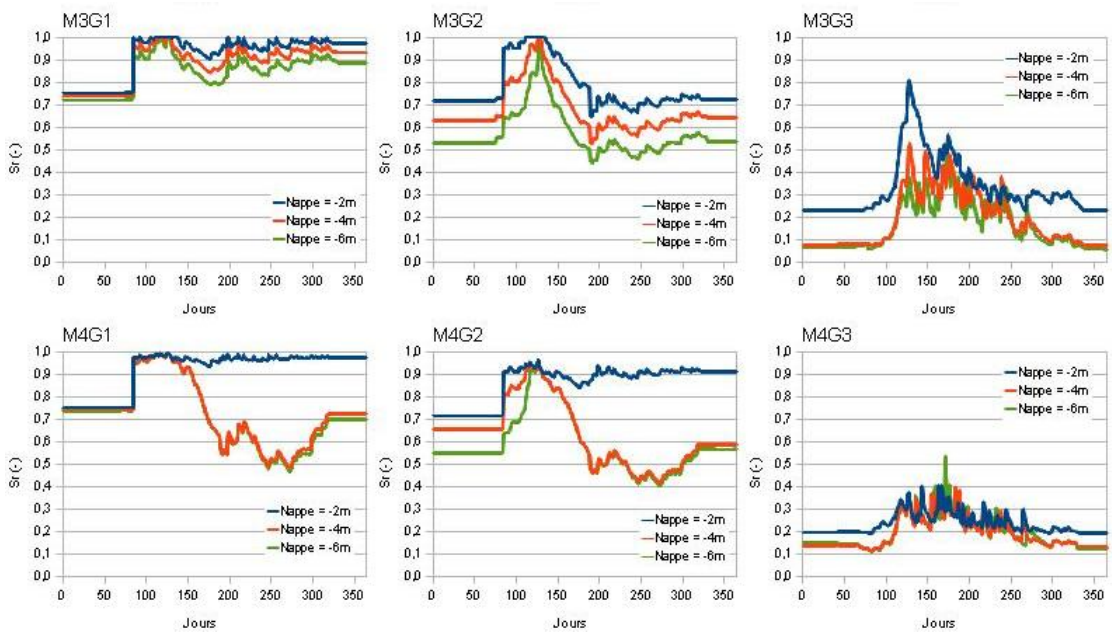


Figure 7.18: Variations du degré de saturation simulé dans les couvertures, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture, pour toute une année et pour chaque couple de matériaux Manitou et Goldex. On présente dans chaque graphique les résultats pour trois profondeurs de nappe différentes (-2, -4 et -6 mètres sous l'interface Manitou-Goldex)

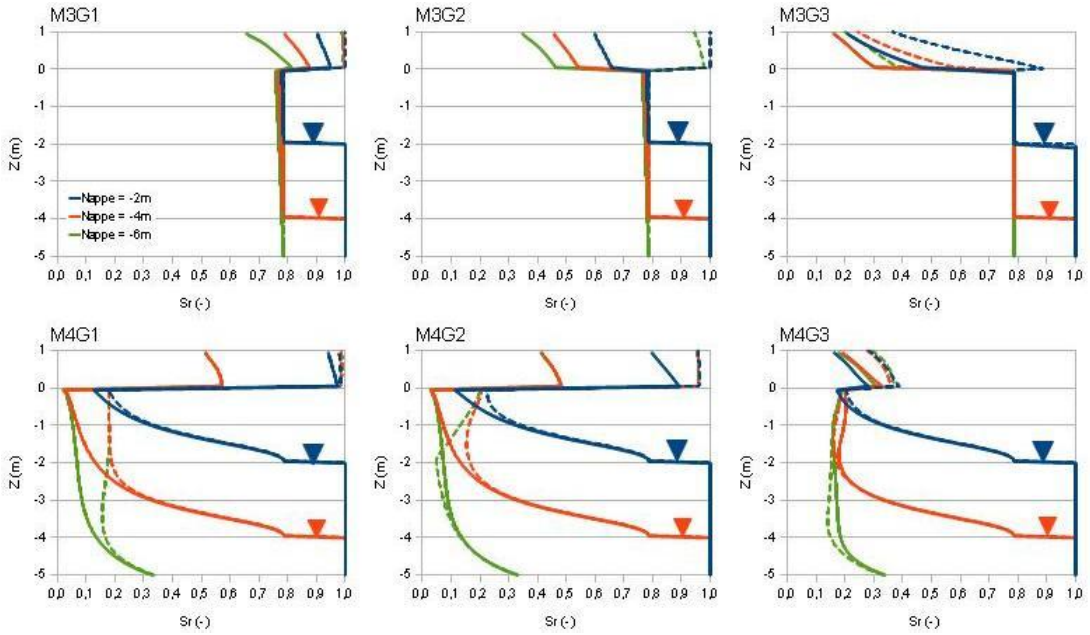


Figure 7.19: Profils du degré de saturation simulé pour chaque couple de matériaux Manitou et Goldex, pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m), le jour le plus sec de l'année (8 juillet ; trait plein) et à la fin de l'hiver (pointillés)

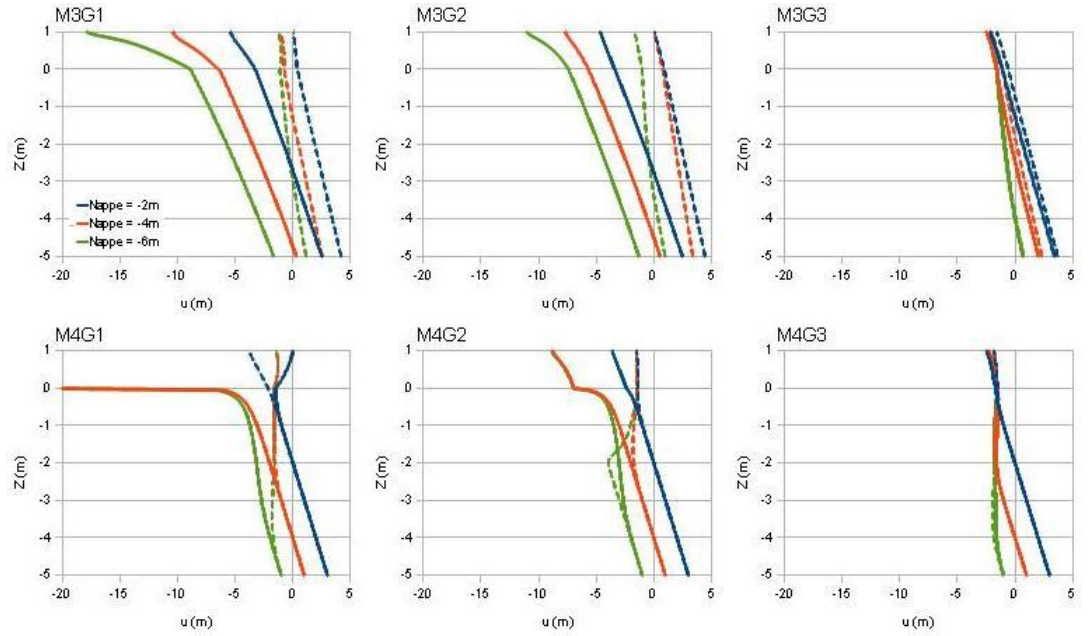


Figure 7.20: Profils de la pression interstitielle simulée pour chaque couple de matériaux Manitou et Goldex, pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m) le jour le plus sec de l'année (8 juillet ; trait plein) et à la fin de l'hiver (pointillés)

On constate sur les figures 7.18 à 7.20 que :

- dans la plupart des cas simulés ici, la couverture se désature sous 70%, excepté lorsqu'elle est constituée de résidus Goldex G1 (AEV ≈ 4 m ; k_{sat} = 1,23.10^{-7} m/s), quelque soit la profondeur de nappe. Parfois (cas M4G2), une nappe située à 2 mètres de profondeur permet de limiter la désaturation de la couverture ;
- les résidus Manitou M3 (AEV ≈ 10 m ; k_{sat} = 3,62.10^{-7} m/s) demeurent très proches de la satiation (Sr ≈ 79%) au-dessus de la nappe, quelque soit la profondeur de celle-ci. A l'inverse, les résidus M4, du fait de leur AEV plus faible (≈ 0,6 m ; k_{sat} = 1,35.10^{-4} m/s), se désaturent sous la barre des 20% dans tous les cas.

On observe dans les modèles M3G1 et M4G1 que la couverture se sature complètement lors de la fonte des neiges. On note également que dans le cas M3G1, la base de la couverture demeure à un degré de saturation supérieur à 80% (et même 90% lorsque la nappe est à -2 m) pendant le reste de l'année simulée. Les résidus Goldex G1 sont fins et denses et leur très faible conductivité hydraulique (k_{sat} = 1,23.10^{-7} m/s) ralentit l'écoulement suffisamment pour que la désaturation soit lente. Dans ce cas, un léger effet de barrière capillaire pourrait également se former avec les résidus sous-jacents (plus grossiers) et ralentir la désaturation par drainage gravitaire. Le haut de la couverture peut par contre se désaturer jusqu'à des valeurs de 65% environ, principalement sous l'effet de l'évaporation comme le montre la figure 7.20 (les succions développées au sommet de la couverture peuvent atteindre 20 m alors que la nappe se trouve à -6 m). La variante M4G1 donne des résultats un peu différents. Les résidus Manitou M4 sont assez grossiers (d'avantage que M2 et M3), et ils se désaturent facilement. Un bris capillaire pourrait se former à l'interface résidus-couverture. Pourtant, dans les cas où la nappe est à -4 m et -6 m, la couverture se désature jusqu'à 50% le jour le plus sec. On peut en déduire que l'évaporation est responsable de la désaturation de la couverture.

Dans le cas M3G1, les résidus demeurent saturés quelque soit la profondeur de la nappe, ce qui permettrait à l'eau de remonter assez rapidement dans la couverture pour compenser les pertes dues à l'évaporation. De même pour le cas M4G1 avec une nappe à -2 m, la conductivité hydraulique dans les résidus Manitou demeure suffisamment élevée pour permettre à l'eau de remonter vers la couverture et contrebalancer les pertes par évaporation. Par contre, dans le cas M4G1, lorsque la nappe est plus profonde (-4 m ou -6 m), la conductivité hydraulique des résidus

(non saturés) est beaucoup plus faible et l'eau ne peut pas remonter assez vite depuis la nappe pour alimenter la couverture et celle-ci se désature. Dans ce cas, le phénomène qui contrôle le degré de saturation de la couverture de résidus G1 semble lié à la remontée capillaire plutôt qu'à un véritable effet de barrière capillaire.

Dans le cas M3G2, la couverture (AEV ≈ 2 m ; $k_{sat} = 6{,}33.10^{-7}$ m/s) se désature avec S_r entre 50% et 70% au milieu de l'été selon la profondeur de la nappe. A la fonte des neiges, la couverture devient saturée pendant environ 50 jours avant de perdre son eau. Le profil du degré de saturation permet de constater que les résidus sous-jacents demeurent à satiation en permanence, ce qui a pour conséquence que la conductivité hydraulique est plus élevée, facilitant ainsi l'écoulement de l'eau vers le bas. Le cas M4G2 ressemble au cas M4G1. Le contraste granulométrique entre résidus et couverture favorise l'apparition d'un effet de barrière capillaire, mais l'évaporation cause une désaturation de la couverture. Lorsque les résidus sous-jacents sont désaturés et que leur conductivité hydraulique est faible, l'eau ne peut pas remonter assez vite de la nappe pour combler les pertes par évaporation dans la couverture. On constate ainsi que la couverture demeure proche de la saturation pour le cas où la nappe est à -2 m, mais se désature sous $S_r = 50\%$ dans les autres cas. La figure 7.20 confirme l'importance du phénomène d'évaporation dans la couverture.

La couverture G3 est constituée des résidus les plus grossiers (AEV ≈ 0,4 m ; $k_{sat} = 1{,}95.10^{-5}$ m/s) et elle ne permet pas le développement d'un effet de barrière capillaire avec les résidus Manitou (même avec M4). Dans tous les cas, la saturation dans la couverture passe rapidement sous la barre de 30% pour M3G3 et 20% pour M4G3. On note que dans les cas M3G3 et M4G3, la phase de dégel (CRE en drainage) mène à $S_r = 80\%$ et 40% respectivement. Les résidus G3 pourraient éventuellement jouer le rôle de barrière à l'évaporation (on constate à la figure 7.20 que l'effet de l'évaporation se fait beaucoup moins sentir lorsque la couverture est constituée de résidus Goldex G3 que dans les autres cas).

Parmi les exemples présentés ici, les cas M3G3 et M4G3 sont les pires cas compte tenu du fait que le degré de saturation de la couverture est inférieur 50% la plupart du temps (ce qui n'est pas suffisant pour limiter efficacement le flux d'oxygène).

Au regard de ces résultats, on peut donc déduire que :

- les résidus G1 (AEV ≈ 4 m ; k_{sat} = 1,23.10^{-7} m/s), fins et denses, demeurent saturés dans presque toutes les conditions. Ils forment un bris capillaire avec les résidus Manitou considérés ici. L'évaporation est la principale cause de la désaturation de la couverture. Les propriétés des résidus G1 sont cependant jugées peu réalistes, notamment parce que les résidus Goldex sont déposés sous forme de boue et ne pourront jamais atteindre une telle densité sans se fracturer (Saleh Mbemba, 2010) ;
- les résidus G2 (AEV ≈ 2 m ; k_{sat} = 6,33.10^{-7} m/s) correspondent à un cas moyen (granulométrie et indice des vides moyens), assez représentatif de ce que l'on peut rencontrer sur le terrain. Leur comportement est fonction des conditions environnantes (climat, profondeur de nappe). Ils ne seraient efficaces ici (i.e. leur degré de saturation demeurerait supérieur à 80%) que si les résidus Manitou sont grossiers et la nappe peu profonde (cas M4G2 avec nappe à -2 m) ;
- les résidus G3 (AEV ≈ 0,4 m ; k_{sat} = 1,95.10^{-5} m/s) sont grossiers et lâches. Ils se désaturent dans tous les cas et ne constituent donc pas une barrière à l'oxygène efficace. Par contre, ils pourraient jouer le rôle de barrière à l'évaporation en limitant la désaturation des résidus sous-jacents (dans le cas d'une nappe élevée, où les résidus Manitou seraient saturés).

En ce qui concerne les résidus Manitou, on constate :

- les résidus M3 (AEV ≈ 10 m ; k_{sat} = 3,62.10^{-7} m/s) ont un AEV de l'ordre de celui mesuré dans les colonnes. Ils peuvent se désaturer dans les cas les plus critiques. Ils correspondent à la plupart des échantillons prélevés sur le terrain (granulométrie fine mais indice des vides assez élevé) ;
- enfin, les résidus M4 (AEV ≈ 0,6 m ; k_{sat} = 1,35.10^{-4} m/s) sont les plus grossiers et les plus lâches. Les résidus partiellement oxydés présents à la surface du parc ont souvent des caractéristiques similaires. Ils ont un AEV faible et se désaturent facilement. Il s'agit à toute fin pratique d'un matériau sableux.

7.4.4 Résultats - Site Selbaie

Les mêmes simulations que pour Manitou ont été réalisés avec les résidus Selbaie et la couverture de moraine. On compare les mêmes caractéristiques que précédemment, à savoir l'évolution du degré de saturation au cours du temps, 20 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture (figure 7.21), les profils du degré de saturation le jour le plus sec de l'année (8 juillet) ainsi qu'à la fin de l'hiver (figure 7.22), ainsi que les profils de pressions aux mêmes dates (figure 7.23).

De façon générale, on observe que:

- la base de la couverture Mor1 (AEV ≈ 2 m ; k_{sat} = 5,0.10^{-7} m/s) montre un S_r > 70% quelque soit la profondeur de nappe (on n'utilise pas de modèle d'hystérésis de la CRE dans ces cas là) ;
- les résidus S2 (AEV ≈ 9 m ; k_{sat} = 1,4.10^{-7} m/s) demeurent proches de la satiation (S_{rmax}, voir tableau 7.7) en tout temps, et ce, quelque soit la position de la nappe ;
- la couverture Mor3 (AEV ≈ 0,2 m ; k_{sat} = 5,0.10^{-5} m/s) se désature dans tous les cas à des valeurs très faibles (S_r < 40-50%).

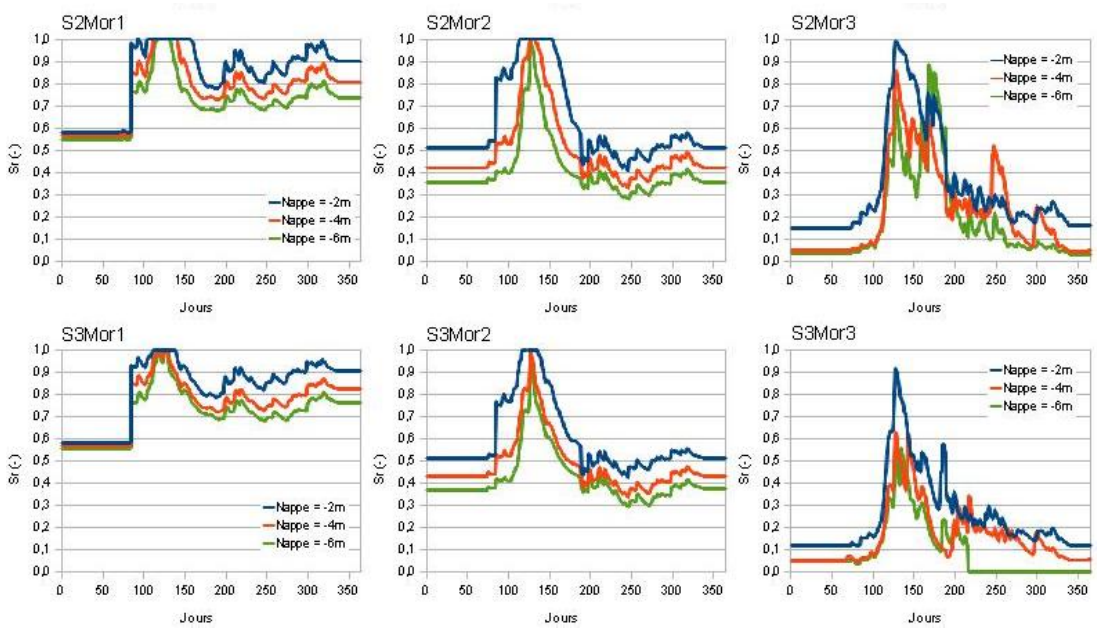


Figure 7.21: Variation du degré de saturation simulé dans les couvertures, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture, pour toute une année et pour chaque couple de matériaux Selbaie et moraine. On présente dans chaque graphique les résultats pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m sous l'interface résidus-couverture)

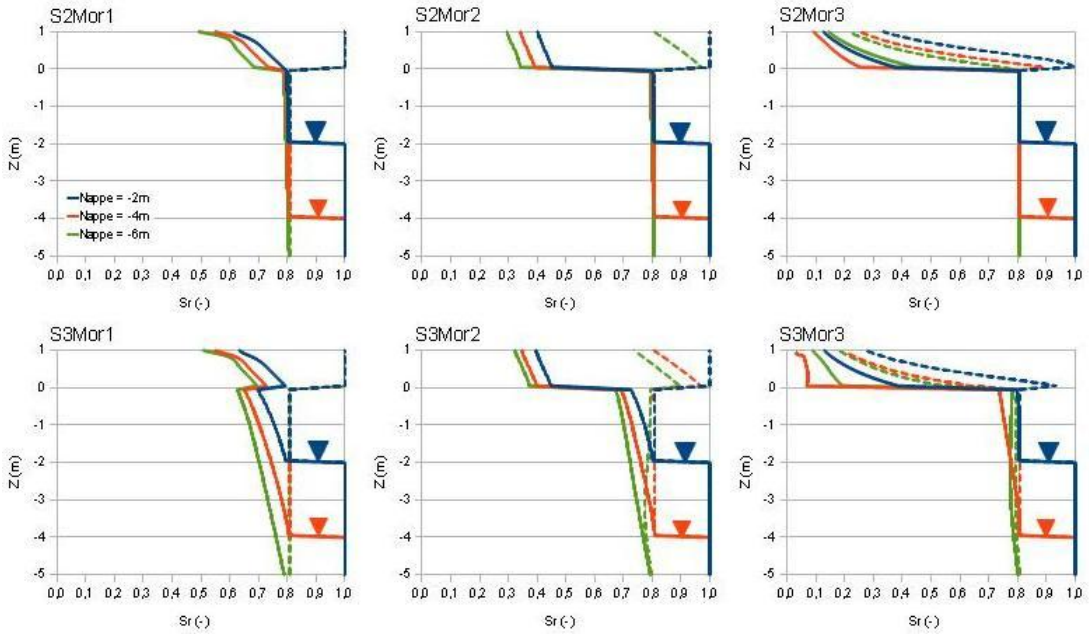


Figure 7.22: Profils du degré de saturation simulé pour chaque couple de matériaux Selbaie et moraine, pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m), le jour le plus sec de l'année (8 juillet ; trait plein) et à la fin de l'hiver (pointillés)

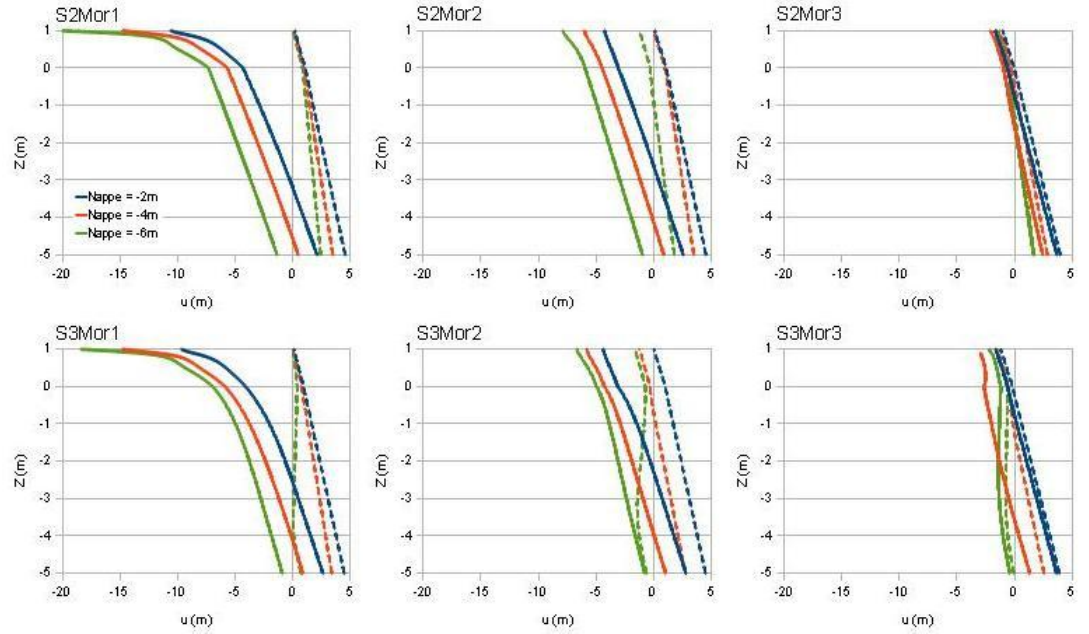


Figure 7.23: Profils de la pression interstitielle simulée pour chaque couple de matériaux Selbaie et Moraine, pour trois profondeurs de nappe différentes (-2 m, -4 m et -6 m), le jour le plus sec de l'année (8 juillet ; trait plein) et à la fin de l'hiver (pointillés)

Plus spécifiquement, on constate que les résultats des modèles S2Mor1 et S3Mor1 sont très semblables. Dans ces deux cas, les résidus se désaturent peu et la couverture reste à des degrés de saturation entre 40 et 70%. Plus la nappe est haute, plus le degré de saturation dans la couverture est élevé. Dans le cas où la nappe est située à 2 mètres sous l'interface, le degré de saturation de la base de la couverture reste supérieur à 80% toute l'année pour Mor1, même les jours les plus secs, ce qui devrait permettre de limiter les flux d'oxygène vers les résidus sous-jacents. Toutefois, on constate que lorsque la profondeur de la nappe augmente, le degré de saturation S_r du recouvrement diminue.

Quelques soient les résidus sous-jacents, la moraine Mor2 (AEV ≈ 0,7 m ; $k_{sat} = 2{,}5.10^{-6}$ m/s) a tendance à se désaturer rapidement jusqu'à des valeurs de S_r comprises entre 40 et 50%, exception faite du cas où elle est installée sur des résidus S1 et où la nappe est à -2 m. Dans ce cas, le degré de saturation à la base de la couverture est supérieur à 70%. Dans les autres cas, après la phase de dégel où les couvertures se saturent (ce qui peut durer entre 25 et 100 jours), le degré de saturation diminue rapidement jusqu'à des valeurs autour de 50% qui seront maintenues jusqu'à l'hiver suivant.

Les couvertures de moraine Mor3 se désaturent plus rapidement que celles constituées de moraine Mor1 ou Mor2. Même durant la phase de dégel, le degré de saturation ne dépasse par 50% parfois selon les configurations. Cette couverture ne joue aucun rôle de barrière à l'oxygène ou à l'eau. Les précipitations s'infiltrent rapidement et traversent la couverture jusqu'aux résidus. Les journées les plus sèches, le degré de saturation des couvertures M3 peut être aussi bas que 10%. Par contre, Mor3 peut servir de barrière à l'évaporation ; on constate sur les profils de degrés de saturation que les résidus sous-jacents (S1, S2 ou S3) gardent des degrés de saturation plus élevés qu'avec les autres couvertures. La figure 7.40 permet d'ailleurs de confirmer que les succions développées dans la couverture de moraine Mor3 sont beaucoup plus faibles que dans les autres simulations.

Au regard de ces résultats, on peut donc conclure que :

- la moraine Mor1 (AEV ≈ 2 m ; $k_{sat} = 5{,}0.10^{-7}$ m/s) peut former une couche de rétention d'eau assez efficace dans certains cas (S1Mor1 et S3Mor1 notamment). Néanmoins, ses propriétés (granulométrie très fine, indice des vides faibles ; qui ressemblent aux résidus Goldex G2) semblent irréalistes par rapport aux observations de terrain ;

- la moraine Mor2 (AEV ≈ 0,7 m ; k_{sat} = 2,5.10^{-6} m/s) constitue un cas moyen dont la rétention d'eau est généralement faible, excepté dans certains cas lorsque les résidus sous-jacents sont fins et la nappe haute ;
- la moraine Mor3 (AEV ≈ 0,2 m ; k_{sat} = 5,0.10^{-5} m/s) est lâche et grossière. Elle se désature rapidement et elle peut servir à protéger les matériaux sous-jacents des effets de l'évaporation (et limiter leur désaturation si la nappe est élevée).

Au vu de ces remarques, on considérera donc pour la suite de l'étude (en particulier pour l'analyse des alternatives à la méthode de recouvrement proposée), les matériaux les plus représentatifs et les plus à risques et susceptibles de se désaturer et de produire du DMA, à savoir :

- les résidus réactifs M3 et M4 d'une part et les résidus S2 et S3 d'autre part ;
- les résidus Goldex G2 et la moraine Mor2 pour la couverture.

7.5 Comparaison de recouvrements alternatifs

7.5.1 Objectifs et méthode

Compte tenu des observations précédentes, il semblerait que pour les deux sites à l'étude, un recouvrement monocouche de 1 mètre d'épaisseur s'avère insuffisant pour limiter le flux d'oxygène (et donc empêcher la génération d'eaux acides), surtout lorsque la nappe est située à une certaine profondeur (supérieure à 0,5 à 1 fois l'AEV des résidus ; Ouangrawa, 2007).

Aussi cherche-t-on à évaluer des méthodes de recouvrement alternatives (de type monocouche et multicouche), qui, au moyen de modifications limitées, permettrait d'assurer une meilleure efficacité (vis-à-vis de la limitation du flux d'oxygène).

Les propriétés des résidus et matériaux de couverture, et en particulier les courbes de rétention d'eau et les conductivités hydrauliques saturées, demeureront les mêmes que dans l'analyse paramétrique. Les conditions météorologiques seront celles du terrain (voir conditions climatiques détaillées à la section 7.1.6). Les alternatives proposées sont considérées comme étant réalistes par rapport à l'état et au contexte des sites.

L'estimation de l'efficacité des différentes couvertures se fera suivant les paramètres suivants :

- variations du degré de saturation dans la couche de rétention d'eau (section 2.5.2), à 1,40 mètre sous la surface (i.e. 10 cm au-dessus du front de gel le plus profond ; voir plus bas). Dans le cas où le front de gel (1,5 m sous la surface) pénétrerait dans les résidus réactifs, le point de comparaison est situé 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture ;
- profils du degré de saturation le jour le plus sec de l'année. On sait que celui-ci n'est pas toujours exactement le même d'un modèle à l'autre, suivant les propriétés des matériaux et les temps d'infiltration. Néanmoins, il a été établi empiriquement que le 8 juillet (jour 188) était habituellement proche du jour où le degré de saturation dans les couvertures était le plus faible ;
- flux d'oxygène traversant la couverture par diffusion. Ces flux seront calculés au moyen du logiciel Vadose/W (version 7.8). Les matériaux de couvertures (résidus Goldex, Moraine et roches stériles) sont considérés comme non réactifs. Le coefficient du taux de réaction K_r des résidus Manitou est fixée à $2{,}5.10^{-5}$ s^{-1} (~800 $années^{-1}$) et celle des résidus Selbaie à $1{,}0.10^{-5}$ s^{-1} (~300 $années^{-1}$), ce qui correspond aux valeurs moyennes mesurées sur les échantillons de résidus au laboratoire (voir chapitre 3).

Les flux d'oxygène à travers les résidus exposés ont été estimés à partir des essais de consommation réalisés sur le terrain (chapitre 4) : la valeur du flux varie entre 24 000 g/m²/an et 80 000 g/m²/an (58 000 g/m²/an en moyenne, ou encore 1800 mol/m²/an) pour les résidus Manitou exposés, et elle est d'environ 15 000 g/m²/an (470 mol/m²/an) pour les résidus Selbaie (pour le test ayant donné une valeur de K_r proche de celle mesurée au laboratoire). Les simulations avec Vadose/W des résidus non recouverts (avec nappe à -4 m) ont donné des valeurs de flux d'oxygène de l'ordre de 45 000 g/m²/an pour les résidus Manitou et de 28 000 g/m²/an pour les résidus Selbaie. Enfin, pour les résidus Manitou, Bussière et al. (2011) ont mesuré des flux de l'ordre de 16 000 g/m²/an (500 mol/m²/an) dans leurs colonnes témoin, et Aubertin et al. (1999) rapportent des flux d'oxygène variant de 330 à 14 400 g/m²/an (respectivement 10,4 à 449,7 mol/m²/an) pour leur cellule expérimentale de contrôle sur le terrain. Ces flux sans couverture sont plus faibles que ceux mesurés et estimés ici, mais ils correspondent à des résidus moins riches en pyrite (teneurs en pyrite de 7% pour Bussière et al., 2011, et 4% pour Aubertin et al., 1999) et à des conditions hydrogéologiques différentes. Afin de comparer le comportement

des recouvrements alternatifs simulés par la suite, leur efficacité relative sera évaluée par rapport à l'objectif usuel de 50 g/m²/an (Aubertin et al., 1999, Dagenais, 2005) ; cela signifie qu'une couverture avec un flux inférieur à 50 g/m²/an aura une efficacité supérieure à 100%.

On utilisera ici les courbes de rétention d'eau en drainage des matériaux de couverture (ce qui permettra une estimation plus représentative du degré de saturation dans Vadose/W, et donc du coefficient de diffusion D_e de l'oxygène). La courbe de rétention d'eau des résidus est celle en mouillage, car on considère que les résidus ont été exposés assez longtemps pour se désaturer sous la valeur de satiation maximale S_{rmax}. Sous la nappe, les résidus sont considérés saturés.

Vadose/W ne prend pas en compte les conditions climatiques pour le calcul du flux d'oxygène, et les flux en hiver dans les modèles ne sont pas nuls, alors que la couche de neige et de glace bloquerait en pratique les mouvements de gaz. Les estimations des flux sont donc corrigées en imposant un flux nul pendant les jours d'hiver (i.e. du jour 0 au jour 125 et du jour 319 au jour 365) ; le flux d'oxygène est donc calculé pour 194 jours.

Pour établir des conditions initiales réalistes dans les modèles numériques, on réalise une simulation préliminaire d'une durée de quelques mois (juillet-décembre) avec la nappe à la profondeur souhaitée. Au dégel, on observe généralement sur les sites (au Québec) qu'une couche de matériaux gelés reste présente en profondeur (entre 1 et 2 mètres sous la surface du sol) quelques temps après le début du dégel, l'eau (produite par la fonte des neiges) s'accumulant au sommet de cette couche de matériaux gelés. Finalement, après une trentaine de jours, la glace finit par fondre et l'écoulement se fait normalement. Pour simuler ce phénomène, on introduit dans les simulations une couche imperméable à -1,50 m sous la surface pendant toute la durée de l'hiver et 40 jours après que les températures au sommet des simulations soient devenues positives (soit durant les 125 premiers jours de l'année). Ceci empêche l'eau de se drainer profondément trop rapidement, de sorte qu'elle tend à s'accumuler dans la zone supérieure. Cette approche n'a pas tant pour objectif de simuler avec précision le comportement des couvertures l'hiver, mais de permettre de les resaturer à la fonte des neiges (tel qu'observé sur le terrain).

La figure 7.24 présente un exemple de calcul de flux d'oxygène (modèle M3G2Cx1 avec une nappe à -2 m, présenté ci-après). Vadose/W donne les flux journaliers estimés au sommet de la couverture. Un flux nul est imposé lorsque le sol est gelé, et les résultats sont intégrés sur 365 jours pour obtenir une estimation du flux d'oxygène annuel (hiver compris).

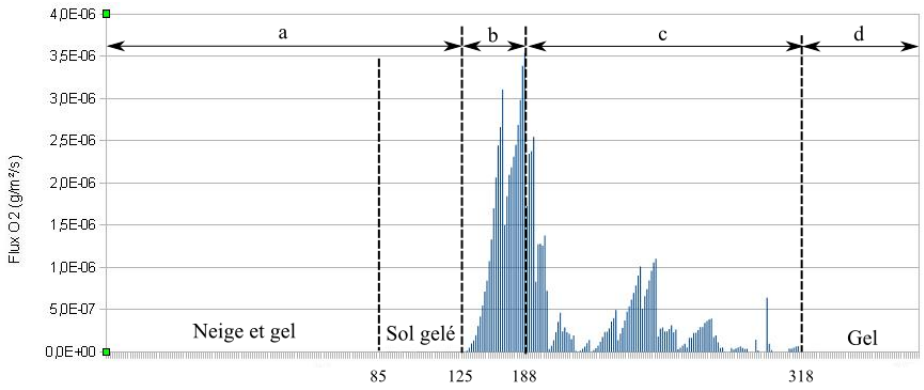


Figure 7.24: Variations du flux d'oxygène (exprimé en g/m²/s) simulé avec Vadose/W et corrigé, au sommet du modèle M3G2Cx1 avec une nappe à -2 m, pour chaque jour d'une année.

Dans la figure 7.24, la phase a correspond au début de l'année, alors que la surface est gelée (ou qu'une couche de glace demeure plus en profondeur) ; le flux d'oxygène est nul pendant cette période. On considère que la neige accumulée sur le parc commence à fondre au jour 85 ; cela contribue à resaturer progressivement (au moins partiellement) les matériaux sur une profondeur d'un mètre et demi. La phase b est une phase de drainage et séchage : la couverture se désature et le flux d'oxygène augmente jusqu'à atteindre un pic autour du jour 188. Pendant le reste de l'année (phase c), les périodes de précipitations et de sécheresse alternent, occasionnant une fluctuation des teneurs en eau et du flux d'oxygène à travers la couverture. Enfin, à partir du jour 319, la surface est à nouveau gelée et le flux d'oxygène à travers la couverture est considéré nul (phase d). Cette procédure est appliquée aux divers scénarios simulés dans ce qui suit.

La liste des simulations décrites ci-après est présentée à l'annexe 7.8.

7.5.2 Recouvrements monocouches de diverses épaisseurs

Puisque l'évaporation est un phénomène clef dans la désaturation de la monocouche (voir section 7.5), la première étape de l'étude consiste à tester l'effet de l'épaisseur de la couverture. On veut évaluer si une plus grande épaisseur de matériau limiterait l'effet de l'évaporation à une partie du recouvrement. Trois profondeurs de nappe sont considérées, soit -2 m, -4 m et -6 m, (mesurées à partir de l'interface résidus-couverture, z = 0m). Dans le cas du parc à résidus Manitou, on simule également le cas où la nappe serait située à -1 m de profondeur, étant donné que c'est l'objectif actuellement visé sur le site. On a jugé que ceci n'était pas requis sur le site Selbaie, en raison des

variations beaucoup plus importantes du niveau de la nappe (voir section 4.2.2.4) et du caractère plus conceptuel de l'étude (le recouvrement est déjà construit).

7.5.2.1 Site Manitou

Le premier cas de cette série de simulations considère les résidus Manitou M3 (AEV ≈ 10 m ; k_{sat} = 3,62.10^{-7} m/s) et M4 (AEV ≈ 0,6 m ; k_{sat} = 1,35.10^{-4} m/s) et leur couverture de résidus Goldex G2 (AEV ≈ 2 m ; k_{sat} = 6,33.10^{-7} m/s). Les variations des degrés de saturation dans les couvertures sont présentées à la figure 7.25. On rappelle que pour les couvertures de 2 m et 4 m d'épaisseur, on présente les degrés de saturation 10 cm au-dessus de la position de la couche de « glace » (soit 1,40 m sous la surface de la couverture). Pour les couvertures d'une épaisseur de 1 m, le gel se propage dans les résidus réactifs ; on présente alors les résultats 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture.

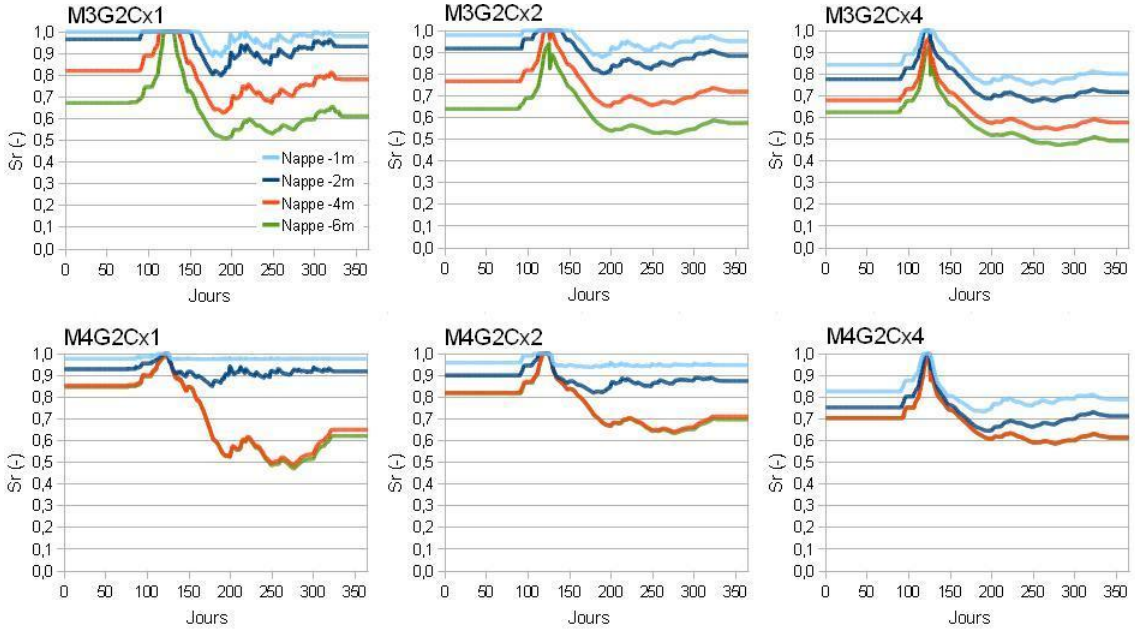


Figure 7.25: Variation du degré de saturation simulé pour une couverture monocouche (M3G2 et M4G2), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture pour la couverture de 1 m d'épaisseur (Cx1) ou 1,40 m sous la surface pour les couvertures de 2 m et 4 m d'épaisseur (respectivement Cx2 et Cx4) ; les résultats sont montrés pour une année et pour quatre profondeurs de nappe différentes

Les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (188^{e} jour, soit le 8 juillet) sont comparés aux figures 7.26 et 7.27. On montre également les profils à la fin de l'hiver (jour 125). Les flux d'oxygène estimés sur l'année au moyen de Vadose/W sont présentés au tableau 7.10. On calcule aussi l'efficacité relative du recouvrement par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an.

On constate à la figure 7.25 que :

- plus la nappe est profonde, plus la désaturation du sommet de la couverture est marquée. Par exemple, dans le cas M3G2Cx1, avec une nappe à -1 m, le degré de saturation 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture reste supérieur à 90% toute l'année, alors qu'il peut atteindre des valeurs aussi basses que 50% lorsque la nappe est à -6 m ;
- plus la couverture est épaisse, moins le sommet de la couverture reste saturé longtemps après la fin du dégel. Ainsi, dans le cas M3G2Cx1, la saturation à la base de la couche de rétention est maintenue pendant plus de 50 jours lorsque la nappe est à -1 m, alors que dans le cas M3G2Cx4 le degré de saturation diminue quelques jours après avoir atteint 100%. Cela n'est pas forcément représentatif d'un mauvais comportement de la couverture dans son ensemble, car on se situe dans ce dernier cas près de la surface. Le degré de saturation peut être différent plus près de l'interface avec les résidus, surtout dans le cas où la couverture a 4 m d'épaisseur (voir figure 7.26) ;
- la granulométrie des résidus réactifs a peu d'influence sur le comportement de la couverture, excepté dans certains cas où la nappe est très profonde. Ainsi pour les résidus M4, le degré de saturation S_r dans la couverture est similaire lorsque la nappe est située à -4 m ou -6 m, ce qui indique que les résidus M4, relativement grossiers, ont atteint leur teneur en eau résiduelle à l'interface avec la couverture dans les deux cas (d'après la figure 7.34, la succion correspond effectivement à leur pression d'entrée d'eau, autour de -5 m) ;
- plus la couverture est épaisse, plus les variations du degré de saturation sont « lisses » et moins le degré de saturation dans la couverture réagit aux variations des conditions climatiques.

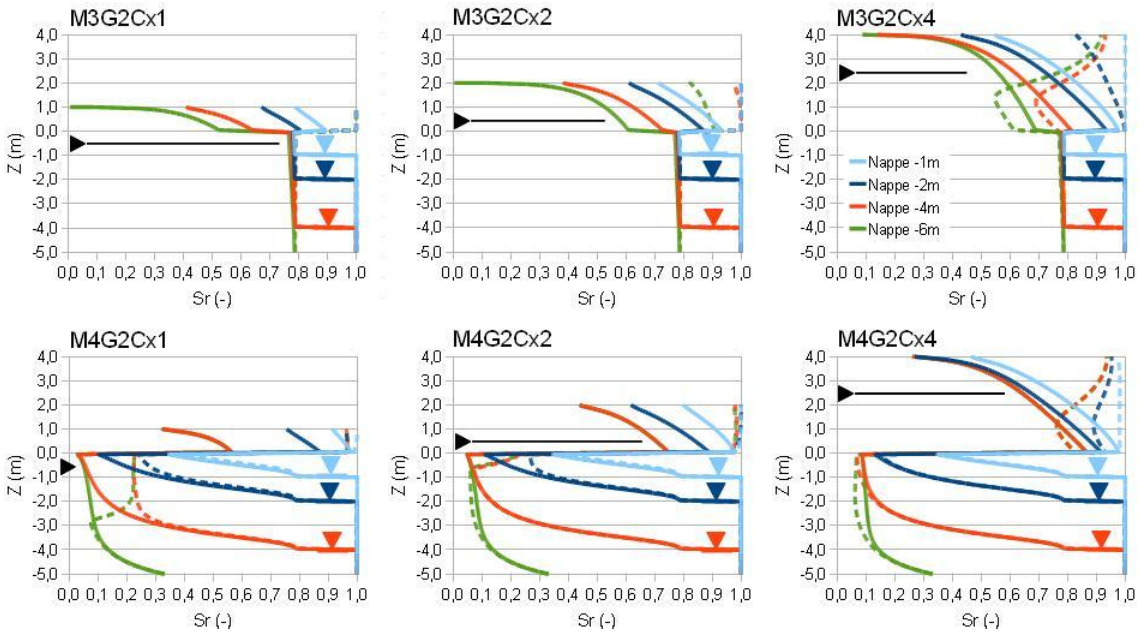


Figure 7.26: Profils du degré de saturation simulé pour une couverture monocouche (M3G2 et M4G2) le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour quatre profondeurs de nappe. On indique également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés). Cx1 correspond à une couverture de 1m, Cx2 de 2 m et Cx4 de 4 m. La flèche noire indique la profondeur de la zone gelée (i.e. couche imperméable dans le modèle)

L'observation des profils du degré de saturation à la figure 7.26 permet de compléter l'analyse des résultats précédents. On observe tout d'abord que le mètre et demi supérieur de la couverture ne se resature pas complètement dans tous les cas à la fin de l'hiver. Lorsque la couverture est très épaisse (4 m) et la nappe relativement profonde (< -4 m), le degré de saturation obtenu au sommet des simulations est autour de 90% à la fin de l'hiver. Par ailleurs le haut de la couverture se désature largement pendant l'été, dans tous les cas, avec des variations du degré de saturation entre le sommet et le bas de la couche pouvant atteindre 60% (M4G2Cx4 par exemple). Dans le cas des résidus M4 (grossiers), un bris capillaire semble se former à l'interface résidus-couverture, mais celui-ci n'est pas suffisant pour empêcher la désaturation de la couverture.

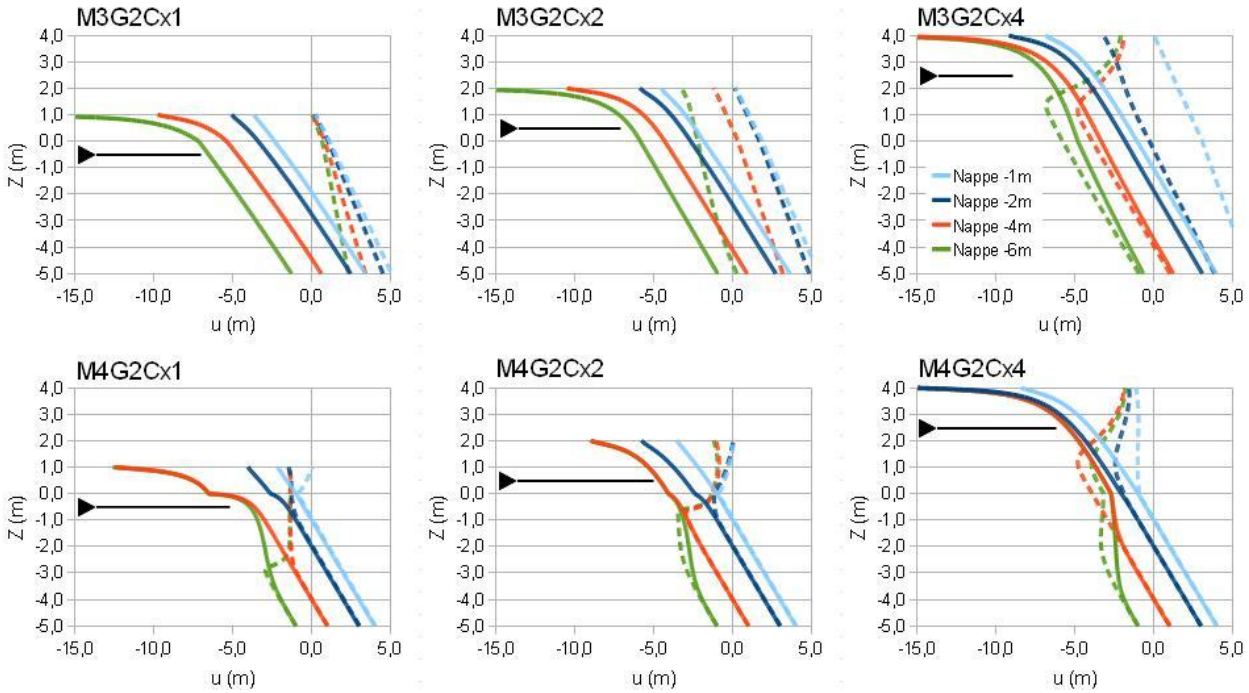


Figure 7.27: Profils des pressions interstitielles simulées pour un recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour quatre profondeurs de nappe. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés). Cx1 correspond à une couverture de 1m, Cx2 de 2 m et Cx4 de 4 m. La flèche noire indique profondeur de la zone gelée au cours de l'hiver

La figure 7.27 permet de constater que l'effet de l'évaporation est important (i.e. la pression interstitielle u est très inférieure aux valeurs attendues) au sommet des couvertures (mais presque négligeable dans les résidus), en particulier lorsque la nappe est profonde (< -4 m) ou que la couverture est épaisse (4 m).

On observe au tableau 7.10 que :

- plus la nappe est profonde, plus le flux d'oxygène à travers la couverture est élevé ;
- plus la couverture est épaisse, plus le flux est faible ;
- dans tous les cas, les flux sont réduits comparativement aux valeurs de flux estimées en l'absence de recouvrement (autour de 58 000 g/m²/an).

Tableau 7.10: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet du recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2), pour différentes épaisseurs de couverture et différentes profondeurs de nappe (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau (épaisseur couv.)	Nappe -1m		Nappe -2m		Nappe -4m		Nappe -6m	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
M3G2 (1m)	7,24	691%	62,1	81%	552	9%	1210	4%
M3G2 (2m)	2,79	>999%	36,0	140%	326	15%	763	7%
M3G2 (4m)	1,07	>999%	28,4	176%	216	23%	444	11%
M4G2 (1m)	0,87	>999%	41,3	121%	2110	2%	2240	2%
M4G2 (2m)	0,89	>999%	29,2	171%	393	13%	411	12%
M4G2 (4m)	1,40	>999%	40,4	124%	145	34%	148	34%

Pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à -2 m, Bussière et al. (2011) ont mesuré des flux d'oxygène compris entre 800 et 2500 g/m²/an (soit entre 48 et 145 mol/m²/an sur 365 jours ; les résultats ont été ici corrigés pour 194 jours pour les comparer plus facilement aux résultats de simulations). Ces flux sont beaucoup plus élevés que ceux simulés, mais les conditions hydrogéologiques en laboratoire étaient également différentes (succession de cycles de mouillage-séchage plus rapide, couverture plus sèche).

On en déduit que pour améliorer l'efficacité d'un recouvrement monocouche sur le site Manitou, il serait avantageux de remonter le niveau de la nappe et d'installer une couverture relativement épaisse. On note que le gain d'efficacité (en terme de flux) n'est par linéairement relié à l'épaisseur du recouvrement. D'un point de vue optimisation, considérant les coûts induits, il n'est pas certain qu'il soit très intéressant de préférer une couverture de 4 m d'épaisseur à une couverture de 2 m. Par contre, le gain entre une couverture de 1 m et de 2 m d'épaisseur est très net.

Remarquons aussi que les résultats en terme de flux semblent indiquer qu'une couverture monocouche en présence d'une nappe à -1 m est très efficace pour les conditions considérées ici. Les simulations géochimiques (voir section 8.5.2) indiquent cependant que malgré les faibles flux d'oxygène estimés, ils pourraient suffire à générer une certaine quantité de DMA.

Effets des conditions climatiques

On a jusqu'ici simulé des conditions climatiques moyennes (avec 212 mm de pluie pendant les mois de juillet et août). Il peut arriver occasionnellement que les précipitations soient plus faibles durant l'été. Afin de tester cette possibilité, on a simulé une année particulièrement sèche, dans le cas où la nappe serait située à -2 m, pour plusieurs épaisseurs de recouvrement monocouche. Pour ce faire, on utilise les mêmes données climatiques que précédemment, mais avec des précipitations nulles pendant les mois de juillet et août. De telles conditions ont été observées sur le terrain et sont jugées réalistes ; elles ont été employées dans le cadre d'autres études et travaux de simulation (e.g. Aachib, 1997; Aubertin et al., 1999; Dagenais, 2005). Cette conceptualisation ne tient pas compte du fait qu'une année sèche se traduirait également par la baisse du niveau de la nappe. Les simulations pourraient donc surestimer les degrés de saturation.

On présente les résultats de ces calculs aux figures 7.28 à 7.30. Les profils du degré de saturation et de pression sont présentés pour la journée où le degré de saturation dans les couvertures est le plus faible, soit le 31 août (jour 243) dans ce cas, en comparaison avec les profils à la fin de l'hiver. Les flux d'oxygène ont également été estimés dans ces conditions et sont présentés au tableau 7.11.

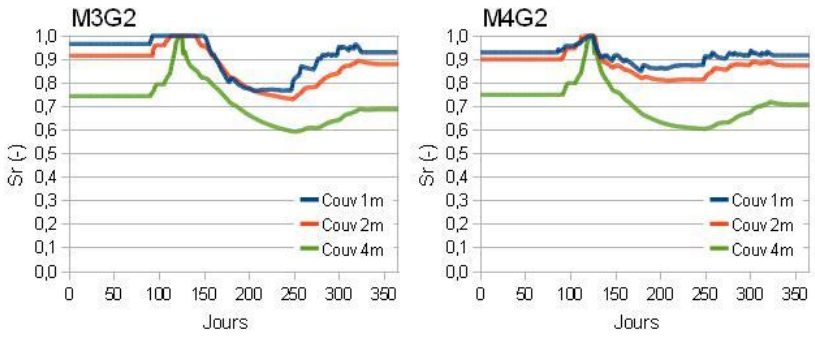


Figure 7.28: Variation du degré de saturation simulé pour un recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2) avec une nappe située à -2 m, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture ; les résultats sont montrés pour une année sans précipitations aux mois de juillet et août, et pour différentes épaisseurs de couverture

On observe à la figure 7.28 que le degré de saturation dans la couverture à la fin de l'année simulée est comparable aux valeurs obtenues pour une année standard. Le degré de saturation diminue toutefois à des valeurs plus basses au cours de l'été (la différence de S_r entre une année sèche et normale peut être de 20% dans certains cas), mais les précipitations de l'automne peuvent resaturer partiellement la couverture. Globalement, le flux d'oxygène devrait donc être augmenté au cours de l'été.

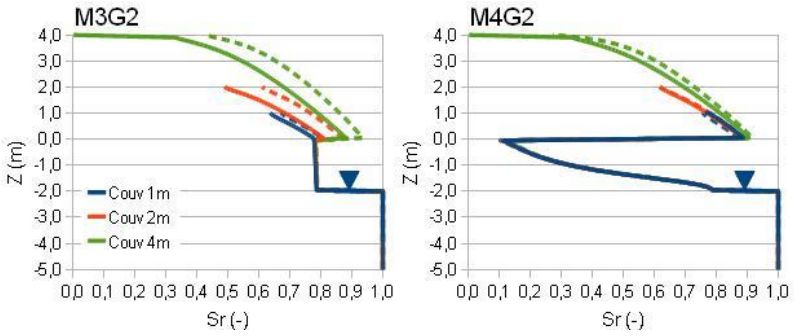


Figure 7.29: Profils du degré de saturation simulé pour un recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 243 ; 31 août) pour trois épaisseurs de couverture. On montre également le profil du degré de saturation à la même date pour une année normale (pointillés)

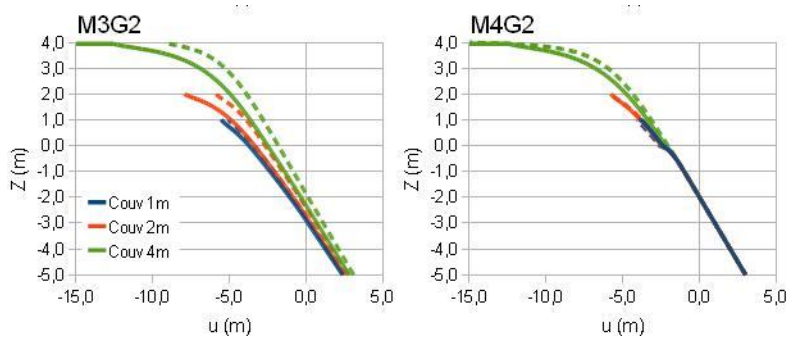


Figure 7.30: Profils des pressions interstitielles simulées pour un recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 243) pour trois épaisseurs de couverture. On montre également le profil de pressions à la même date pour une année normale (pointillés)

On observe à la figure 7.29 que la couverture se désature d'avantage au cours de l'été que dans le cas d'une année normale. Le degré de saturation au sommet des couvertures au jour 243 est environ 15% plus faible que dans le cas précédent. On constate également à la figure 7.30 que les effets de l'évaporation sur la succion sont beaucoup plus marqués pour une année sèche et qu'elle peut affecter les résidus sur une plus grande profondeur.

Les flux d'oxygène présentés dans le tableau 7.11 indiquent qu'une telle sécheresse a un effet marqué sur l'efficacité des couvertures. Tous les flux augmentent largement (doublent ou triplent en général) par rapport au cas d'une année normale (tableau 7.10). Avec les résidus M3, lorsque la couverture a une épaisseur de 1 ou 2 mètres, le flux devient largement supérieur à l'objectif de 50 g/m²/an, ce qui indique qu'elles sont relativement peu efficaces à empêcher le passage de l'oxygène dans ces conditions. Les couvertures de 4 mètres d'épaisseur sont plus efficaces que celles moins épaisses, même dans ces conditions de sécheresse prolongée.

Tableau 7.11: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet du recouvrement monocouche (M3G2 et M4G2) pour différentes épaisseurs de couverture et une nappe située à -2 m, pour une année sèche (en g/m²/an) ; on présente également l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an) et la comparaison avec les résultats obtenus pour une année normale

Matériau (épaisseur couv.)	Année sèche		Année normale	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
M3G2 (1m)	179	28%	62,1	81%
M3G2 (2m)	100	50%	36,0	140%
M3G2 (4m)	49,1	102%	28,4	176%
M4G2 (1m)	60,5	83%	41,3	121%
M4G2 (2m)	45,0	111%	29,2	171%
M4G2 (4m)	47,0	106%	40,4	124%

On constate que dans le cas d'une période sèche (sans précipitations pendant les mois de juillet et d'août), le système devient moins efficace ; cet effet pourrait être plus marqué encore sans l'hypothèse que la nappe se maintenait à élévation constante.

7.5.2.2 Site Selbaie

Les mêmes analyses que pour les résidus Manitou ont été réalisées sur les résidus Selbaie et leur couverture de moraine. On considère ici uniquement une année normale (données climatiques non modifiées). Les résultats des simulations sont présentées aux figures 7.31 (variations du degré de saturation 1,40 m sous la surface quand la couverture est de 2 m ou 4 m d'épaisseur ou 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture dans les autres cas), 7.32 (profils du degré de saturation le jour le plus sec de l'année, soit le jour 188 (8 juillet) en comparaison avec le profil à la fin de l'hiver (jour 125)) et 7.33 (profils de pressions interstitielles aux mêmes dates).

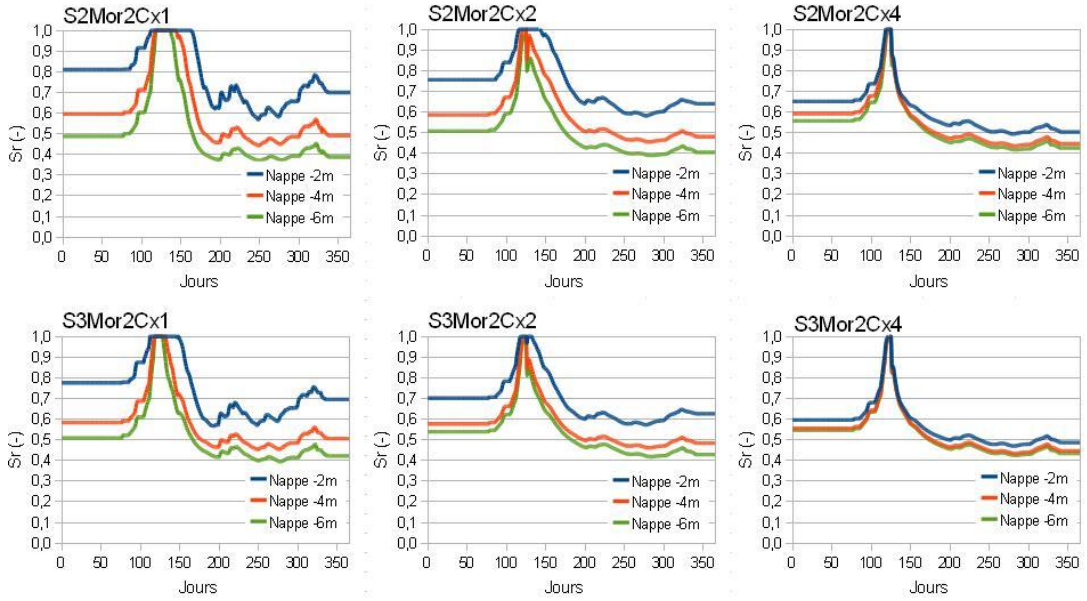


Figure 7.31: Variation du degré de saturation pour un recouvrement monocouche (S3Mor2 et S4Mor2), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture pour la couverture de 1 m d'épaisseur (Cx1) ou 1,40 m sous la surface pour les couvertures de 2 m et 4 m d'épaisseur (respectivement Cx2 et Cx4) ; on présente les résultats pour une année et pour trois profondeurs de nappe

On observe à la figure 7.31 des tendances générales similaires au cas Manitou. Les variations du degré de saturation sont plus progressives lorsque la couverture est plus épaisse. Plus la nappe est profonde, plus la couverture a tendance à se désaturer. Pour le site Selbaie, la couverture (matériau plus grossier) se désature d'avantage que dans le cas Manitou et le degré de saturation à la base de la couche de moraine se situe autour de 70% ou même 60% à la fin de l'été, même lorsque la nappe n'est qu'à -2 m. Pour une nappe à -4 m et -6 m, le degré de saturation est

généralement inférieur à 50% et 40% pour S2 et S3 respectivement, quelque soit l'épaisseur du recouvrement. On s'attend donc à ce que les flux d'oxygène soient élevés à travers ces couvertures.

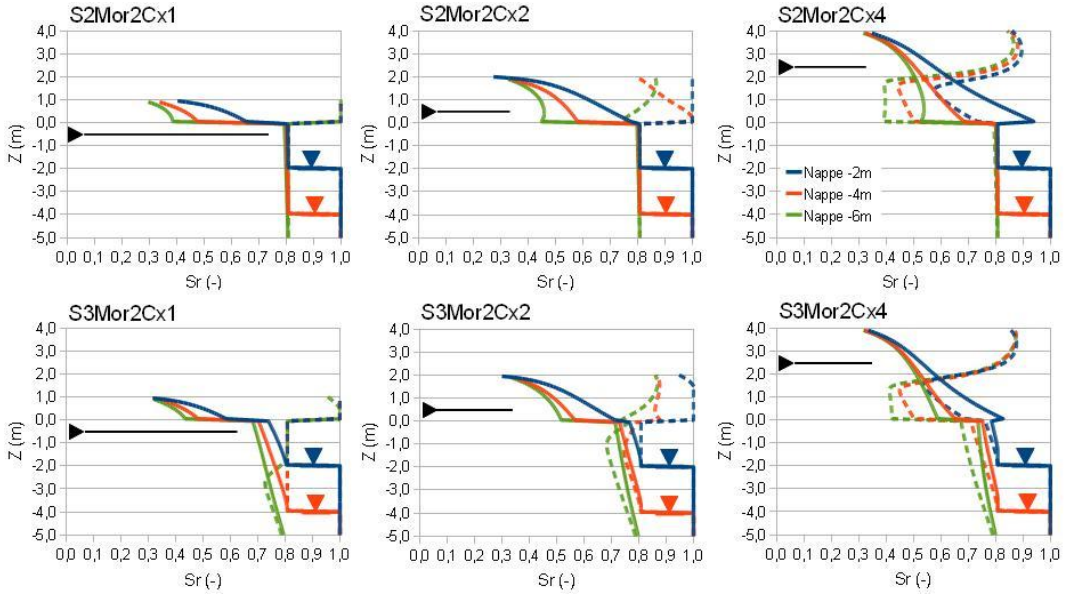


Figure 7.32: Profils du degré de saturation simulé pour un recouvrement monocouche (S3Mor2 et S4Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour trois profondeurs de nappe. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés) et la profondeur de la zone gelée (flèche)

La figure 7.32 confirme les observations précédentes. On constate que les résidus Selbaie S2 (AEV ≈ 9 m ; k_{sat} = 1,4.10^{-7} m/s) et S3 (AEV ≈ 1,5 m ; k_{sat} = 2,8.10^{-7} m/s), se désaturent relativement peu (-10% dans le cas de S3, environ 0 dans le cas de S2), mais pas suffisamment pour former un effet de barrière capillaire avec la moraine Mor2. La moraine se désature sur toute sa hauteur. Au sommet de la couverture, le degré de saturation peut atteindre des valeurs aussi faibles que 30%. L'évaporation est le mécanisme principal de la désaturation dans les couvertures, comme le montre les faibles pressions interstitielles simulées au sommet des modèles (figure 7.33). Par ailleurs, on observe que plus la couverture est épaisse, plus le degré de saturation reste élevé près de l'interface.

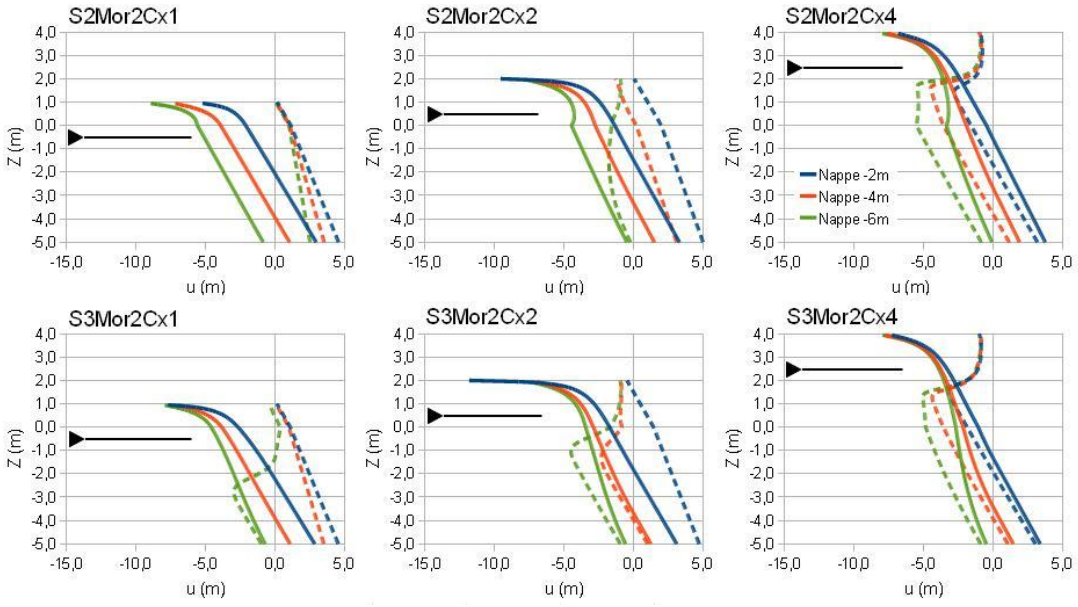


Figure 7.33: Profils des pressions interstitielles simulées pour un recouvrement monocouche (S3Mor2 et S4Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour trois profondeurs de nappe. On montre aussi le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés). Cx1 correspond à une couverture de 1m, Cx2 de 2 m et Cx4 de 4 m. La flèche noire indique la profondeur de la zone gelée

Tableau 7.12: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet d'un recouvrement monocouche (S3Mor2 et S4Mor2) pour différentes épaisseurs de couverture et différentes profondeurs de nappe (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau (épaisseur couv.)	Nappe -2m		Nappe -4m		Nappe -6m	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
S2Mor2 (1m)	424	12%	691	7%	803	6%
S2Mor2 (2m)	270	19%	513	10%	638	8%
S2Mor2 (4m)	129	39%	365	14%	453	11%
S3Mor2 (1m)	534	9%	936	5%	1190	4%
S3Mor2 (2m)	334	15%	617	8%	760	7%
S3Mor2 (4m)	223	22%	399	13%	461	11%

Les résultats du calcul des flux d'oxygène corroborent les observations précédentes. On note que les flux sont plus importants ici que dans les cas Manitou simulés, car la moraine est plus grossière que les résidus Goldex et a tendance à se désaturer plus facilement. On peut également observer de façon générale que :

- plus la nappe est profonde, plus le flux d'oxygène est important ;
- plus la couverture est épaisse, plus le flux d'oxygène est faible (mais le gain est limité passée une certaine épaisseur, et la relation entre flux et épaisseur du recouvrement n'est pas linéaire).

Il n'a pas été jugé nécessaire de faire une analyse hydrogéologique dans le cas d'une année sèche, puisque même pour une année normale, les flux d'oxygène sont largement supérieurs aux objectifs usuels.

En conclusion, l'augmentation de l'épaisseur de la couverture de moraine, ne semble pas être suffisante pour limiter efficacement les flux d'oxygène et prévenir la génération de DMA (pour une nappe située à plus de 2 m de profondeur sous la surface des résidus).

Les simulations présentées ici ont permis de constater qu'un recouvrement monocouche ne permet pas toujours de limiter efficacement la migration de l'oxygène jusqu'aux résidus. L'augmentation de l'épaisseur de la couverture tend toutefois à améliorer son efficacité. Il en va de même pour une remontée de la nappe jusqu'à -1 ou -2 mètres sous l'interface, ce qui permet, dans le cas des résidus Manitou et de leur couverture Goldex, de limiter les flux d'oxygène (mais pas forcément d'empêcher la génération de DMA, comme montré au chapitre 8, section 8.2). Néanmoins, dans des conditions de sécheresse, la couverture a tendance malgré tout à se désaturer et les flux augmentent. On propose donc, dans le contexte étudié ici, d'analyser le comportement de recouvrements alternatifs.

7.5.3 Couvertures bicouches à effet de barrière capillaire

On analyse maintenant le cas d'une couverture à effet de barrière capillaire (CEBC), bicouche, i.e. un recouvrement de deux couches avec un bris capillaire unique à la base de la couche de rétention (sans barrière à l'évaporation ici).

L'une des méthodes alternatives pour la restauration du site Manitou avec une couverture multicouche consisterait à réutiliser des stériles produits par une mine à proximité. Pour simuler le bris capillaire, 2 matériaux sont considérés. Il s'agit de 2 stériles, dont les caractéristiques sont tirées de Dawood et al. (2011). Leur courbe de rétention d'eau et leur fonction de perméabilité sont présentées à la figure 7.34 (avec les courbes des résidus Goldex et de la moraine). Leurs paramètres hydrogéologiques sont synthétisés dans le tableau 7.13 (selon le modèle de van Genuchten, 1980).

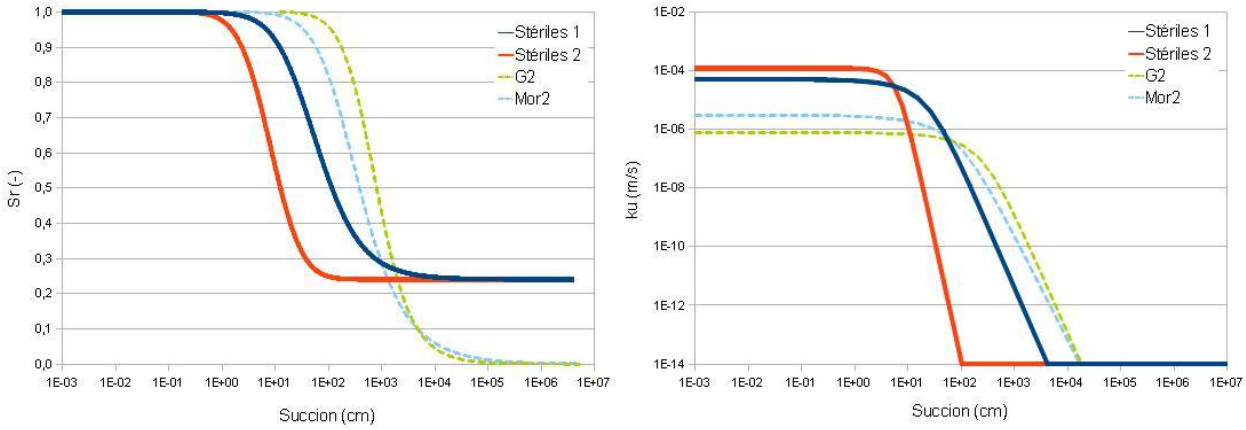


Figure 7.34: Courbes de rétention d'eau (selon le modèle de van Genuchten, 1980) et fonctions de perméabilité (modèle de Mualem, 1976) des roches stériles employés dans les simulations de recouvrements bicouches des parcs Manitou et Selbaie ; on montre également les courbes des résidus Goldex G2 et de la moraine Mor2

Tableau 7.13: Paramètres du modèle de van Genuchten (1980) pour la CRE et valeurs de la conductivité hydraulique des stériles St1 et St2 employés dans la simulation de recouvrements bicouches (et tricouches) des parcs Manitou et Selbaie ; on rappelle également les caractéristiques des résidus Goldex G2 et de la moraine Mor2

	θ_s (-)	θ_r (-)	α_{vG} (m^{-1})	n_{vG} (-)	m_{vG} (-)	k_{sat} (m/s)
St1	0,250	0,060	3,300	1,89	0,47	$5{,}0.10^{-5}$
St2	0,250	0,060	14,50	3,50	0,71	$1{,}2.10^{-4}$
G2	0,474	0,000	0,210	2,10	0,52	$6{,}3.10^{-7}$
Mor2	0,359	0,000	0,650	1,70	0,41	$2{,}5.10^{-6}$

Ces roches stériles ont été sélectionnées parce qu'elles sont grossières, relativement perméables, et qu'elles se désaturent rapidement, mais également en raison de leurs différences (de l'une à l'autre). Leurs AEV respectifs (environ 1 cm pour les stériles 1 et 10 cm pour les stériles 2) diffèrent d'un ordre de grandeur. On s'attend à ce que ces matériaux créent un bris capillaire avec la couche de rétention, car leur AEV est très inférieur à celui des résidus Goldex G2 et de la moraine Mor2, et leur pression d'entrée d'eau (WEV) est également inférieure à l'AEV de G2 et Mor2. Au vu des propriétés des stériles employés aucun effet d'hystérésis sur ces matériaux n'est considéré.

Les modèles numériques ont été construits de la même manière que précédemment. Afin de limiter le nombre de cas à étudier, seul le cas où la nappe phréatique se situerait 4 mètres sous la surface des résidus est testé. D'ailleurs, la profondeur de nappe a peu d'effet sur le comportement d'une CEBC (e.g. Dagenais, 2005).

7.5.3.1 Effet de l'épaisseur de la couche de stériles

L'effet de l'épaisseur de la couche de stériles dans le recouvrement bicouche a été simulé et analysé en détail. Les résultats sont présentés à l'annexe 7.9.

On retiendra principalement qu'aucune des configurations simulées ne semble efficace pour prévenir la migration de l'oxygène jusqu'aux résidus. On ne note pas de différences importantes entre l'utilisation d'un bris capillaire de 0,5 m ou de 1 m d'épaisseur ; les flux d'oxygène sont comparables. Il a également été mis en exergue la difficulté que peut rencontrer le code Vadose/W à traiter les écoulements dans des matériaux grossiers.

On considérera une couche de stériles de 1 m d'épaisseur dans les autres simulations.

7.5.3.2 Effet de l'épaisseur de la couche de rétention

Site Manitou

Il a pu être constaté dans les simulations précédentes que l'évaporation est à l'origine de la désaturation de la couche de rétention d'eau (et donc de sa perte d'efficacité). Afin d'en limiter les effets, une possibilité consisterait à augmenter l'épaisseur de la couche de rétention d'eau. Comme observé précédemment (voir section 7.6.2), cela peut permettre de maintenir des degrés de saturation plus élevés à la base de la couche et donc d'augmenter l'efficacité de la couverture.

C'est ce qui sera testé ici pour trois épaisseurs différentes de couche de rétention, soit 1 m, 2 m et 3 m. On compare la fluctuation des degrés de saturation 1,40 m sous la surface (soit 10 cm au-dessus de la base de la couche de résidus Goldex ; figure 7.35) et on analyse les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 188, soit le 8 juillet ; figures 7.36 et 7.37). Les valeurs des flux d'oxygène simulés sont synthétisées dans le tableau 7.14.

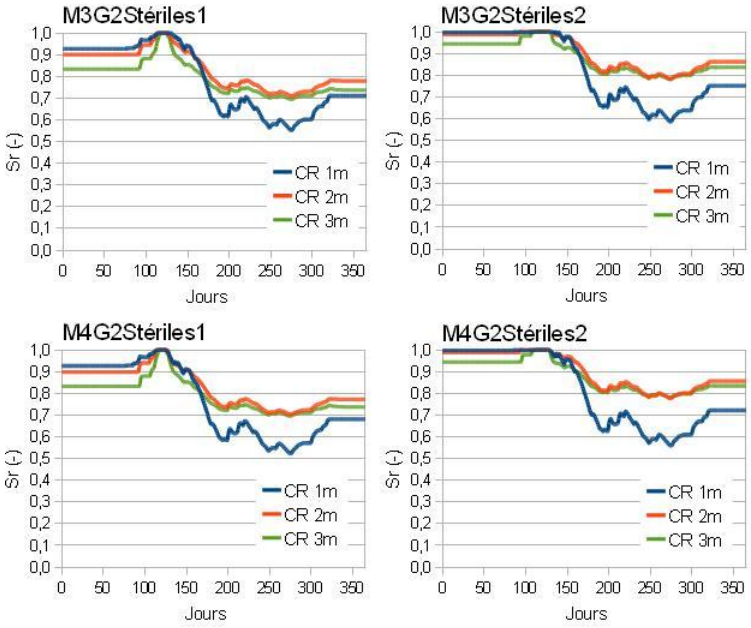


Figure 7.35: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC bicouche, 1,40 m sous la surface ; les résultats sont montrés pour une année et pour trois épaisseurs de couche de rétention d'eau (CR)

Sur la figure 7.35, on note une nette distinction entre le cas où la couche de rétention fait 1 mètre d'épaisseur et ceux où elle est de 2 m ou 3 m. Avec 2 ou 3 mètres d'épaisseur, le degré de saturation dans la couche de rétention est supérieur de 10 à 20% par rapport au cas 1 m, sur la seconde moitié de l'année. Une couche de 1 m suffit à peine à maintenir un degré de saturation de 70% (voire moins), mais lorsque l'épaisseur est de 2 ou 3 m, S_r passe à plus de 80% en fin d'année et se maintient en permanence au-dessus de 70%. Ce résultat n'est peut-être pas suffisant pour atteindre l'efficacité souhaitée pour un tel recouvrement toute l'année, mais l'amélioration est claire. On note toutefois peu de différences entre une couche de rétention de 2 ou 3 mètres d'épaisseur (moins de 5% de différence de S_r). Ceci indique que l'augmentation de l'épaisseur de

la couche de rétention atteint un optimum et qu'il est peu utile (pour cet aspect) de l'augmenter encore au-delà de 2 m.

La figure 7.36 confirme que l'utilisation d'une couche de rétention de 2 ou 3 mètres permet de maintenir des degrés de saturation plus élevés dans le bas de la couche de rétention, soit plus de 80% contre moins de 70% pour une couche de 1 m.

On constate également que le choix des stériles employés pour le bris capillaire a une influence limitée sur le degré de saturation de la couche de rétention. On note aussi que malgré des degrés de saturation plus élevés à la base de la couche de rétention d'eau, l'augmentation de leur épaisseur n'empêche pas une importante désaturation à leur sommet (S_r < 50% dans certains cas). La figure 7.37 confirme que le phénomène d'évaporation est la principale cause de la désaturation (les pressions interstitielles sont très inférieures aux valeurs hydrostatiques).

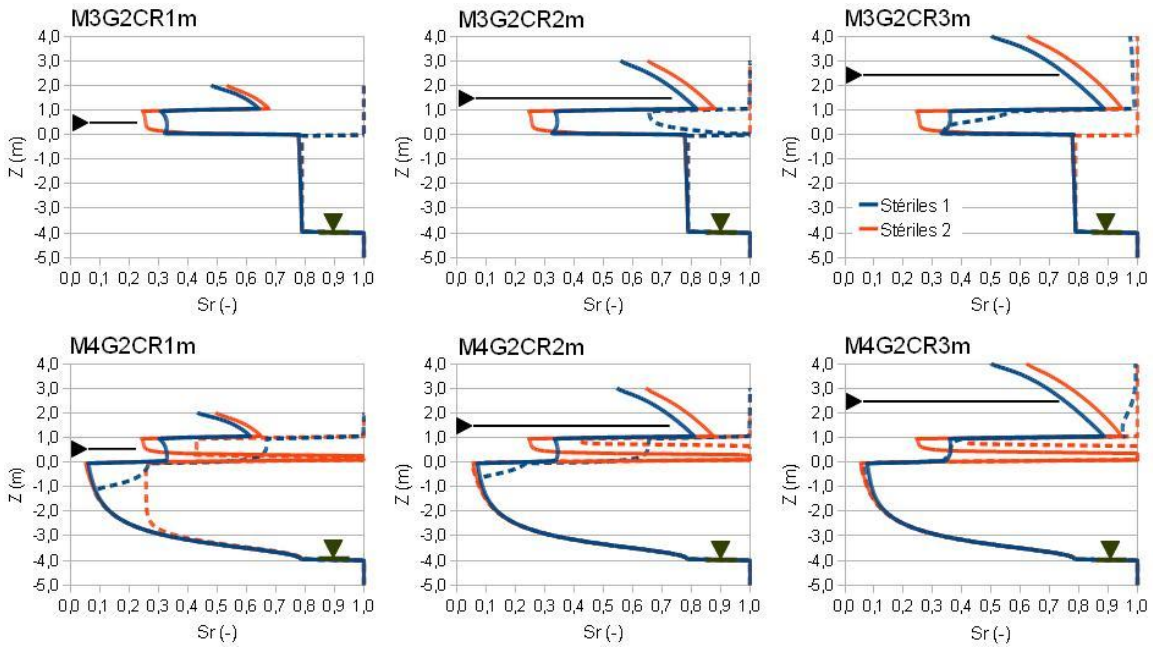


Figure 7.36: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour trois épaisseurs de couche de rétention. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

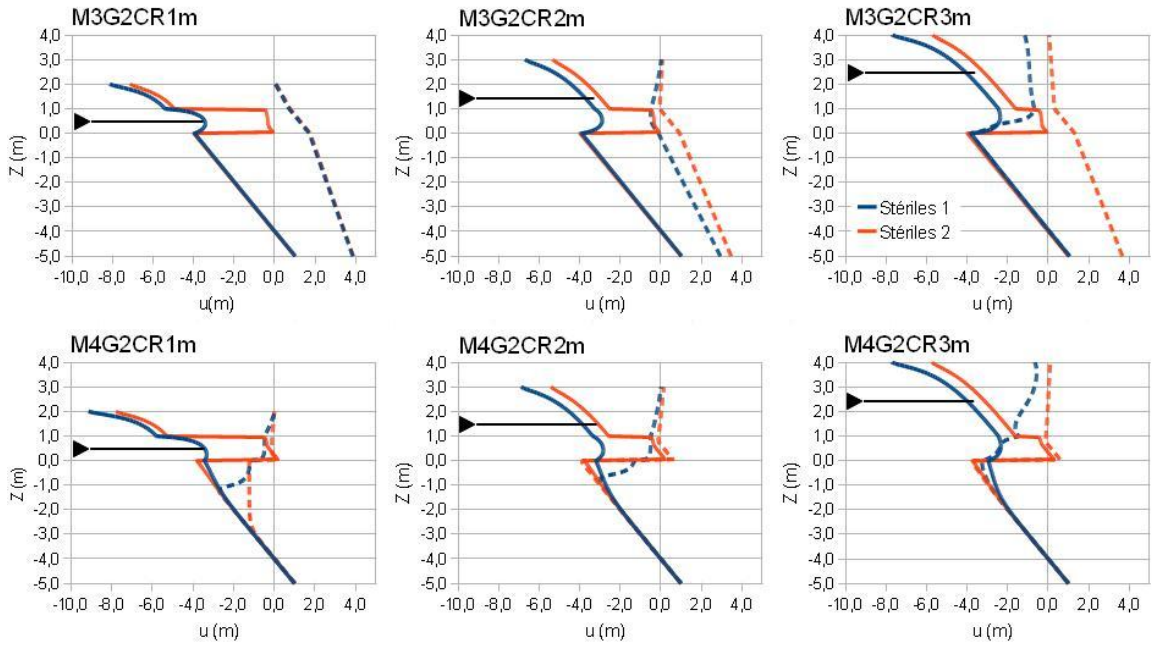


Figure 7.37: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour trois épaisseurs de couche de rétention. On montre également le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

Dans le cas où les stériles 2 sont employés comme bris capillaire, on note la présence d'une accumulation d'eau à l'interface avec les résidus M4. La désaturation rapide des résidus et leur faible conductivité hydraulique entraîne un certain retard dans l'infiltration. Ce phénomène d'un semblant de bris capillaire semble toutefois être un artefact numérique. En pratique, une telle d'accumulation d'eau ne pourrait se produire, car l'écoulement se ferait instantanément entre les deux couches de matériaux grossiers St2 et M4 (e.g. Bussière, 1999). Vadose/W (et la plupart des codes numériques en hydrogéologie) simulent mal les écoulements dans les matériaux grossiers (Fala, 2008; Abdelgahni, 2009) et ne prennent pas en compte les lois de l'hydraulique classique.

La présence d'une épaisseur d'eau au sommet des résidus réactifs peut influer, dans certains cas, sur l'estimation des flux d'oxygène à travers la couverture. Cependant, on remarque aux figures 7.35 et 7.36 que l'évolution de la teneur en eau dans la couche de rétention est très semblable entre les cas des résidus M3 et M4 (avec les stériles 2 pour bris capillaire). Ceci indique que les flux d'oxygène devraient également être similaires entre les deux cas. Par ailleurs, si l'on observe les profils de concentration d'oxygène le jour le plus sec de l'année (jour 188), on constate

(figure 7.38a) que dans le cas d'une couche de rétention de 2 m ou 3 m, la concentration au sommet de la couche de stériles est rendu très faible. En d'autres termes, la couche de rétention d'eau est principalement responsable de la diminution du flux d'oxygène et la présence d'une mince couche d'eau plus en profondeur n'aura donc que peu d'impact sur le calcul de flux. Dans le cas contraire, l'oxygène aurait tendance à s'accumuler à son sommet et les concentrations dans la couche de sable seraient beaucoup plus importantes. C'est le cas, par exemple, lorsque la couche de rétention d'eau fait 1 m d'épaisseur. La figure 7.38b confirme ces résultats : en observant la variation des concentrations d'oxygène au cours du temps au sommet de la couche de stériles, on constate qu'elles sont élevées pour le cas d'une couche de rétention de 1 m, mais relativement faibles pour les autres cas. Au regard de ces résultats, on juge que l'estimation des flux d'oxygène à travers la couverture est irréaliste dans le cas où la couche de rétention fait 1 m d'épaisseur, mais qu'elle est représentative dans les deux autres cas (couche de rétention de 2 m et de 3 m). On retiendra toutefois que ces résultats ont tendance à sous-estimer légèrement le flux d'oxygène (la couche d'eau a tout de même certainement un effet). Dans le cas d'une couche de rétention d'eau de 1 m, on estime que le flux d'oxygène traversant la couverture doit être comparable au cas des résidus M3 (M3G2St2).

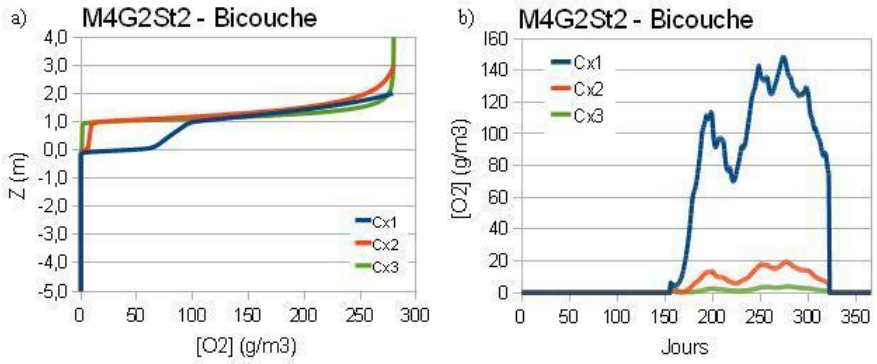


Figure 7.38: a) Profils des concentrations d'oxygène simulées pour une CEBC bicouche (M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour trois épaisseurs de couche de rétention ; b) Simulation de la variation des concentrations d'oxygène pour une CEBC bicouche, au sommet de la couche de stériles (0,95 m au-dessus de l'interface résidus-couverture) ; les résultats sont montrés pour une année et pour trois épaisseurs de couche de rétention d'eau

Tableau 7.14: Flux d'oxygène annuels simulées au sommet d'une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2) pour différentes épaisseurs de la couche de rétention d'eau (en g/m²/an) ; on montre également l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	Couv 1m		Couv 2m		Couv 3m	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
M3G2 St1	663	8%	159	31%	77,8	67%
M3G2 St2	571	9%	55,4	90%	6,09	821%
M4G2 St1	1070	5%	186	27%	78,9	63%
M4G2 St2	Non applicable		2,83	>999%	1,21	>999%

On constate au tableau 7.14 que :

- plus la couverture est épaisse, plus le flux d'oxygène est faible. La différence d'efficacité entre une couche de rétention d'eau de 1 m et une de 2 m est très importante (flux divisé par 4 à 10 dans le cas où elle est de 2 m, et gain d'efficacité de 22 à 81%). Par contre, le gain est en général moins significatif pour une épaisseur passant de 2 m à 3 m (flux divisé par 2 à 9, gain d'efficacité d'environ 35% en général) ;
- les stériles 2 sont plus efficaces pour créer un effet de barrière capillaire avec les résidus Goldex, et permettent donc d'obtenir des flux d'oxygène plus faibles qu'avec les stériles 1 ;
- pour les couvertures faites avec des stériles 1, le type de résidus réactifs sous-jacents a peu d'influence sur l'efficacité de la couverture, ce qui indique que c'est bien le bris capillaire qui contrôle ici le flux d'oxygène. Les flux très faibles obtenus dans le cas M4G2 St2 sont liés à l'accumulation d'eau dans les stériles, au sommet des résidus réactifs (artefact numérique).

En résumé, une couverture bicouche à effet de barrière capillaire peut être assez efficace même dans le cas où la nappe se trouve à 4 mètres de profondeur, si elle est suffisamment épaisse pour limiter les effets de l'évaporation, et préférablement si elle est constituée de stériles 2.

Site Manitou, nappe à -1 m

On a constaté que certaines configurations de recouvrements bicouches à effet de barrière capillaire semblaient peu efficaces pour limiter efficacement le flux d'oxygène. On a vu le rôle de l'évaporation sur la désaturation de la couverture. La profondeur de nappe peut également avoir une influence sur le comportement hydrique du système. On réalise les mêmes simulations que dans le cas précédent, avec les résidus M3 mais en considérant une nappe plus élevée, située à 1 m sous la surface des résidus Manitou. Les résultats des simulations sont présentés aux figures 7.39 (variations du degré de saturation 10 cm au-dessus de l'interface stériles-couverture), 7.40 (profils du degré de saturation le jour le plus sec de l'année, soit le jour 188 (8 juillet) en comparaison avec le profil à la fin de l'hiver (jour 125)) et 7.41 (profil de pression aux mêmes dates). Les flux d'oxygène estimés par Vadose à la surface du recouvrement sont présentés dans le tableau 7.15.

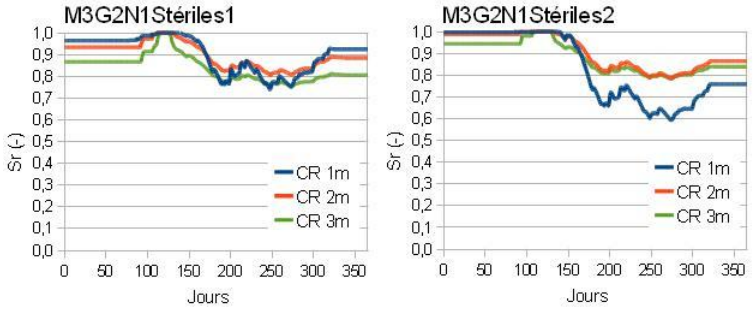


Figure 7.39: Simulation de la variation du degré de saturation dans une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), avec une nappe à -1 m, 10 cm au-dessus de l'interface bris capillaire-couche de rétention ; on présente les résultats pour une année et pour trois épaisseurs de couche de rétention différentes

On constate sur la figure 7.39 qu'une nappe à -1 m limite un peu la désaturation de la couche de rétention d'eau dans le cas des stériles 1, avec un degré de saturation à la fin de l'année compris en 80% et 92% (selon l'épaisseur de la couverture) contre des valeurs comprises entre 70% et 80% pour le cas de la nappe à -4 m. Par contre, dans le cas des stériles 2, les différences entre le cas où la nappe est à -1 m ou à -4 m sont pratiquement nulles.

On observe à la figure 7.40 que le profil parait d'avantage saturé dans le cas des stériles 1 lorsque la couche de rétention fait 1 m d'épaisseur. Lorsqu'elle est de 2 m ou de 3 m, la différence est

moins marquée entre les deux cas. La figure 7.41 confirme la présence d'un bris capillaire formé par les stériles 2 ainsi que l'effet de l'évaporation qui croit avec la diminution de l'épaisseur de la couche de rétention (les pressions simulées dans la couche de rétention sont beaucoup plus faibles lorsqu'elle a 1 m d'épaisseur que dans les autres cas).

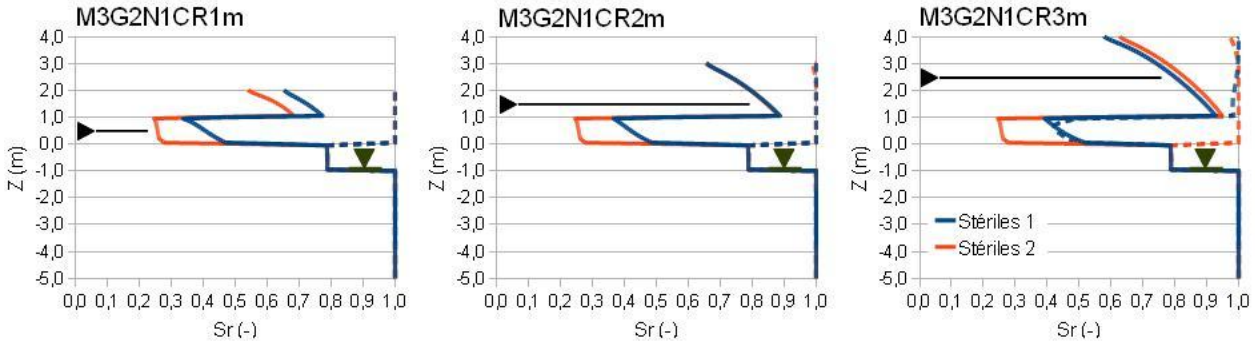


Figure 7.40: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) avec une nappe à -1 m et pour différentes épaisseurs de la couche de rétention d'eau. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

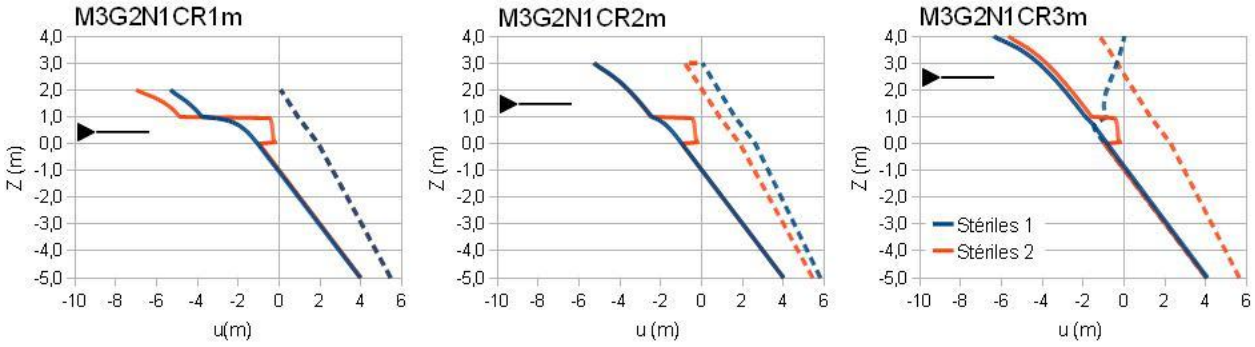


Figure 7.41: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet), avec une nappe à -1 m et pour différentes épaisseurs de la couche de rétention. On montre aussi le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

Tableau 7.15: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet d'une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), pour différentes épaisseurs de la couche de rétention d'eau et une nappe à -1 m (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	Couv 1m		Couv 2m		Couv 3m	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
M3G2 St1	177	28%	40,8	123%	20,9	239%
M3G2 St2	557	9%	52,3	96%	5,53	904%

Le tableau 7.15 indique que l'augmentation du niveau de la nappe à -1 m permet de diminuer le flux d'oxygène à travers la couverture bicouche dans tous les cas. On observe que la diminution est plus importante dans le cas de l'utilisation des stériles 1 (le flux est divisé par 3,7 environ ; voir tableau 7.14) que pour les stériles 2 (la diminution n'est que de quelques g/m²/an).

On constate donc que la remontée de la nappe à -1 m améliore l'efficacité de la couverture dans le cas où on emploie les stériles 1. Ceci est dû au fait que la désaturation de la couche de rétention d'eau est essentiellement due au phénomène d'évaporation. Dans le cas des stériles 1, remonter la nappe à -1 m produit un degré de saturation des stériles assez élevé. Sa conductivité hydraulique reste donc plus élevée également, et de l'eau peut remonter depuis la nappe pour alimenter la couche de rétention et remplacer une partie de l'eau perdue par évaporation. Le degré de saturation des résidus Goldex demeure donc plus haut que quand la nappe est à -4 m et permet de contrôler plus efficacement la diffusion de l'oxygène. Les stériles 2 sont plus grossiers et leurs AEV (et leur WEV) est bien inférieur à 1 m. Que la nappe soit à -1 m ou à -4 m ne change pratiquement rien au fait que la couche de stériles soit fortement désaturée ($\theta = \theta_r$) et donc que sa conductivité hydraulique soit très faible. L'eau ne se draine pas vers le bas depuis la couche de rétention en raison du bris capillaire formé avec les stériles. Lorsqu'elle est assez épaisse (> 2 m), l'effet de l'évaporation est limité et elle demeure à des degrés de saturation assez élevés, limitant ainsi le flux d'oxygène.

Site Selbaie

Une analyse similaire de l'effet de l'épaisseur de la couche de rétention d'eau a été réalisée sur une CEBC bicouche (moraine Mor2 et stériles 1 et 2) pour les résidus Selbaie. On a simulé une couche de rétention de moraine de 1 m, 2 m et 3 m d'épaisseur, placée au sommet d'une couche de 1 m de stériles. On présente les variations du degré de saturation 1,40 m sous la surface à la figure 7.42 et les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) en comparaison avec le profil à la fin de l'hiver (jour 125) aux figures 7.43 et 7.44. Les flux d'oxygène estimés par Vadose/W à la surface du recouvrement sont présentés dans le tableau 7.16.

Les résultats présentés à la figure 7.42 indiquent que l'augmentation de l'épaisseur de la couche de moraine modifie peu son comportement. Les courbes sont proches les unes des autres et suivent la même tendance, soit une augmentation du degré de saturation à la fin de l'hiver suivie d'une diminution de S_r jusqu'à des valeurs de 50-60% avant une stabilisation autour de 60-70% pour le reste de l'année. Le degré de saturation à la base de la couche de rétention ne dépasse pas 70% à partir de l'été, ce qui indique que les flux d'oxygène devraient être importants.

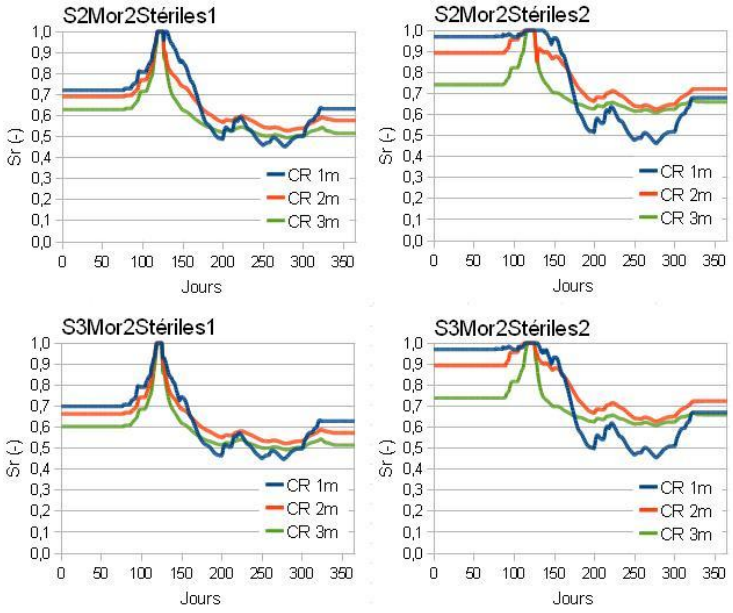


Figure 7.42: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), 1,40 m sous la surface ; on montre les résultats pour une année et pour trois épaisseurs de la couche de rétention d'eau

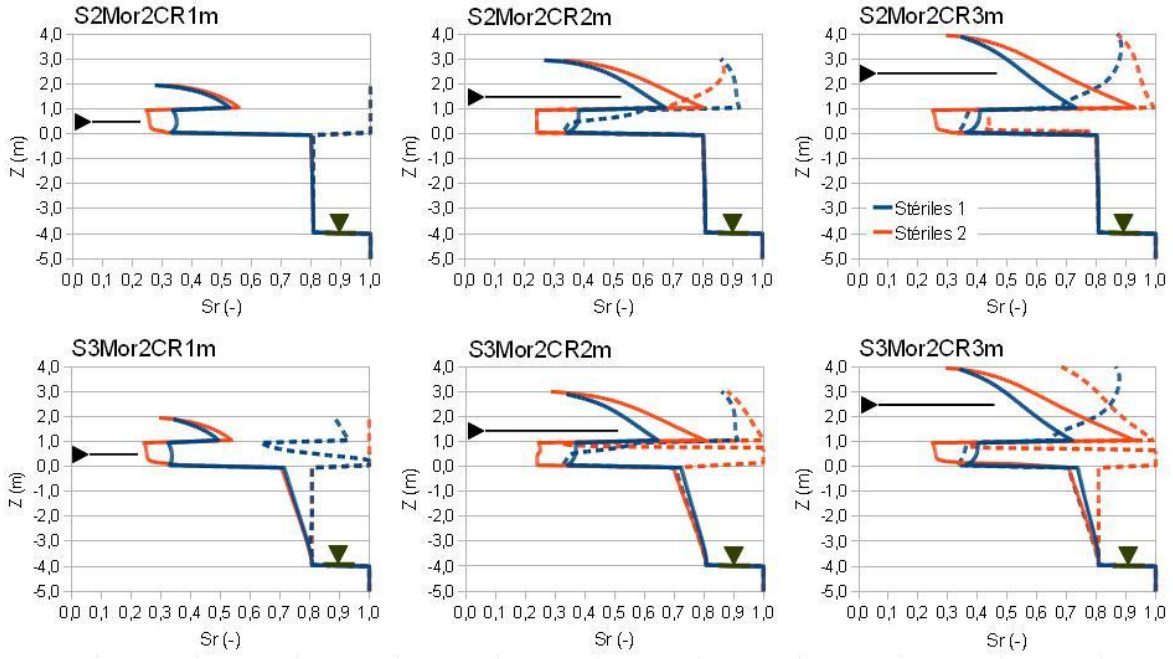


Figure 7.43: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour trois épaisseurs de couche de rétention. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

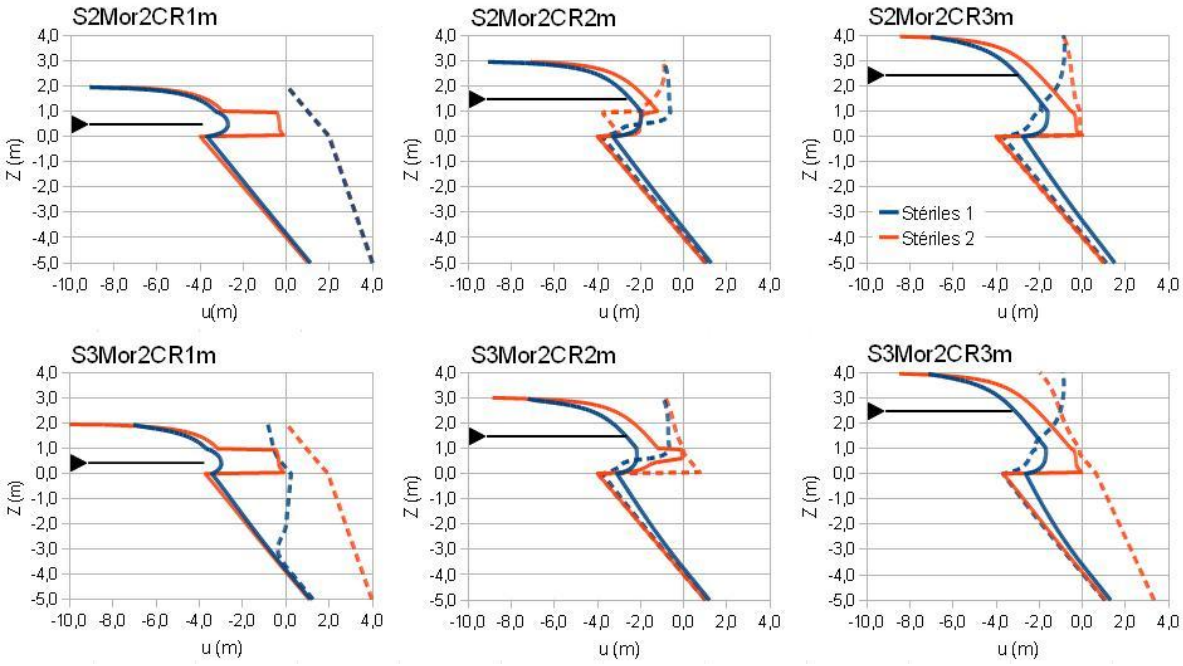


Figure 7.44: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour trois épaisseurs de couche de rétention. On montre aussi le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

La figure 7.43 montre que la base de la couche de rétention est plus saturée lorsque celle-ci est plus épaisse (plus de 70% pour une couche de 2 ou 3 m contre 50% pour une couche de 1m). Un bris capillaire se forme très nettement à la base des matériaux de couverture comme le confirme la figure 7.44, en particulier avec les stériles 2. On constate cependant que la couverture de moraine tend à se désaturer d'avantage que les résidus Goldex (avec des degrés de saturation de l'ordre 30% à son sommet). L'effet du matériau employé pour le bris capillaire semble plus important. Les stériles 1 sont moins efficaces pour empêcher la désaturation de la couche de rétention (environ 10% de moins pour le degré de saturation à la base des couches de rétention de 2 m et 3 m). Ceci s'explique sans doute par le fait que les propriétés de la moraine Mor2 et des Stériles 2 sont proches et ne permettent pas le développement d'un effet de barrière capillaire fort.

Tableau 7.16: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet d'une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2) pour différentes épaisseurs de la couche de rétention d'eau (en g/m²/an) ; on présente également l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	Couv 1m		Couv 2m		Couv 3m	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
S2Mor2 St1	537	9%	369	14%	290	17%
S2Mor2 St2	528	9%	200	25%	34,4	145%
S3Mor2 St1	718	7%	447	11%	321	16%
S3Mor2 St2	671	7%	96,2	52%	34,6	145%

Le tableau 7.16 indique que l'augmentation de l'épaisseur de la couche de rétention d'eau permet d'augmenter son efficacité (les flux à travers une couverture de 3 m sont divisés par deux en général par rapport à une couche de 1 m). La différence entre une couche de 2 m et de 3 m est plus nette que dans le cas Manitou mais reste en général assez faible (sauf le cas S2Mor2 St2).

En résumé, pour les résidus Manitou et Selbaie simulés ici, une couverture bicouche à effet de barrière capillaire peut être assez efficace dans le cas où la nappe se trouve à 4 mètres de profondeur, si elle est suffisamment épaisse pour limiter les effets de l'évaporation et uniquement si elle est constituée de stériles 2.

7.5.3.3 Ajout d'une barrière à l'évaporation (couverture bicouche)

Site Manitou

Comme constaté dans les simulations précédentes, l'évaporation est la principale cause de la désaturation de la couche de rétention d'eau durant la saison sèche. Il est possible d'augmenter l'épaisseur de la couche de rétention d'eau afin d'en limiter les effets (voir section 7.6.3), ce qui peut être efficace dans certains cas. Une autre possibilité consiste à ajouter une barrière à l'évaporation au sommet de la couche de rétention (e.g. Dagenais, 2005). On considère ici une couverture constituée de 1 m de résidus Goldex G2 surmontée de 50 cm de stériles 1. On compare la fluctuation des degrés de saturation 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture (figure 7.45a) et on analyse les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 188, soit le 8 juillet ; figures 7.45b et c). Les valeurs de flux d'oxygène estimé par Vadose/W sont synthétisées dans le tableau 7.17.

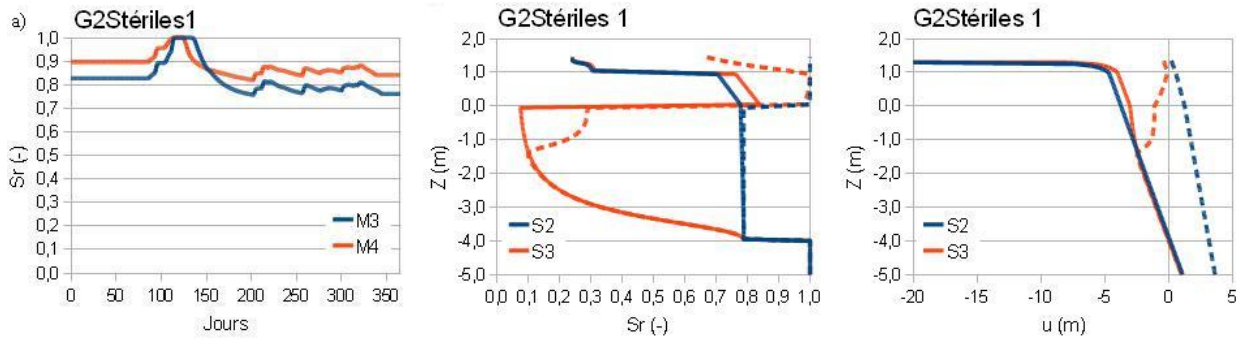


Figure 7.45: Simulation de la variation du degré de saturation (a) pour une CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (M3G2 et M4G2), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture ; les résultats sont montrés pour une année ; profils du degré de saturation (b) et des pressions interstitielles (c), simulés pour une CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet). On montre également les profils du degré de saturation (b) et des pressions (c) à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

On constate à la figure 7.45a que l'installation de la couche de stériles au sommet des simulations permet de limiter sensiblement la désaturation de la couche de rétention d'eau (voir figure 7.42). Le degré de saturation à la base de la couche de résidus Goldex demeure ainsi proche de 80%. La couverture devrait être ici plus efficace, comparativement à ce que l'on observait pour une

monocouche simple de 1 mètre d'épaisseur (S_r < 80% avec M3 et S_r < 65% avec M4). On observe à la figure 7.45b que le degré de saturation reste supérieur à 70% sur toute l'épaisseur de la couche et dans tous les cas. La couche de stériles 1 se désature de façon importante et les succions développées au sommet du modèle (figure 7.45c) sont très élevées (mais pas dans la couche de rétention d'eau). Le tableau 7.17 confirme que l'installation d'une barrière à l'évaporation permet d'améliorer l'efficacité de la couverture. Les flux d'oxygène restent néanmoins supérieurs à l'objectif de 50 g/m²/an.

Tableau 7.17: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (M3G2 et M4G2 ; en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
M3G2	194	26%
M4G2	88,6	56%

On note que l'augmentation de l'épaisseur de la couche de stériles au-dessus de 50 cm n'aurait qu'un effet limité sur son efficacité (Dagenais, 2005). Elle pourrait par contre être améliorée en employant un matériel plus grossier (comme les stériles 2). Ce dernier cas n'a pu être simulé en raison de problèmes numériques avec Vadose/W (les précipitations ne s'infiltrant pas dans les modèles en raison d'une couche de stériles trop désaturée). Il convient également de rappeler ici que l'évaporation tend à être surestimée par le code (notamment en raison de la non prise en compte des effets osmotiques liés à la forte contamination de l'eau ; e.g. Hillel, 1998) et pourrait entraîner la sous-estimation du degré de saturation dans la couverture (et donc de son efficacité).

Site Selbaie

Dans le cas du site Selbaie, la désaturation de la couche de rétention est également causée en partie par l'évaporation et l'augmentation de son épaisseur permet de limiter efficacement le flux d'oxygène à travers la couverture dans certains cas. Une autre option serait d'installer une barrière à l'évaporation sur la moraine. On considère donc une couverture constituée de 1 m de moraine surmontée de 50 cm de stériles 1. On compare la fluctuation des degrés de saturation 10

cm au-dessus de l'interface résidus-moraine (figure 7.46a) et on analyse les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 188, soit le 8 juillet ; figures 7.46b et 7.46c).Les valeurs de flux d'oxygène sont synthétisées dans le tableau 7.18.

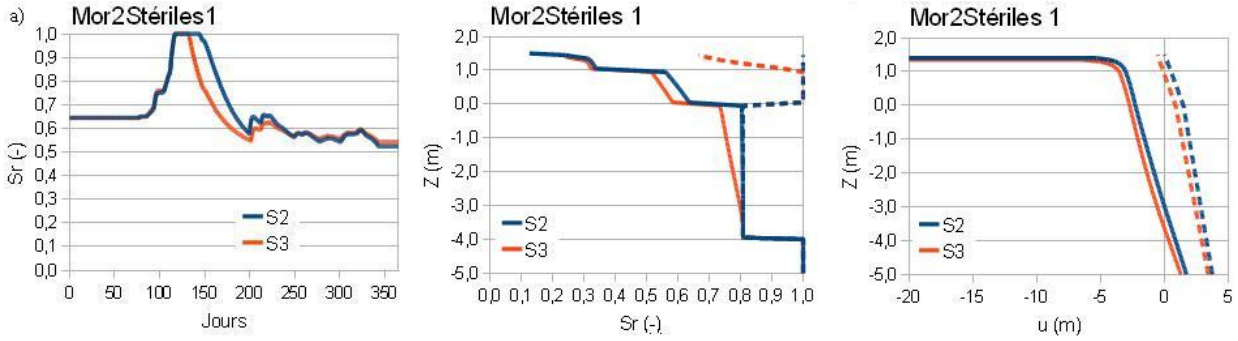


Figure 7.46: Simulation de la variation du degré de saturation (a) pour une CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (S2Mor2 et S3Mor2), 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture ; les résultats sont montrés pour une année ; profils du degré de saturation (b) et des pressions interstitielles (c), simulés pour une CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet). On montre également les profils du degré de saturation (b) et des pressions (c) à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

On constate sur la figure 7.46a que malgré la présence de la couche de stériles 1 qui sert à limiter l'évaporation, la couche de rétention d'eau se désature. Son degré de saturation atteint 55% au milieu de l'été et se maintiennent sous 60% le reste de l'année. La figure 7.46b confirme que malgré une resaturation complète à la fin de l'hiver, la couche de moraine se draine rapidement pendant l'été. On observe à la figure 7.46c que les succions sont très importantes dans la couche de stériles 1, mais pas dans les résidus et la moraine. La couche de protection permet donc de protéger les matériaux sous-jacents de l'évaporation. On en déduit que la désaturation de la moraine (S_r < 60% à partir de l'été) se produit essentiellement par drainage à la nappe. La moraine ne constitue donc pas une couche de rétention d'eau efficace dans cette configuration.

Le tableau 7.18 confirme que les flux traversant la couverture sont élevés et que les configurations des recouvrements testées ici ne seraient pas efficaces pour prévenir la génération de DMA. Les gains par rapport au cas sans couverture de stériles sont relativement faibles.

L'utilisation d'une couche de protection à l'évaporation permet d'améliorer l'efficacité du recouvrement par rapport à une monocouche, mais celle-ci reste en général insuffisante pour satisfaire les critères de design usuels.

Tableau 7.18: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC bicouche avec barrière à l'évaporation (S2Mor2 et S3Mor2 ; en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
S2M2	444	11%
S3M2	546	9%

En résumé, pour les résidus Manitou et Selbaie simulés, on constate qu'une couverture bicouche à effet de barrière capillaire (matériaux fins sur matériaux grossiers) peut être efficace pour limiter le flux d'oxygène, à condition que l'effet de l'évaporation soit limité (par exemple grâce à l'augmentation de l'épaisseur de la couche de rétention d'eau ou l'ajout d'une barrière à l'évaporation) et la nappe peu profonde. Une barrière à l'évaporation seule serait cependant insuffisante si la nappe est profonde ou si la couverture est constituée de matériaux trop grossiers, en l'absence d'un bris capillaire avec les résidus réactifs sous jacents.

7.5.4 Couverture tricouche à effets de barrière capillaire

7.5.4.1 Site Manitou

Les résultats précédents (cas monocouches et bicouches) ont montré que l'évaporation peut désaturer la couche de rétention d'eau et permettre à l'oxygène de rejoindre rapidement les résidus. L'augmentation de l'épaisseur de la couche de rétention permet d'en augmenter l'efficacité, mais pas toujours suffisamment pour respecter les critères de design (selon la profondeur de nappe). On évalue ici, l'effet d'une couche de matériau grossier au sommet du système bicouche sur la réponse de la couche de rétention et sur l'efficacité du recouvrement.

Les modèles seront construits de la même façon que précédemment, avec les conditions frontières, les propriétés des matériaux, le maillage et tous les autres paramètres numériques. On

étudie ici une CEBC tricouche placée au sommet d'une colonne de 10 mètres de résidus réactifs. Cette couverture est constituée d'une couche de 1 m de stériles (1 ou 2), surmontée d'une couche de 1 m de matériaux fin (G2), elle même recouverte de 50 cm de stériles 1 (pour les mêmes raisons que le cas des barrières à l'évaporation, les stériles 2 n'ont pas pu être simulés ici), et elle recouvre les résidus Manitou M3 et M4.

On compare la fluctuation des degrés de saturation 1,40 m sous la surface (ou 10 cm au-dessus de la base de la couche de rétention ; figure 7.47) et on présente les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 188, soit le 8 juillet ; figures 7.48 et 7.49). L'estimation des flux d'oxygène est présentée au tableau 7.19.

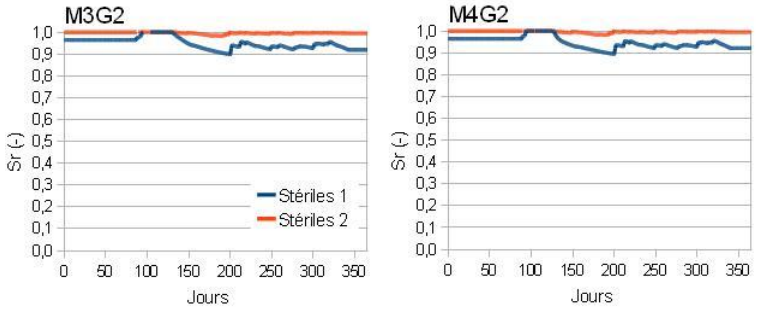


Figure 7.47: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), 1,40 m sous la surface ; on montre les résultats pour une année, selon le type de stériles employés comme bris capillaire (entre les résidus et la couche de rétention)

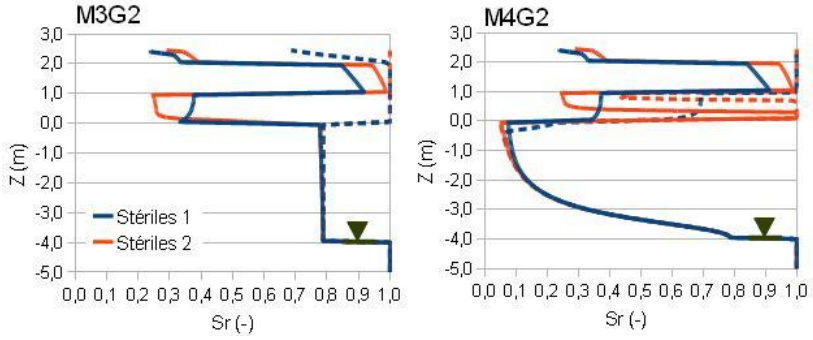


Figure 7.48: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

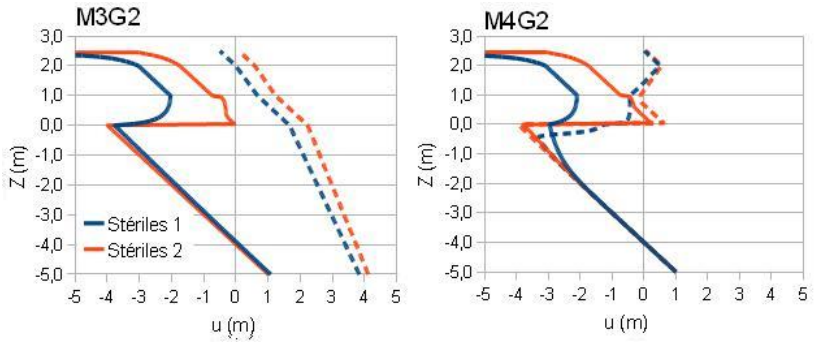


Figure 7.49: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2),le jour le plus sec de l'année (jour 188) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

On constate à la figure 7.48 que le comportement de la couche de rétention d'eau (Goldex) est différent selon le matériau employé pour les bris capillaire (stériles 1 ou 2). Avec les stériles 1, le degré de saturation dans la couche de rétention reste élevé (S_r > 90%) tout au long de l'année. Les légères variations observées suivent les mêmes tendances que les cas précédents (diminutions de S_r au cours de l'été puis fluctuations selon les précipitations de l'automne). Le bris capillaire contre l'évaporation à la surface est efficace, mais il n'empêche pas complètement toute évaporation. Avec les stériles 2, le bas de la couche de rétention demeure saturé tout au long de l'année. Les stériles 2 semblent donc très efficaces pour créer un bris capillaire fort avec la couche de rétention et limiter sa désaturation par drainage gravitaire. Dans les deux cas, la couche supérieure (stériles 1) joue efficacement son rôle de barrière à l'évaporation (i.e. elle limite le développement des succions dans la couche de rétention d'eau).

Sur la figure 7.49, on constate que la couche de rétention d'eau en présence des stériles 1 se désature légèrement mais que son degré de saturation demeure supérieur à 85% sur toute sa hauteur. Le degré de saturation dans la couche de rétention en présence de stériles 2 reste pour sa part supérieur à 90%. On observe également sur les figures 7.49 et 7.50 que de l'eau s'accumule à l'interface résidus réactifs-stériles dans le cas des résidus M4 et stériles St2. On juge néanmoins que l'estimation des flux d'oxygène est réaliste (voir justification à la section 7.5.3.2). Les succions développées dans la couche supérieure (stériles 1) sont très élevées et le degré de

saturation est par conséquent très faible. Par contre, les pressions dans la couche de rétention sont limitées, ce qui indique que la barrière à l'évaporation est efficace.

Tableau 7.19: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), pour deux types de stériles (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	Stériles 1		Stériles 2	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
M3G2	10,5	476%	$3{,}17.10^{-2}$	>999%
M4G2	12,2	410%	$3{,}25.10^{-2}$	>999%

Les résultats présentés au tableau 7.19 confirment les observations précédentes. Avec les stériles 1, le flux d'oxygène est inférieur aux critères de design et l'efficacité de la couverture semble assurée. Dans le cas des stériles 2, le double effet de barrière capillaire permet de limiter très efficacement la désaturation de la couche de rétention et les flux d'oxygène à travers la couverture sont très faibles.

On note que les flux simulés sont comparables à ceux habituellement mesurés pour des recouvrements de ce type. Bussière et al. (2011) mesurent dans leur colonne au laboratoire (CEBC et nappe à -2 m) un flux compris entre 170 et 370 g/m²/an (sur 194 jours), soient des valeurs plus de dix fois supérieures à celles obtenues ici. Mais, la couche de rétention dans leur colonne a une épaisseur de 50 cm et les conditions hydrogéologiques sont assez défavorables (pas de remontée d'eau depuis la nappe, pas de resaturation de la couche de rétention d'eau durant l'hiver et à la fonte des neiges). Pour leurs cellules de terrain, Aubertin et al. (1999) ont mesuré des flux d'oxygène pouvant atteindre des valeurs aussi faibles que 3,4 g/m²/an (sur 194 jours ; mais ils admettent que la méthode de mesure est relativement imprécise pour des flux aussi faibles). Ces résultats sont assez similaires à ceux présentés plus haut dans le cas où les stériles 1 sont employés. Par ailleurs, Dagenais (2005) a mesuré dans ses essais (de terrain) des flux compris entre 0,16 et 11 g/m²/an (sur 194 jours), ce qui est tout à fait comparable aux valeurs obtenues ici. Enfin, de façon plus générale, les flux mesurés à travers des CEBC sont de l'ordre

de 0,50 à 50 g/m²/an pour les essais au laboratoire (sur 194 jours ; Yanful et al., 1993; Aubertin et al., 1995) et de 5 g/m²/an (sur 194 jours) à des valeurs très élevées pour des essais en cellules expérimentales de terrain (Yanful et al., 1993; Aubertin et al., 1999; Werner et al., 2001).

Considérant ces résultats, et sachant que les méthodes de mesure des flux d'oxygène sont relativement imprécises lorsque ceux-ci sont faibles (e.g. Aubertin et al., 1999; Bussière et al., 2011), on estime donc que les calculs de flux sont réalistes.

Effets des conditions climatiques

Afin d'évaluer l'efficacité de la couverture tricouche à effets de barrière capillaire en l'absence de recharge, une période de sécheresse a été simulée en modifiant les données climatiques et en supprimant toute précipitation pendant les mois de juillet et août. On considère les mêmes caractéristiques des modèles numériques précédents.

On compare la fluctuation des degrés de saturation 1,40 m sous la surface (ou 10 cm au-dessus de la base de la couche de rétention ; figure 7.50) et on présente les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 243, soit le 31 août ; figures 7.51 et 7.52). Les flux d'oxygène estimés par Vadose/W sont synthétisés dans le tableau 7.20.

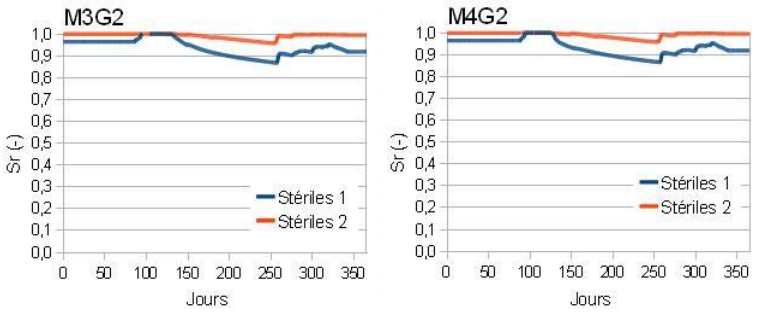


Figure 7.50: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), 1,40 m sous la surface ; on montre les résultats pour une année sèche, selon le type de stériles employés comme bris capillaire (entre les résidus et la couche de rétention)

On constate à la figure 7.50 que la désaturation de la couche de rétention d'eau est un peu plus importante qu'au cours d'une année normale. A la fin de l'été, le degré de saturation à la base de la couche de rétention peut atteindre 88% avec les stériles 1 et 95% avec les stériles 2 (contre 90% et 98% respectivement pendant une année humide). Les figures 7.51 et 7.52 confirment que

la couche de rétention se désature d'avantage au cours d'une année sèche (jusqu'à un degré de saturation de 80% au sommet de la couche de rétention).

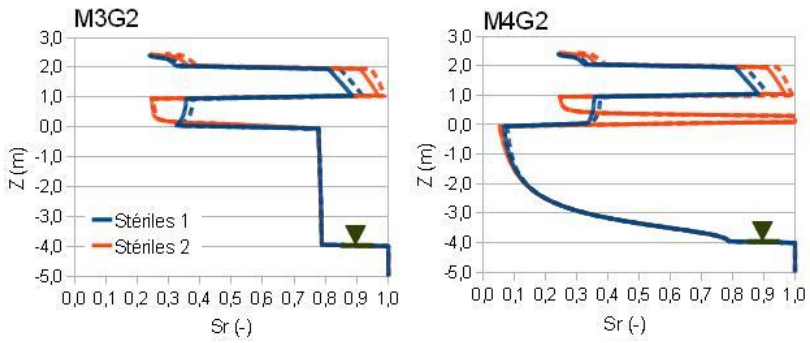


Figure 7.51: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (pour une année sèche, soit le jour 243 ; 31 août) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil du degré de saturation à la même date pour une année normale (pointillés)

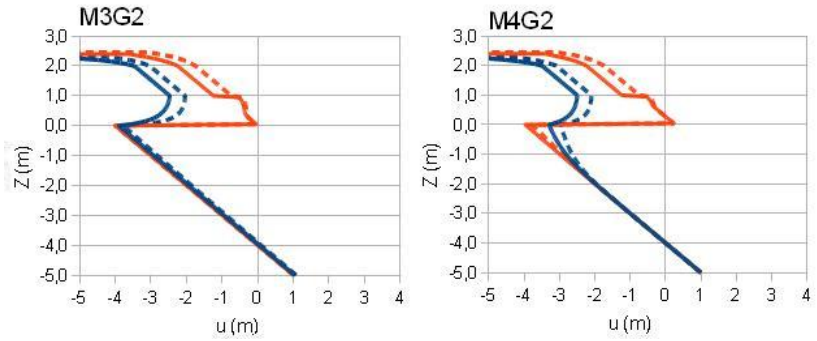


Figure 7.52: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (pour une année sèche, soit le jour 243 ; 31 août) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la même date pour une année normale (pointillés)

On observe aussi dans le tableau 7.20, qu'en général, les flux d'oxygène à travers les recouvrements augmentent pendant une année sèche, mais dans des proportions différentes selon les stériles employés pour le bris capillaire. Ainsi, dans le cas des stériles 1, les flux doublent par rapport au cas d'une année normale, mais la couverture demeure efficace. Les CEBC faites de stériles 2 voient leur flux multipliés par 10 mais demeurent très efficaces malgré tout.

Tableau 7.20: Flux d'oxygène au sommet de la CEBC tricouche (M3G2 et M4G2), pour une année sèche pour deux types de stériles (en g/m²/an) ; on indique également l'efficacité du recouvrement par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an

Matériau	Stériles 1		Stériles 2	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
M3G2	26,0	192%	0,34	>999%
M4G2	29,6	169%	0,34	>999%

On en déduit que de tous les modèles réalisés ici, le cas de la couverture à double effet de barrière capillaire, construite avec des stériles 2, est la configuration qui permet de limiter au maximum les flux d'oxygène même en cas de sécheresse prolongée.

7.5.4.2 Site Selbaie

La même étude est réalisée sur les résidus Selbaie et la moraine Mor2. On considère un recouvrement tricouche constitué de 1 m de stériles 1 ou 2, 1 m de moraine et 0,5 m de stériles 1. On compare la fluctuation des degrés de saturation 1,40 m sous la surface (ou 10 cm au-dessus de la base de la couche de rétention ; figure 7.53) et on présente les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 188, soit le 8 juillet ; figures 7.54 et 7.55). L'estimation des flux d'oxygène est présentée au tableau 7.21.

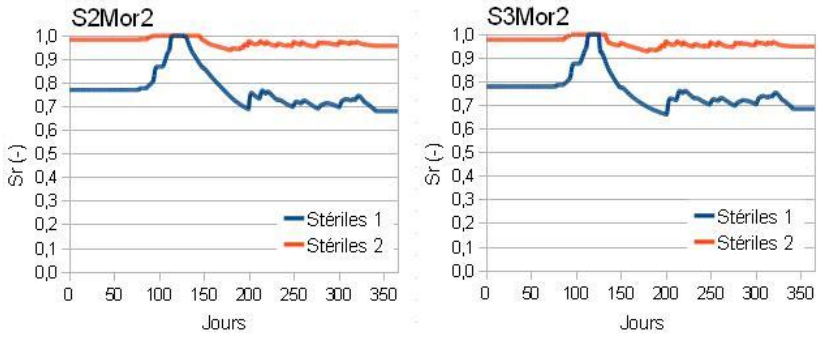


Figure 7.53: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), 1,40 m sous la surface des résidus ; les résultats sont montrés sur une année, selon le type de stériles employés comme bris capillaire (entre les résidus et la couche de rétention)

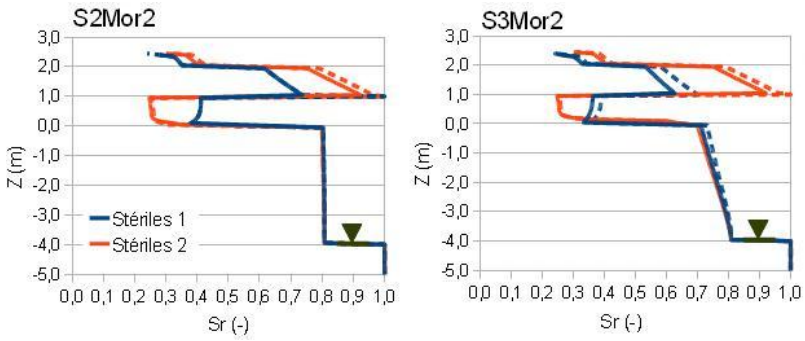


Figure 7.54: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil du degré de saturation à la même date pour une année normale (pointillés)

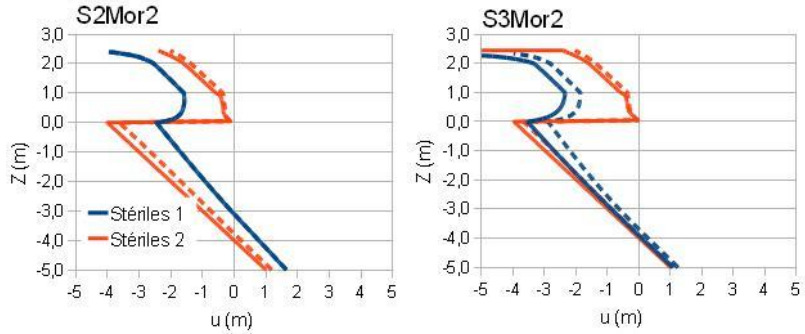


Figure 7.55: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la même date pour une année normale (pointillés)

On constate à la figure 7.53 que le comportement de la couche de rétention est un peu différent selon le matériau employé pour les bris capillaire. Avec les stériles 1 et les résidus S2, le degré de saturation dans la couche de rétention devient assez élevé (S_r > 85%) après la fin de l'hiver. Le bris capillaire à l'évaporation est efficace, mais il n'empêche pas complètement toute évaporation. Avec les résidus S3 par contre, le degré de saturation de la couche de rétention peut diminuer jusqu'à des valeurs proches de 67%. Dans ces conditions, la couche de moraine n'est plus une barrière à l'oxygène efficace. Avec les stériles 2, le bas de la couche de rétention demeure à un

degré de saturation plus élevé (environ 95%) tout au long de l'année. Les stériles 2 sont donc plus efficaces pour créer un bris capillaire avec la couche de rétention et limiter sa désaturation par drainage gravitaire. Dans tous les cas, la couche supérieure (stériles 1) semble être efficace contre l'évaporation.

Sur la figure 7.54 on constate que la couche de rétention en présence des stériles 1 se désature légèrement dans le cas des résidus S2 mais que son degré de saturation demeure supérieur à 80% sur toute sa hauteur. Par contre, on observe qu'en présence des résidus S3, la désaturation est beaucoup plus marquée (S_r dans la couche de rétention est compris entre 55% et 70% environ). Le degré de saturation dans la couche de rétention en présence de stériles 2 reste pour sa part supérieur à 80% quelques soient les résidus sous-jacents. Les succions développées dans la couche de stériles 1, en haut (figure 7.55) sont très élevées et le degré de saturation est par conséquent faible. Par contre, les pressions dans la couche de rétention semblent peu affectées (les succions simulées sont proches des valeurs hydrostatiques) ce qui indique que la barrière à l'évaporation est efficace.

Tableau 7.21: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2) pour deux types de stériles (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	Stériles 1		Stériles 2	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
S2Mor2	241	21%	2,10	>999%
S3Mor2	302	17%	2,37	>999%

Les résultats présentés au tableau 7.21 confirment les observations précédentes. Avec les stériles 1 et les résidus S2, le flux d'oxygène est inférieur aux critères de design et l'efficacité de la couverture semble assurée. Par contre, cette configuration avec les stériles S3 est peu efficace et le flux d'oxygène traversant la couverture est plus important. Dans le cas des stériles S2, le double effet de barrière capillaire, permet de limiter efficacement les flux d'oxygène à travers la couverture, quelques soient les résidus sous-jacents.

Année sèche

Afin d'analyser le comportement de la couverture tricouche à effets de barrière capillaire pendant une période de sécheresse prolongée, on réalise des simulations en modifiant les données climatiques en supprimant toute précipitation pendant les mois de juillet et août. On considère les mêmes modèles numériques que dans le cas précédent.

On compare les variations du degré de saturation 1,40 m sous la surface (ou 10 cm au-dessus de la base de la couche de rétention ; figure 7.56) et on présente les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 243, soit le 31 août ; figures 7.57 et 7.58). Les flux d'oxygène estimés sont synthétisés dans le tableau 7.22.

On constate à la figure 7.56 que la désaturation de la couche de rétention d'eau est sensiblement plus importante qu'au cours d'une année normale (le degré de saturation peut atteindre des valeurs aussi faibles que 60% à la base de la couche de rétention, dans le cas S3Mor2 avec stériles 1, contre 67% pour une année normale). Les profils du degré de saturation et de pression aux figures 7.57 et 7.58 indiquent que les succions développées dans la couche de protection à l'évaporation sont plus élevées que dans le cas d'une année normale, mais la couche de rétention semble toutefois assez peu affectée.

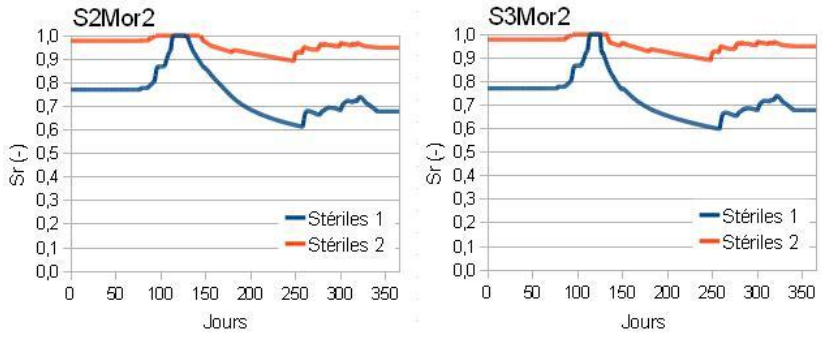


Figure 7.56: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), 1,40 m sous la surface des résidus ; les résultats sont montrés pour une année sèche, selon le type de stériles employés comme bris capillaire (entre les résidus et la couche de rétention)

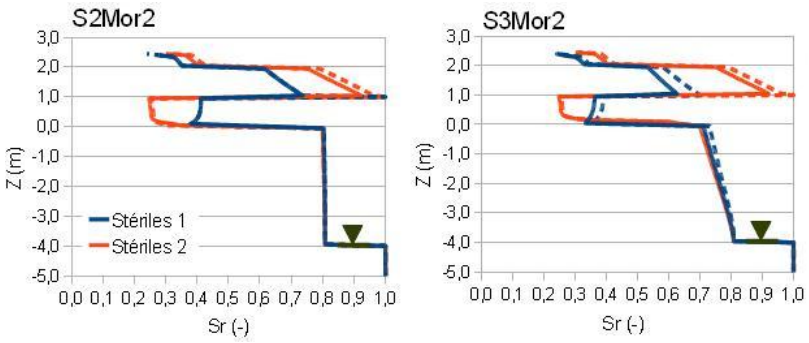


Figure 7.57: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (pour une année sèche, soit le jour 243 ; 31 août) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la même date pour une année normale (pointillés)

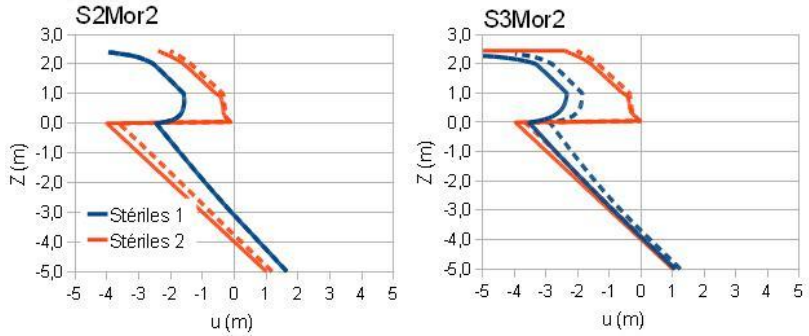


Figure 7.58: Profils des pressions interstitielles simulées pour une CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 243) selon le type de stériles employés pour le bris capillaire inférieur. On montre également le profil des pressions à la même date pour une année normale (pointillés)

Tableau 7.22: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la CEBC tricouche (S2Mor2 et S3Mor2), pour une année sèche et pour deux types de stériles (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	Stériles 1		Stériles 2	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
S2Mor2	297	17%	7,64	654%
S3Mor2	385	13%	8,45	592%

Les résultats du tableau 7.22 indiquent que de façon générale, les flux d'oxygène à travers les recouvrements augmentent, mais que l'efficacité des recouvrements reste comparable à celle pour le cas d'une année humide.

On en déduit que la couverture à double effet de barrière capillaire, construite avec des Stériles 2, est la configuration qui permet de limiter au maximum les flux d'oxygène même en conditions de sécheresse.

7.5.5 Synthèse des résultats des simulations hydrogéologiques

Un certain nombre de configurations de recouvrement différentes pour les sites Manitou et Selbaie a été simulé. En résumé, on retient que :

- dans le cas du site Manitou, un recouvrement monocouche peut-être efficace (en terme de flux d'oxygène) à condition que la nappe soit suffisamment élevée (moins de 2 m de profondeur environ sous la surface des résidus). Augmenter l'épaisseur de la couche de résidus Goldex ne permet pas de satisfaire aux critères de flux quand la nappe est plus profonde que 2 m. Pour le site Selbaie, une couverture monocouche ne semble pas être efficace pour une nappe située à plus de 2 m de profondeur ;
- un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire (fin sur grossier) est généralement efficace pour les deux sites, à condition que la couche de rétention soit suffisamment épaisse (2 m ou plus) pour limiter les effets de l'évaporation. Les stériles 2 sont mieux adaptés au développement d'un bris capillaire fort avec les résidus Goldex ou la moraine. L'augmentation du niveau de la nappe peut améliorer sensiblement l'efficacité du recouvrement ;
- enfin, un recouvrement tricouche à effets de barrière capillaire constitue la configuration la plus efficace pour limiter le flux d'oxygène, en particulier lorsque la couche de matériaux grossiers inférieure est constituée de stériles 2.

Afin de compléter l'analyse de l'efficacité de ces recouvrements, le chapitre 8 présente les résultats des simulations sur le comportement hydrogéochimique des couvertures et des résidus réactifs.

CHAPITRE 8 MODÉLISATIONS HYDROGÉOCHIMIQUES

Les modélisations hydro-géochimiques sont réalisées au moyen du code numérique Min3P (Mayer et al., 2002 ; voir description détaillée à la section 2.6.2). Comme pour les simulations hydrogéologiques réalisées avec Vadose/W, l'étude débute par la calibration des modèles numériques, où il s'agit de reproduire numériquement les résultats obtenus sur les petites et les grandes colonnes de laboratoire. Grâce à ces résultats, et en utilisant certains paramètres décrits au chapitre 4, il a ensuite été possible d'étendre l'analyse à des cas plus généraux et à des conditions de terrain. L'objectif final est d'évaluer quel pourrait être le comportement des résidus réactifs et de leur couverture *in situ* à long terme.

8.1 Construction des modèles numériques

8.1.1 Construction géométrique

Tous les modèles numériques sont construits selon un écoulement unidimensionnel uniquement (1D vertical). Les colonnes se présentent comme des parallélépipèdes de 1 m² de section avec un seul élément par élévation. Le maillage vertical utilise des éléments d'une hauteur de 5 cm pour les modèles de calibration (essais de laboratoire) et de 10 cm pour les modèles de terrain (voir discussion à la section 8.4).

La taille totale du modèle correspond aux dimensions réelles des colonnes (voir chapitre 3). Pour les modèles de terrain, on choisira une épaisseur de 10 mètres de résidus. Ce choix est basé sur les considérations suivantes :

- les parcs à résidus étudiés sont épais (même plus que 10 mètres par endroit, notamment sur Manitou) et le temps de résidence dans les résidus peut avoir son importance dans les calculs ;
- on souhaite évaluer le comportement et l'évolution d'une nappe libre contaminée en profondeur.

Les simulations se font en deux étapes. Dans un premier temps, on simule les conditions d'écoulement uniquement, en appliquant des conditions frontières représentatives des conditions de laboratoire ou de terrain (voir 8.1.4), et en ne considérant aucun transport réactif. L'objectif ici est de s'assurer que le code Min3P permet de reproduire correctement les conditions

hydrogéologiques au sein des matériaux (résidus + couverture). Un certain nombre de simplifications ont été opérées sur ces modèles. D'abord, on ne considère plus de céramique ni de tube en U. L'évaporation ne peut être simulée explicitement (voir plus loin). La géométrie générale de la colonne est également simplifiée à un modèle 1D, car la légère variation de diamètre des sections n'influe pas sur les résultats des simulations hydrogéologiques (chapitre 4). On fait l'hypothèse que cela n'a pas d'effet non plus sur la géochimie.

Une fois le modèle hydrogéologique validé, on emploie les mêmes paramètres auxquels viennent s'ajouter les données géochimiques. En raison des limitations du code, il est difficile de reproduire les comportements géochimiques dans un système multicouche lorsque chaque matériau a une composition minéralogique différente (en particulier pour des systèmes de plus de deux couches, ce qui sera le cas dans la plupart des simulations des conditions de terrain). La méthode retenue ici est donc la suivante. On simule dans un premier temps le régime hydrique dans une colonne complète, en supposant que la minéralogie (celle de la couverture) est la même partout. On utilise ensuite les données géochimiques extraites à l'interface résidus-couverture comme paramètres d'entrée pour un second modèle. Celui-ci n'est constitué que des résidus (sans couverture) et les conditions frontières demeurent les mêmes. Le fait que l'infiltration soit appliquée directement sur les résidus et que l'eau n'ait plus à traverser la couverture, entraîne une certaine avance dans l'évolution du front de contamination. Toutefois, celle-ci reste limitée et les résultats géochimiques demeurent valides sur le long terme (voir discussion à la section 8.4).

L'effet de la tortuosité sur la diffusion de l'oxygène est estimé au moyen du modèle d'Aachib et al. (2004). Le code originel utilise le modèle de Millington et Quirk (1960, 1961), mais il a été modifié pour mieux reproduire la diffusion de l'oxygène dans des milieux partiellement saturés (modification également utilisée par Ouangrawa, 2007). Voir l'annexe 8.1 pour le détail des modifications au code.

8.1.2 Paramètres de convergence

Tous les paramètres de convergence employés ne seront pas décrits ici, car les valeurs de contrôles sont nombreuses et rarement modifiées dans les simulations. Les paramètres types sont présentés à l'annexe 8.2.

On note néanmoins que :

- le pas de temps minimum est généralement fixé à 10^{-20} jours. Il a été constaté empiriquement que cette valeur permettait une bonne amorce des calculs et pouvait suffire à outrepasser quelques déséquilibres géochimiques initiaux (liés à des analyses chimiques incomplètes par exemple) ;
- l'évaluation de la convergence se fait sur des bilans de masse (« mass balance ») ;
- la tolérance (ou critère de convergence ; « convergence tolerance ») dans les calculs de l'écoulement de l'eau et des équilibres géochimiques est fixée généralement à 10^{-4} (système global ; « newton iteration settings »).

8.1.3 Paramètres hydrogéologiques

Les fonctions de rétention d'eau employées dans les modèles géochimiques sont les mêmes que dans les modèles hydrogéologiques réalisées avec Vadose/W. On emploie les paramètres du modèle de van Genuchten (1980) pour décrire les courbes (voir tableau 7.2). Les fonctions de perméabilité sont estimées automatiquement par le code Min3P à partir du modèle de Mualem (1976). Les valeurs des conductivités hydrauliques k_{sat} sont les mêmes que dans les simulations avec Vadose/W (tableau 5.2).

Par ailleurs, le code Min3P a été modifié pour reproduire l'effet de l'hystérésis (les ajouts au code sont présentés à l'annexe 8.1). Le phénomène peut être particulièrement important dans l'estimation des flux d'oxygène et donc du taux d'oxydation des résidus et il doit être pris en compte dans les simulations. Ainsi, dans la nouvelle version du code (min3pjm2011.exe), on entre dans le fichier « input » le degré de satiation maximum S_{w_max} de chaque matériau, sur la base des courbes montrées à la figure 7.5). Si celui-ci se resature complètement, la valeur de ce paramètre vaut 1.

En raison de la difficulté à modifier les paramètres des matériaux au cours des calculs, on utilisera les courbes de rétention d'eau soit uniquement en mouillage soit uniquement en drainage. Ceci pourrait occasionner une sous-estimation du degré de saturation pour le premier cycle de drainage des colonnes (et donc une surestimation temporaire des flux d'oxygène).

L'effet de l'hystérésis sur les simulations géochimiques sera évalué plus en détail à la section 8.4.

8.1.4 Eléments pris en compte

Dans les simulations géochimiques, il faut définir les éléments principaux d'intérêt (ceux qui vont être suivis dans les simulations), les composés secondaires éventuellement présents, les gaz considérés, les couples redox pertinents, les solides présents dans le milieu ainsi que ceux qui pourraient se former (précipités secondaires).

Les éléments suivis dans les simulations sont principalement ceux qui ont été mesurés au laboratoire, auxquels s'ajoutent d'autres éléments indispensables aux réactions (par exemple CO_3^{2-} produit par la dissolution des carbonates et qui permet la neutralisation de l'eau interstitielle) ou aux couples rédox (HS^-), ou encore certains éléments non mesurés mais qui peuvent permettre d'équilibrer les charges ioniques (par exemple Cl^-). Au total, on inclut dans les simulations 22 éléments, regroupés dans le tableau 8.1.

Tableau 8.1: Eléments et composés principaux employés dans les modèles géochimiques

	Modèles hydro-géochimiques (terrain et laboratoire)
Eléments principaux (components)	Ca^{2+}, K^+, Cl^-, H_4SiO_4, Al^{3+}, CO_3^{2-}, H^+, $O_2(aq)$, Fe^{2+}, Fe^{3+}, SO_4^{2-}, Mg^{2+}, Na^+, Mn^{2+}, Zn^{2+}, Ni^{2+}, Pb^{2+}, Cu^{2+}, Co^{2+}, Cd^{2+}, HS^-, Mn^{3+}

Les trois couples rédox considérés sont :

- Fe^{2+}/Fe^{3+}
- Mn^{2+}/Mn^{3+}
- SO_4^{2-}/HS^-

Les espèces secondaires pouvant se former sont déterminées à l'aide du code d'équilibre thermodynamique MinteqA2 (Allison et al., 1991) et sont entrées dans le modèle, soit 138 au total (voir annexe 8.2). Toutes ces espèces ne sont pas pertinentes, mais Min3P rejette automatiquement les espèces présentes en trop faibles quantités. On permet ainsi au système de s'équilibrer selon les conditions propres à chaque cas.

Les minéraux utilisés pour chaque matériau dans les simulations sont présentés au tableau 8.2 (sur la base des analyses minéralogiques DRX ; voir section 4.1.6.2). Le gypse et la ferrihydrite, ainsi que d'autres précipités secondaires, ne sont pas toujours intégrés aux modèles car ils engendrent divers problèmes (divergence, instabilités du code, etc.).

Tableau 8.2: Minéraux employés dans les modèles géochimiques (selon les matériaux)

MNO	MO	Goldex	SNO	SO	Moraine
Pyrite	Pyrite	Calcite	Pyrite	Pyrite	Calcite
Chlorite	Gypse	Dolomite	Dolomite	Dolomite	Chlorite
Muscovite	Chlorite	Chlorite	Gypse	Gypse	Dolomite
Quartz	Muscovite	Dolomite	Chlorite	Chlorite	Quartz
Anorthite	Quartz	Quartz	Muscovite	Muscovite	Anorthite
Albite	Anorthite	Anorthite	Quartz	Quartz	Albite
	Albite	Albite	Anorthite	Anorthite	
			Albite	Albite	

Certaines simplifications ont été réalisées par rapport aux mesures de laboratoire (voir les résultats des mesures minéralogiques au chapitre 3). Ainsi, certains minéraux (comme par exemple l'actinolite et l'enstatite) n'ont pas été considérés car ils sont absents du code. Dans d'autres cas, les teneurs étaient beaucoup trop faibles pour être vraiment pertinentes (comme par exemple les 0,5% de microcline et de biotite dans la moraine). D'autres minéraux ne semblaient pas réalistes au vu de la minéralogie des sites (du rutile a notamment été identifié à l'état de trace dans certains échantillons de résidus Manitou, mais on n'en retrouve dans aucune autre mesure sur ce site). Enfin, dans certains cas, des minéraux non mesurés ont été ajoutés, car ils ont été détectés dans d'autres échantillons (sphalérite notamment ; Bussière et al., 2011), ou parce que la chimie du lixiviat laisse penser qu'ils étaient présents initialement (comme la dolomite, produisant du Mg, et pouvant se dissoudre partiellement au cours des essais de mouillage-drainage).

On a fait l'hypothèse dans les simulations que l'on pouvait employer le modèle d'oxydation directe dans les modèles Min3P pour simuler le comportement des résidus dans les colonnes et en conditions de terrain. Or, il a été vu à la section 2.1.7 que l'oxydation indirecte peut aussi jouer un rôle important dans l'acidification du milieu, en particulier lorsque le pH est faible et que les

concentrations en Fe(III) sont importantes, ce qui est notamment le cas pour les résidus Manitou (et en particulier les colonnes MNOP et MNOG). Le code Min3P a alors été modifié de différentes manières pour reproduire ce phénomène. Au vu des résultats, présentés en détail à l'annexe 8.3, il a été jugé qu'il était possible de reproduire le comportement de la pyrite avec le modèle d'oxydation directe (incluant le modèle du noyau réactif).

Ces points seront abordés en détails dans la section sur la calibration.

8.1.5 Conditions frontières

Les conditions frontières sont de deux types dans les simulations : hydrogéologiques (qui régissent l'écoulement) et géochimiques (qui influent sur le comportement géochimique des matériaux).

On s'intéresse dans un premier temps aux conditions hydriques. La condition frontière inférieure est fixée de la manière suivante :

- dans les simulations des essais en laboratoire, on utilise les modèles réalisés avec Vadose/W pour déterminer les variations de la pression d'eau à la base des colonnes ;
- dans les simulations des conditions de terrain, on applique une nappe libre fixe à la base des colonnes. La colonne de résidus faisant 10 mètres de hauteur, la nappe est donc fixée à une élévation de 8 m, 6 m et 4 m (soit respectivement -2 m, -4 m et -6 m sous l'interface résidus-couverture).

La condition frontière supérieure doit prendre en compte à la fois l'infiltration (que ce soit au laboratoire par l'ajout d'eau, ou sur le terrain par les précipitations) et l'évaporation (qui n'est pas simulée par Min3P). On a alors :

- dans les simulations des essais en colonne, on applique un flux d'infiltration de telle sorte que le volume total d'eau ajouté au début de chaque cycle soit égal au volume d'eau récupéré dans les essais à la base des colonnes à la fin de chaque cycle (au prorata des surfaces des sections des modèles numériques et des colonnes) ;
- dans les simulations des conditions de terrain, on utilise les résultats obtenus avec Vadose/W. Le code calcule le bilan d'eau cumulé à travers chaque frontière (flux négatif lorsque l'eau ressort de la colonne, flux positif lorsqu'elle s'infiltre). On est donc capable

d'estimer le flux net d'entrée dans le modèle. Afin de s'approcher au mieux des conditions réelles de terrain (pour lesquelles alternent périodes de précipitation et de sécheresse), on répartit le flux selon les précipitations réelles ; on calcule ainsi un prorata des flux d'infiltration journaliers sur l'année (à partir des résultats de Vadose/W) et on répartit le volume total à ajouter en conséquence (un exemple est montré à la figure 8.1).

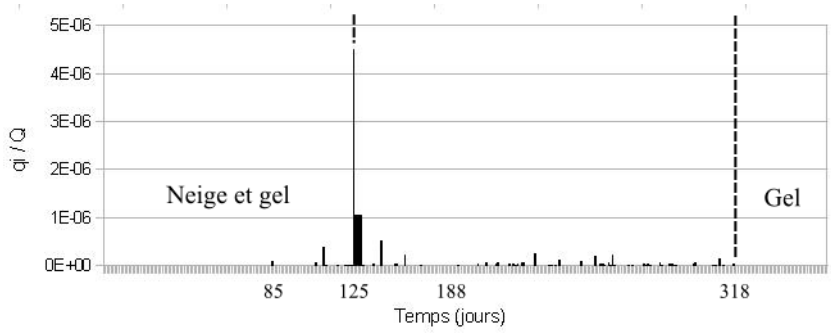


Figure 8.1: Exemple de condition frontière supérieure (flux d'infiltration) dans Min3P pour la simulation d'un recouvrement tricouche (résidus M3, stériles 2, nappe à -4 m) ; on présente les résultats sous forme de rapport entre le flux d'infiltration journalier q_i et le flux d'infiltration totale annuel Q (en réalité, les flux sont définis en m/s dans le logiciel)

Les conditions frontières sont propres à chaque simulation (des essais de laboratoire ou des conditions de terrain).

Pour les conditions frontières géochimiques, la procédure a été la suivante :

- la condition frontière inférieure (« outflow boundary = second ») se voit appliquer un gradient de concentration nul, ce qui implique qu'il n'y a pas de phénomène de dispersion, mais uniquement d'advection ;
- la condition frontière supérieure (« inflow boundary = mixed ») est estimée tel que décrit plus haut (section 8.1.1). Au sommet des couvertures on considère une eau déminéralisée dont les concentrations ont été mesurées (voir chapitre 3) et légèrement adaptées afin d'assurer son électroneutralité.

Pour les modèles de terrain, la même eau sera employée. Il sera montré plus avant (voir section 8.4.6) que la qualité de l'eau d'infiltration dans ces simulations n'a que peu d'influence sur la géochimie dans les résidus (pour les éléments que l'on analyse).

La composition chimique de l'eau infiltrée est présentée au tableau 8.3. L'analyse de base est adaptée de Molson et al. (2008) et a été complétée avec les éléments analysés ici. Le bilan ionique est de +0,82% (estimé par le code Min3P).

Tableau 8.3: Composition chimique de l'eau ajoutée au sommet des modèles (colonnes et terrain) ; l'analyse de base est adapté de Molson et al. (2008) et a été complétée pour les besoins de cette étude

Eléments	Unité	Entrée	Eléments	Unité	Entrée
Ca^{2+}	mol/L	$2{,}20.10^{-5}$	Mg^{2+}	mol/L	$8{,}23.10^{-7}$
K^{+}	mol/L	$2{,}00.10^{-5}$	Na^{+}	mol/L	$2{,}00.10^{-5}$
Cl^{-}	mol/L	$8{,}00.10^{-5}$	Mn^{2+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$
H_4SiO_4	mol/L	$1{,}99.10^{-20}$	Zn^{2+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$
Al^{3+}	mol/L	$1{,}28.10^{-20}$	Ni^{2+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$
CO_3^{2-}	pCO_2	$5{,}00.10^{-4}$	Pb^{2+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$
H^{+}	pH	6,00	Cu^{2+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$
O_2(aq)	pO_2	0,21	Co^{2+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$
Fe^{2+}	mol/L	$1{,}29.10^{-20}$	Cd^{2+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$
Fe^{3+}	mol/L	$2{,}00.10^{-5}$	HS^{-}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$
SO_4^{2-}	mol/L	$1{,}00.10^{-5}$	Mn^{3+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$

8.1.6 Conditions initiales

D'un point de vue hydrogéologique, les conditions initiales sont les suivantes :

- pour les simulations des essais de laboratoire, on impose un niveau de nappe au sommet des colonnes de telle sorte que les matériaux (résidus et couverture) soient initialement à satiation ($S_r = S_{r_max}$) ;

- pour les simulations des conditions de terrain, on impose un niveau de nappe constant (2 m, 4 m ou 6 m sous l'interface résidus-couverture).

Du côté géochimique, les conditions initiales sont établies comme suit :

- pour les simulations des essais de laboratoire, on utilise les résultats des analyses ICP-AES et par absorption atomique effectuées sur l'eau interstitielle prélevée dans les colonnes lors de leur montage. Cette chimie n'est pas forcément représentative de la qualité de l'eau *in situ* en raison des mélanges effectués pour homogénéiser les matériaux, du délai entre le prélèvement des résidus sur le terrain et le montage des colonnes, ainsi que des dilutions liées à l'ajout d'eau pour conserver les échantillons ;
- pour les simulations des conditions de terrain, on réalise un modèle numérique sans couverture pour évaluer le comportement à long terme des résidus non recouverts. On fait l'hypothèse dans ce cas que la minéralogie n'évolue pas au cours du temps.

La minéralogie initiale est directement liée aux mesures minéralogiques par DRX. Dans certains cas, des minéraux ont pu être ajoutés ou retirés (voir section 8.2).

8.1.7 Eléments orphelins

Comme décrit plus haut (voir sections 5.5 et 6.4), on mesure dans le lixiviat des grandes et petites colonnes certains éléments (Zn, Pb, Cu, Co, Cd) qui ne semblent provenir d'aucun minéral détecté au DRX. Plusieurs hypothèses peuvent expliquer leur présence, mais on supposera ici qu'il s'agit d'éléments de substitution présents dans les grains de pyrite. Cette hypothèse est appuyée par les observations suivantes :

- les concentrations de ces éléments varient parallèlement aux concentrations de sulfates ;
- les substitutions sont fréquentes dans la pyrite (p.ex. Klein et Hurlbut, 1999) ;
- les substitutions ne sont pas détectées au DRX ;
- les concentrations des éléments orphelins ne représentent que quelques centièmes des concentrations en fer ou en sulfates mesurées.

Afin de prendre en compte ce phénomène, on modifiera légèrement les réactions d'oxydation dans le code Min3P en ajoutant ces éléments comme produits de la réaction. Ces réactions calibrées seront décrites en détails dans les sections 8.2.3 à 8.2.6.

8.2 Simulations des essais en petite colonne

8.2.1 Méthodologie

La calibration des simulations avec Min3P se fait en premier lieu sur les résultats des essais en petites colonnes. Leur taille réduite et leur géochimie simplifiée (un seul matériau) rendent la calibration plus facile et plus précise. Dans un premier temps, on s'assure que le modèle reproduit bien le comportement hydrogéologique du système ; pour cela, on se base sur les mesures de laboratoire (teneurs en eau et pressions principalement) ainsi que sur les résultats obtenus avec Vadose/W. Normalement, on ne s'attend pas à devoir changer les paramètres hydriques des matériaux (CRE ou fonction k_u) étant donné que les mêmes fonctions (Mualem, 1976 ; van Genuchten, 1980) ont été employées dans les deux codes. Cette partie de la calibration sera donc d'avantage une validation du code et la vérification que la modification de la condition frontière est correcte et qu'elle permet de reproduire (indirectement) les effets de l'évaporation. Ceci fait, on peut alors calibrer les résultats de la partie géochimique sans toucher aux paramètres hydriques. Il existe toutefois différentes sources d'incertitudes dans les mesures :

- la présence et les teneurs de certains minéraux en raison de l'imprécision des mesures DRX ;
- la réactivité de chaque minéral ;
- les paramètres du modèle du noyau réactif pour les minéraux sulfureux.

Il faut aussi ajouter les contraintes et limitations liées au code lui-même (convergence, vitesse de calcul, équilibres chimiques, etc.). Cette étape de la calibration sera décrite en détail par la suite.

8.2.2 Validation des résultats hydrogéologiques

En appliquant la méthode décrite plus haut, on obtient une bonne concordance entre les résultats des simulations Min3P et Vadose. Un exemple de résultats est présenté à la figure 8.2. Les autres résultats sont fournis à l'annexe 8.4 ; ils sont similaires.

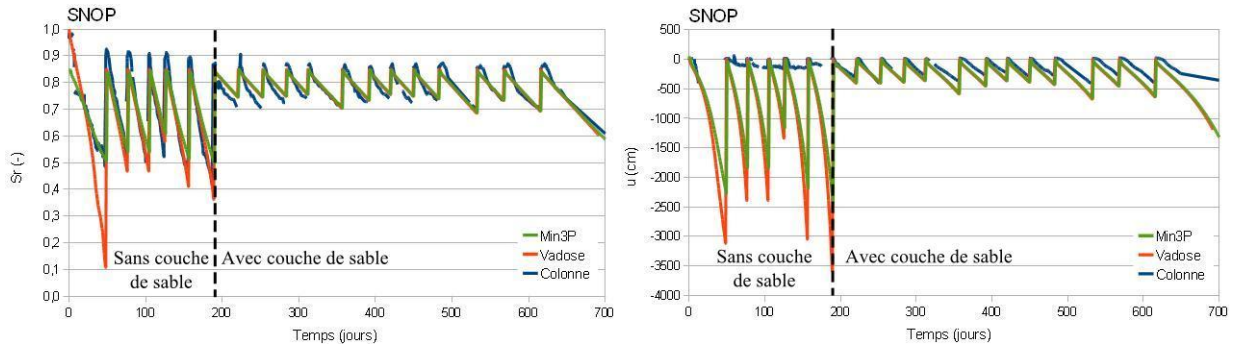


Figure 8.2: Degrés de saturation et charge de pressions interstitielles dans la couverture de la colonne SNOP au cours des cycles de mouillages-séchages, mesurés et simulés par Min3P et Vadose/W

On constate à la figure 8.2 que les courbes simulées avec Min3P et Vadose sont assez proches. On observe un écart un peu plus grand quand l'évaporation est plus importante (avant l'ajout de la couche de sable), et les degrés de saturation en fin de cycle sont généralement surestimés d'environ 10% dans les résultats des simulations avec Min3P par rapport à ceux obtenus avec Vadose/W. Ce phénomène est lié à l'évaporation très intense au cours de cette phase. On observe également que dans la même phase les succions estimées par Min3P sont plus faibles (d'environ 500 cm) que celles calculées par Vadose. La concordance sur les derniers cycles est par contre très bonne et les courbes sont presque superposées. Les résultats obtenus avec Min3P semblent un peu plus proches des résultats expérimentaux que ceux obtenus avec Vadose/W.

Globalement et compte tenu des simplifications réalisées sur les conditions frontières, on peut donc estimer que Min3P reproduit correctement les conditions hydrogéologiques dans les colonnes.

8.2.3 Simulation des essais dans la petite colonne MNOP

Comme précisé plus tôt, la minéralogie des résidus MNO a été quelque peu modifiée pour :

- simplifier les simulations et accélérer les temps de calculs en retirant les minéraux à l'état de traces ou n'ayant pas ou peu d'influence sur la chimie globale du système a priori (i.e. jarosite, orthoclase, corundum) ;

- simplifier le modèle numérique en ignorant les éléments non inclus dans la base de données de Min3P (i.e. actinolite) ;
- améliorer la convergence en retirant les précipités secondaires qui ne sont pas forcément stables aux pH estimés (i.e. gypse, boehmite).

Ces éléments non pris en compte ont été remplacés par du quartz afin de respecter la porosité globale du milieu. Disposant de plusieurs mesures minéralogiques, on a choisi de prendre une moyenne des divers échantillons, arrondie à l'unité ou au dixième de pourcent parfois.

Au cours de la calibration, on ne modifie pas les teneurs minéralogiques, mais on fait varier les paramètres « area » (surface de réaction), pour les minéraux se dissolvant selon une loi d'équilibre de surface, ou « scalfac », pour les minéraux utilisant le modèle du noyau réactif (« shrinking core »). Pour ces derniers, les paramètres « radi » et « rads », correspondant respectivement au rayon total du grain et au rayon interne non oxydé (voir section 2.1.7 pour plus de détails) peuvent également être modifiés. On fera ici l'hypothèse que la surface des grains est généralement relativement « fraiche » et que la corole d'oxydation est donc « fine ». La valeur de « rads » est estimée à partir de la valeur du diamètre équivalent D_H (équation 2.52).

L'ajustement des paramètres géochimiques se fait de façon itérative. Les valeurs du paramètre « area » (e.g. Mayer al., 2002; Ouangrawa, 2007) peuvent être très variables entre les minéraux et peuvent être comprises entre 10^2 (dans certains cas, pour certains minéraux réactifs, comme l'albite) et 10^{-14} (pour les minéraux plus stables comme certains silicates), et dépendent des conditions du milieu. Le paramètre « scalfac » est généralement compris entre 10^{-4} et 10^{-8}.

Les paramètres minéralogiques finaux utilisés dans les simulations des résultats sur les résidus MNO sont présentés au tableau 8.4.

Pour calibrer les modèles, on se base sur les mesures chimiques réalisées sur les lixiviats prélevés à chaque cycle de mouillage-drainage à la base des colonnes. L'objectif est de reproduire au mieux ces résultats, en mettant l'accent sur les tendances générales plutôt que sur les valeurs absolues (rappelons d'ailleurs ici que les échantillonnages de lixiviat se sont étalées sur deux ou trois jours, et qu'un certain mélange s'est donc produit ; voir aussi section 3.3.5). On présente à la figure 8.3 les résultats obtenus lors des simulations avec les paramètres minéralogiques regroupés au tableau 8.4.

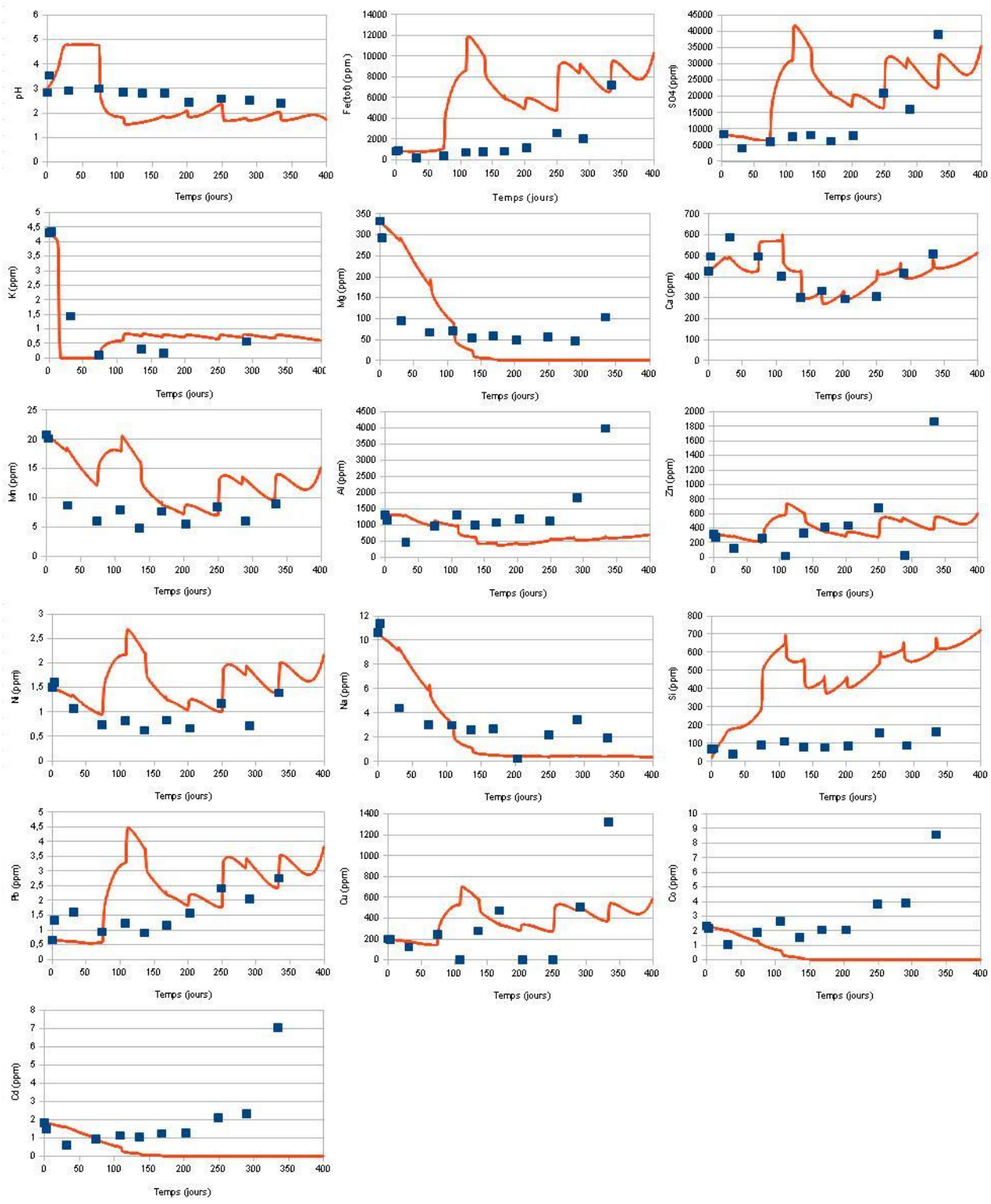


Figure 8.3: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la petite colonne MNOP au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulations)

Tableau 8.4: Paramètres minéralogiques utilisés dans les simulations des essais dans la petite colonne MNOP.

Minéraux	%Massique	Fraction Volumique	Area / Scalfac	radi/rads
Chlorite	5,00	$2{,}60.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-12}$	-
Muscovite	22,00	$1{,}18.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Quartz	55,00	$3{,}20.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Anorthite	5,00	$2{,}94.10^{-2}$	$5{,}0.10^{-10}$	-
Albite	1,00	$5{,}99.10^{-3}$	$1{,}0.10^{-12}$	-
Pyrite	12,00	$2{,}72.10^{-2}$	$7{,}0.10^{-6}$	$4{,}00.10^{-6}$ / $3{,}98.10^{-6}$

La première observation que l'on peut faire sur la figure 8.3 est que la qualité de la calibration varie beaucoup d'un élément à l'autre, ce qui indique la difficulté de calibrer un système global aussi complexe. Dans cette étude, il est néanmoins possible de dégager un certain nombre d'éléments sur lesquels concentrer ses efforts. Ainsi, s'attache-t-on plus spécifiquement à l'étude des éléments suivants :

- pH : il s'agit du paramètre clef relié aux études de DMA ;
- Fer(tot) : le fer n'est pas forcément un bon traceur de la contamination en raison de sa propension à précipiter dès que le pH est supérieur à 4,0. Mais, étant produit directement par l'oxydation des minéraux sulfureux, il peut s'avérer un bon indicateur de contamination dans les milieux acides ;
- Sulfates : ce sont souvent de bons indicateurs de l'oxydation des minéraux sulfureux et de la génération de DMA. Ils sont relativement mobiles en général, ce qui facilite leur utilisation comme traceur ;
- Ca et Mg : ils proviennent en général (mais pas toujours) de la dissolution des carbonates. Ils sont donc un bon indicateur de la présence d'un pouvoir tampon dans le milieu ;
- Zn : ce métal est produit par l'oxydation de la sphalérite ou libéré lors de l'oxydation de la pyrite (où il peut être présent comme élément de substitution au fer). Il s'agit d'un des éléments traditionnellement analysés sur le terrain, notamment parce qu'il précipite difficilement. C'est généralement un bon indicateur de contamination ;

- Eh : le potentiel d'oxydoréduction n'est pas inclus dans les mesures de laboratoire. Il s'agit d'un paramètre important pour prévoir la spéciation des espèces dans les simulations à grande échelle. On présente les résultats simulés plus tard (section 8.3.6 et suivantes)

Sur la figure 8.3 on observe que le pH est légèrement sous-estimé par le modèle à partir du quatrième cycle. Les résultats des premiers cycles montrent des pH autour de 5, assez loin de la valeur de 3 mesurée. Au troisième cycle, le pH diminue et se maintient autour de 2, contre des valeurs mesurées comprises entre 2,3 et 2,8. On ne note pas ici la même tendance à la baisse que dans les petites colonnes. Au début de chaque cycle, le pH simulé diminue de quelques dixièmes d'unité avant de remonter progressivement de la même valeur au cours du drainage-séchage.

Les concentrations en fer et en sulfates suivent une tendance similaire. Au cours des deux premiers cycles, les valeurs restent relativement faibles autour de 1000 ppm et 5000 ppm respectivement, avant d'augmenter à 12 000 et 40 000 ppm au 5^{e} cycle. Cette augmentation ne suit pas les résultats de laboratoire, mais concorde avec la baisse de pH mesurée. Les concentrations diminuent ensuite de moitié environ, puis réaugmentent progressivement, cycle après cycle, à partir du jour 250 environ. Cette augmentation est également observée dans les résultats expérimentaux. A la fin des essais, les concentrations en fer simulées sont autour de 9000 ppm contre des valeurs mesurées de 7000 ppm ; les concentrations calculées de sulfates sont autour de 33 000 ppm et les résultats mesurés sont de 40 000 ppm environ. Les valeurs simulées sont donc un peu différentes de celles mesurées, mais restent dans le même ordre de grandeur. Le pic des cycles 4 et 5 est difficile à expliquer (il est observable malgré la calibration). Il pourrait être lié à un équilibrage minéralogique initial dans les simulations.

On présente sur un diagramme Eh-pH simplifié du fer à la figure 8.4 la plage des valeurs de Eh et de pH simulées pour l'essai en colonne MNOP (et aussi MOP). On constate que l'eau interstitielle se trouve en milieu oxydant à cheval sur la zone de prédominance de Fe^{3+} et $Fe(OH)_{3(s)}$. Les simulations semblent donc indiquer que le fer se retrouve au bas de la colonne à la fois sous forme ionique et précipitée.

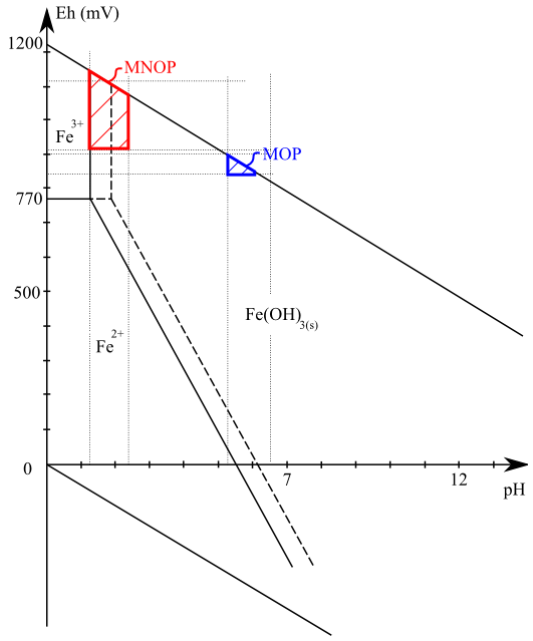


Figure 8.4: Diagramme Eh-pH simplifié du fer pour une concentration de 10 000 ppm (100 ppm en pointillés) avec la plage des valeurs de pH et Eh simulées au bas des colonnes MNOP et MOP

Dans le cas des résidus MNO, le calcium et le magnésium ne proviennent pas de la dissolution des carbonates (car non détectés dans les échantillons et absents des simulations). Le calcium est produit par la dissolution de l'anorthite, présente à hauteur de 5% dans les résidus (mais des valeurs supérieures à 10% ont été mesurées avant le début des essais). Le modèle numérique reproduit très bien les concentrations de Ca dans la colonne. Initialement élevées (autour de 500 ppm), les concentrations diminuent de moitié au cours des cycles 3 à 7, avant de repartir à la hausse sur les derniers cycles. On note la présence de pics au début de chaque cycle (également observée par Ouangrawa (2007) lors de ses essais sur les rejets Louvicourt). Le magnésium pour sa part provient principalement de la dissolution de la chlorite. Les concentrations simulées de Mg diminuent progressivement au cours des 4 ou 5 premiers cycles avant de demeurer proches de 0 ppm dans la suite de l'essai. Les mesures expérimentales sont légèrement différentes. La diminution de la concentration est plus rapide (2 cycles) et les valeurs résiduelles sont non nulles (environ 50 ppm). On en déduit que la dissolution de la chlorite n'est pas parfaitement reproduite par Min3P.

La difficulté de reproduire les réactions de dissolution des silicates semble d'ailleurs confirmée par les résultats obtenus pour Si. Le modèle surestime largement les quantités de Si libérées par le système ; on simule ainsi des concentrations pouvant dépasser 700 ppm alors que les mesures indiquent des concentrations autour de 100 ppm. Les résultats de simulations ne sont pas surprenants, car la molécule d'anorthite contient deux moles de Si pour une mole de Ca, et il est donc normal de retrouver deux fois plus de moles de Si que de Ca dans le lixiviat (il faut également ajouter les contributions des autres silicates). Il semblerait donc qu'en réalité, la dissolution des silicates ne se fasse pas de façon stœchiométrique (dissolution incongruente ; e.g. Appelo et Postma, 1993). Une autre hypothèse pourrait être que la silice demeure dans la colonne au cours des cycles de mouillage-séchage, soit en raison de phénomènes de retard (tel l'adsorption), soit en raison de phénomène de reprécipitation/complexation.

La modélisation de la dissolution des autres silicates respecte globalement les tendances observées au laboratoire, mais présentent des variations identiques aux cas sus-cités. Ainsi, les concentrations simulées de Na (produit par la dissolution de l'albite) diminuent plus lentement que dans les essais en colonne (4 cycles contre 2) et se stabilisent à des valeurs proches de 0 ppm alors que les concentrations résiduelles expérimentales sont plutôt autour de 3 ppm. Le potassium présente un comportement différent. La diminution des concentrations de K se fait beaucoup plus rapidement dans les simulations que dans la réalité (en moins d'un cycle contre 3 respectivement). Les concentrations résiduelles sont par contre bien reproduites. Dans le cas de l'aluminium enfin, les simulations sous-estiment les concentrations d'Al tout au long de l'essai (soit 500 ppm calculés contre 1000 ppm mesurés) et ne reproduisent pas l'augmentation qui se produit à partir du cycle 8. Cette augmentation, corrélée aux variations du fer et des sulfates, laisse penser qu'une partie de l'Al récupéré dans le lixiviat pourrait provenir de la dissolution de certains silicates sensibles à l'acidification du milieu.

Le comportement des éléments dits orphelins est bien reproduit par les simulations lorsqu'ils ont été intégrés au modèle de substitution. On observe ainsi sur la figure 8.3 que les concentrations de Zn, Pb, Mn, Cu et Ni concordent assez bien. Ces dernières sont relativement constantes au cours des premiers cycles avant d'augmenter rapidement à partir du cycle 7, exactement comme les concentrations de fer et de sulfates. On remarque également la présence du pic de concentration au cycle 4, comme on l'avait déjà observé plus haut. D'autres éléments, non inclus dans le modèle de substitution (comme Co ou Cd, car le modèle Min3P limite à 10 le nombre

d'éléments impliqués dans une réaction), voient leurs concentrations simulées diminuer au cours du temps (dilution), alors qu'expérimentalement on observe les mêmes tendances que les autres éléments (pallier initial suivi d'une nette augmentation des concentrations). L'équation employée ici pour modéliser la substitution est la suivante :

$$FeS_2 + H_2O + 3{,}5O_2 \rightarrow Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 2H^+ + 0{,}0001Pb^{2+} + 0{,}05Zn^{2+} + 0{,}0015Mn^{2+} + 0.0002Ni^{2+} + 0{,}05Cu^{2+} \quad (8.1)$$

Les coefficients stœchiométriques ont été calibrés (plusieurs simulations ont été nécessaires pour obtenir les paramètres ajustés).

On note dans l'équation 8.1 que les quantités des métaux ajoutés à la réaction d'oxydation de la pyrite sont très faibles (< 5%), ce qui est conforme aux observations habituelles (Klein et Hurlbut, 1999). On a également fait l'hypothèse ici que les quantités de fer produites étaient inchangées et que la masse molaire de la pyrite demeurait constante.

On remarque également à la figure 8.3 que les concentrations de certains métaux, tout comme celles du fer et des sulfates, semblent augmenter de façon importante au dernier cycle, ce qui pourrait signifier que la réaction d'oxydation s'accélère après quelques cycles. Si on prolonge la durée du dernier cycle dans les simulations, on constate la même tendance à la hausse, mais avec un certain retard. On présente à la figure 8.5 l'exemple du zinc.

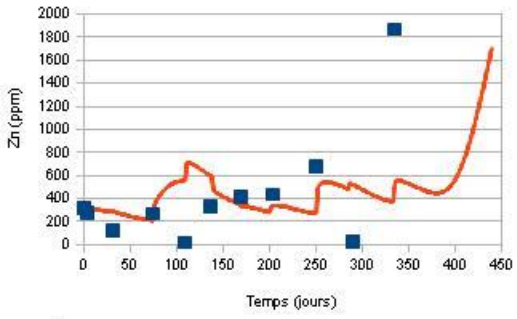


Figure 8.5: Variations des concentrations de zinc dans la petite colonne MNOP au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation)

En résumé, la modélisation numérique du comportement géochimique au moyen du code Min3P pour l'essai dans la petite colonne MNOP permet d'affirmer que :

- l'utilisation du modèle du noyau réactif (« Shrinking Core ») permet de reproduire correctement les réactions d'oxydation de la pyrite, même en conditions acides ;
- la dissolution des silicates n'est pas toujours bien reproduite par le modèle ;
- l'utilisation du modèle de substitution permet de reproduire correctement les tendances au niveau des concentrations de certains métaux.

8.2.4 Simulation des essais dans la petite colonne MOP

Pour la calibration du modèle MOP, on procède de la même façon que précédemment. Les résidus MO ne contiennent pas ou très peu de minéraux sulfureux (aucune trace détectée au DRX, consommation d'oxygène non mesurable, $\%S_{tot}$ mesuré à la fournaise LECO de 0,1% environ). Il s'agit donc dans ces simulations de réactions de diffusion essentiellement et de phénomène de dilution et de transport, ce qui permet de valider le modèle de transport.

Les résultats détaillés de cette calibration sont présentés à l'annexe 8.5.

En résumé, cette simulation d'un cas "non réactif" (ou peu réactif) montre que le code Min3P permet de reproduire assez bien les phénomènes de dilution et de transport des contaminants par advection et dispersion. On a également pu constater que l'ajout de précipités secondaires (comme le gypse ici) en conditions circo-neutrales, déstabilisaient le modèle. Des observations semblables seront faites sur les modèles Selbaie (voir sections 8.2.5 et 8.2.6).

8.2.5 Simulation des essais dans la petite colonne SNOP

Le cas de la colonne SNOP (et SOP ; voir plus loin) est particulier puisque, bien que contenant une quantité non négligeable de pyrite (2%) qui s'oxyde clairement (comme l'indiquent les concentrations de sulfates récupérées), le pH du lixiviat demeure proche de la neutralité. Pourtant, aucun minéral neutralisant n'a été détecté au DRX. L'absence de carbonates dans les simulations entraîne la diminution rapide du pH sous des valeurs de 3,0, ce qui ne correspond pas à ce qui a été observé ici. Constatant que les concentrations de Mg sont très importantes dans ces essais, et qu'elles suivent assez bien les tendances des sulfates, on fera donc l'hypothèse que les résidus SNO contiennent une certaine fraction de dolomite. Celle-ci aura pu être consommée entièrement à la fin des essais, ce qui expliquerait qu'elle n'ait pas été détectée après le démontage, ou alors aura plus simplement été ratée par l'analyse minéralogique (absence dans les

petits échantillons, mauvaise interprétation des diffractogrammes, trop petites quantités de résidus analysées, minéraux amorphes...). Dans les simulations, il a été estimé que la teneur en dolomite devait être de l'ordre de 1% environ pour permettre la neutralisation de l'acide produit pendant la durée des essais. Les analyses LECO réalisées sur les résidus SNO ont donné une quantité de carbone d'environ 0,2% (voir section 4.1.6.1). Si on fait l'hypothèse que le carbone provient uniquement des carbonates, alors la teneur correspondante en dolomite serait de 1,5%. L'ajout de 1% de dolomite dans les simulations est donc justifié.

Comme pour le cas MOP, du gypse a été ajouté aux résidus SNO (celui-ci n'a pas été mesuré dans les analyses minéralogiques). Sa teneur serait faible, compte tenu du fait qu'il n'a pas été détecté, mais elle devrait permettre aux sulfates et au calcium de précipiter au besoin. Les paramètres minéralogiques finaux utilisés dans les simulations avec les résidus SNO sont présentés au tableau 8.5.

Tableau 8.5: Paramètres minéralogiques utilisés dans les simulations des essais avec les résidus SNO

Eléments	%Massique	Fraction Volumique	Area / Scalfac	radi/rads
Chlorite	11,00	$6{,}35.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-12}$	-
Muscovite	10,00	$5{,}97.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Quartz	73,50	$4{,}80.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Anorthite	1,00	$6{,}54.10^{-3}$	$5{,}0.10^{-10}$	-
Albite	1,00	$6{,}66.10^{-3}$	$1{,}0.10^{-12}$	-
Dolomite	1,00	$6{,}08.10^{-3}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Pyrite	2,00	$6{,}90.10^{-3}$	$8{,}0.10^{-7}$	$4{,}56.10^{-6}/4{,}54.10^{-6}$
Gypse	0,50	$3{,}73.10^{-3}$	$1{,}0.10^{-10}$	-

La comparaison des résultats numériques avec les mesures de laboratoire est présentée à la figure 8.6. On constate que l'ajout de dolomite au modèle permet de maintenir un pH autour de 7, malgré une certaine oxydation de la pyrite présente dans les résidus. Le pH est légèrement sous-estimé par rapport aux mesures de laboratoire (6,6 contre 7,2), mais la tendance générale est bien

respectée. Le modèle semble même reproduire la légère diminution du pH au tout début de l'essai.

Les concentrations en sulfates simulées suivent relativement bien les résultats expérimentaux. Ainsi, les concentrations initiales, relativement faibles, augmentent rapidement à des valeurs proches de 25 000 ppm avant de diminuer autour de 5000 ppm et de se maintenir à ce niveau. L'augmentation observée dans les simulations est cependant plus rapide (elle début dès le premier cycle alors qu'elle n'est visible dans les essais qu'à partir du 5^{e} cycle) et plus importante (25 000 ppm simulés contre 10 000 mesurés). Le pic de concentration en sulfates semble lié à la baisse de pH des premiers cycles. Le plateau atteint (autour de 5000 ppm) est bien reproduit par le modèle, bien que légèrement surestimé par la simulation (à 7000 ppm). Le modèle semble indiquer une reprise de l'acidification vers la fin des essais (peut-être en raison de l'épuisement de la dolomite), ce qui est également décelable dans les résultats des essais.

Ces résultats pourraient indiquer une surestimation de la réactivité de la pyrite. Néanmoins, si l'on observe les concentrations de Mg sur la figure 8.6 on constate que celles-ci sont bien reproduites par le modèle à partir du cycle 7 (i.e. à partir du moment où la couche de sable a été ajoutée). Comme Mg est produit par la dissolution de la dolomite, la réaction est aussi liée à la production d'acide par l'oxydation de la pyrite. Il semblerait donc que les paramètres introduits pour la pyrite soient corrects. Par ailleurs, on constate un comportement similaire pour les concentrations de Ca : mêmes tendances générales, et même légère surestimation des concentrations sur la dernière partie de l'essai. Le Ca provient presque uniquement de la dissolution de la dolomite (l'anorthite n'est présente qu'en très faible quantité), et est donc lié à l'oxydation de la pyrite.

Considérant que le Ca et les sulfates forment ensemble du gypse, on suppose ici que le modèle ne reproduit par parfaitement bien la précipitation de celui-ci. On peut faire l'hypothèse que dans les colonnes de laboratoire, une partie plus importante des sulfates et du calcium précipitent. La réactivité du gypse dans le modèle pourrait être trop faible, mais des instabilités numériques empêchent d'imposer des valeurs supérieures à celle appliquées (voir tableau 8.6).

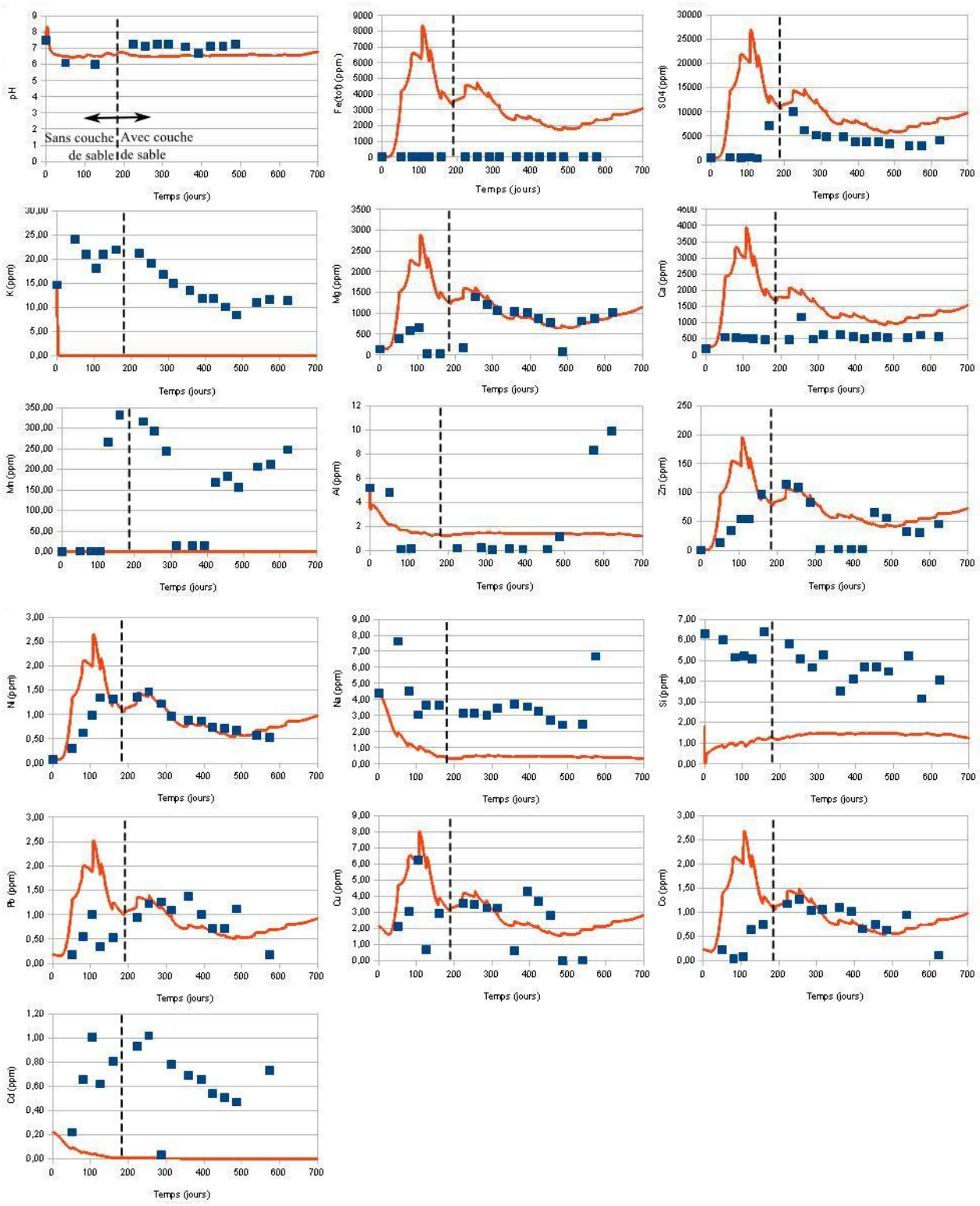


Figure 8.6: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la petite colonne SNOP au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation)

Néanmoins, malgré ces légères différences, on peut affirmer que le modèle reproduit relativement bien le comportement des sulfates, de Mg et de Ca à partir du cycle 7. Avant cela, les hétérogénéités locales et la qualité de l'eau interstitielle initiale pourraient expliquer les différences observées entre mesures et simulations. Les pics de concentrations observés dans les résultats de simulation restent inexpliqués.

Les concentrations de fer simulées sont très élevées et peuvent atteindre 7000 ppm alors que les concentrations mesurées ne dépassent pas quelques ppm en raison de la précipitation des ions Fe(III) dans la colonne (sous forme d'oxydes ou d'oxy-hydroxydes). Les pH mesurés (autour de 7,0), les quantités importantes de sulfates récupérées dans le lixiviat, et la coloration des résidus (orange autour des zones d'altération) semblent confirmer cette hypothèse. Il n'a cependant pas été possible d'ajouter la ferrihydrite ou d'autres précipités de fer au modèle en raison de fortes instabilités numériques.

On présente à la figure 8.7 un diagramme Eh-pH simplifié du fer, sur lequel on reporte les plages de valeurs de pH (6,4–6,8) et de Eh (640-830 mV) simulées par Min3P dans la colonne SNOP (et SOP).

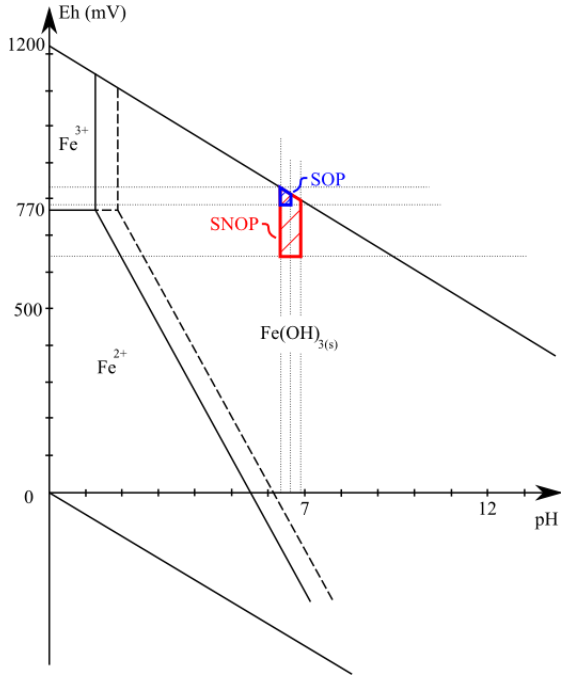


Figure 8.7: Diagramme Eh-pH simplifié du fer pour une concentration de 10 000 ppm (et 100 ppm en pointillés) avec en rouge la plage des valeurs de pH et Eh simulées dans la colonne SNOP et SOP par le modèle Min3P

On constate qu'elles se trouvent dans la zone de prédominance de $Fe(OH)_{3(s)}$. Ainsi, même si on n'a pu simuler la précipitation de la ferrihydrite, le modèle numérique produit des conditions qui devraient favoriser sa précipitation.

La dissolution de la plupart des silicates (chlorite, muscovite, quartz, anorthite) n'est pas bien reproduite par le code. On constate que les concentrations de K, Al, et Na, diminuent rapidement dans les simulations alors qu'elles se maintiennent à des valeurs plus élevées en réalité. Comme pour MOP, le pH élevé limite les réactions de dissolution. En pratique, il est possible que des conditions locales entraînent d'avantage de dissolution de ces minéraux. Les concentrations de Si sont pour leur part sous-estimées par le modèle (1,5 ppm pour plus de 4 ppm). Dans tous les cas néanmoins, les concentrations de ces éléments sont faibles, et ceux-ci sont de moindre importance dans cette étude.

Les éléments orphelins intégrés dans le modèle de substitution (soient Zn, Ni, Pb, Cu et Co) voient leurs concentrations bien reproduites dans les simulations. Celles-ci suivent les tendances observées pour les sulfates, Mg et Ca, et elles sont proches des valeurs mesurées. Les autres éléments non inclus dans le modèle de substitution (Mn et Cd) ne sont pas correctement représentés par les simulations : leurs concentrations diminuent à des valeurs faibles alors qu'on observe expérimentalement une augmentation. L'équation (ajustée) employée ici pour modéliser la substitution est la suivante :

$$FeS_2 + H_2O + 3{,}5O_2 \rightarrow Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 2H^+ + 0{,}00008Pb^{2+} + 0{,}02Zn^{2+} + 0{,}0003Co^{2+} + 0.0003Ni^{2+} + 0{,}0008Cu^{2+} \quad (8.2)$$

Les quantités des éléments ajoutés à la réaction d'oxydation de la pyrite (< 2%) sont plus faibles que dans le cas des résidus MNO.

En résumé, la modélisation numérique au moyen de Min3P du comportement géochimique des résidus SNO dans la petite colonne SNOP permet d'affirmer que :

- les résidus SNO semblent contenir de la dolomite, même si celle-ci n'a pas été mesurée au DRX (mais l'analyse LECO semble confirmer cette hypothèse). Par conséquent, il existe une certaine incertitude sur les quantités présentes dans les résidus. Lorsque celle-ci aura été entièrement consommée, on peut s'attendre à ces que les résidus SNO génèrent de l'acide (ce qui est confirmé par les observations de terrain ainsi que les essais statiques présentés plus haut ; voir chapitre 3) ;

- le code Min3P simule relativement mal la précipitation des minéraux secondaires (et leur dissolution) à des pH proches de la neutralité ;
- la dissolution des silicates semble également poser problème ;
- le modèle de substitution appliqué aux résidus SNO donne de bons résultats.

8.2.6 Simulation des essais dans la petite colonne SOP

Le cas de la colonne avec les résidus SO ressemble beaucoup à celui de SNOP. Ici aussi les résidus sont réactifs, mais le lixiviat dans la colonne demeure globalement neutre ; rappelons que les résidus SOP contiennent plus de pyrite (4%) que SNO. Comme précédemment, on a ajouté de la dolomite au modèle (3%). Ce choix semble justifié par les concentrations très importantes de Mg mesurées et par les bons résultats de cette approche dans le cas de SNOP. Les analyses LECO sur les résidus SO (voir section 4.1.6.1) ont donné des teneurs en carbone de l'ordre de 0,4%. En faisant l'hypothèse que tout le carbone provient des carbonates, on estime la quantité de dolomite dans les résidus SO à environ 3%. L'ajout de dolomite aux simulations semble donc justifié.

Les détails des simulations des essais dans la petite colonne SOP sont présentés à l'annexe 8.6.

En résumé, les simulations du comportement géochimique dans la petite colonne SOP au moyen du code Min3P permet d'affirmer que :

- les résidus SO semblent contenir de la dolomite ;
- le code Min3P gère relativement mal la question des précipités secondaires à des pH proches de la neutralité (notamment la ferrihydrite) ;
- le modèle de substitution appliqué aux résidus SO donne de bons résultats.

8.3 Simulations des essais en grande colonne

8.3.1 Méthodologie

Pour simuler le comportement des résidus dans les grandes colonnes, on emploiera dans un premier temps les paramètres géochimiques obtenus suite à la calibration des essais en petites colonnes, lesquels pourront ensuite être ajustés au besoin pour mieux reproduire les résultats

expérimentaux. Ne disposant que de peu d'informations à leur sujet, les matériaux de couverture se verront attribuer des paramètres standards, notamment en ce qui a trait à la réactivité des minéraux. Comme ils ne contiennent pas de pyrite, leur comportement devrait être moins complexe. Par ailleurs, lorsque la minéralogie de deux couches d'un même modèle n'est pas la même (en particulier lorsque l'une contient des minéraux sulfureux et l'autre non, ce qui est le cas ici) des problèmes numériques peuvent apparaître dans le code Min3P. Pour contourner cette difficulté, il a été décidé pour la suite des travaux de séparer l'analyse en deux étapes numériques. Dans la première, on considère la colonne complète, avec les contrastes hydrogéologiques réels, mais en supposant que la minéralogie est uniforme et égale à celle de la couverture uniquement. On utilise ensuite ces résultats pour les appliquer comme condition d'entrée dans une simulation de la réponse des résidus miniers réactifs uniquement. Le modèle se réduit alors à une simple colonne de 1,70 m de hauteur, uniforme. L'influence de cette hypothèse sur l'écoulement et la géochimie des résidus sera discutée à la section 8.4.3.

Comme pour les petites colonnes, on passe d'abord par une étape de validation hydrogéologique du modèle numérique. Celle-ci consiste surtout à vérifier que le code Min3P permet de reproduire les résultats obtenus par Vadose/W avec les mêmes paramètres. Un exemple de résultat est présenté à la figure 8.8. Les autres résultats sont similaires et ils sont présentés à l'annexe 8.7.

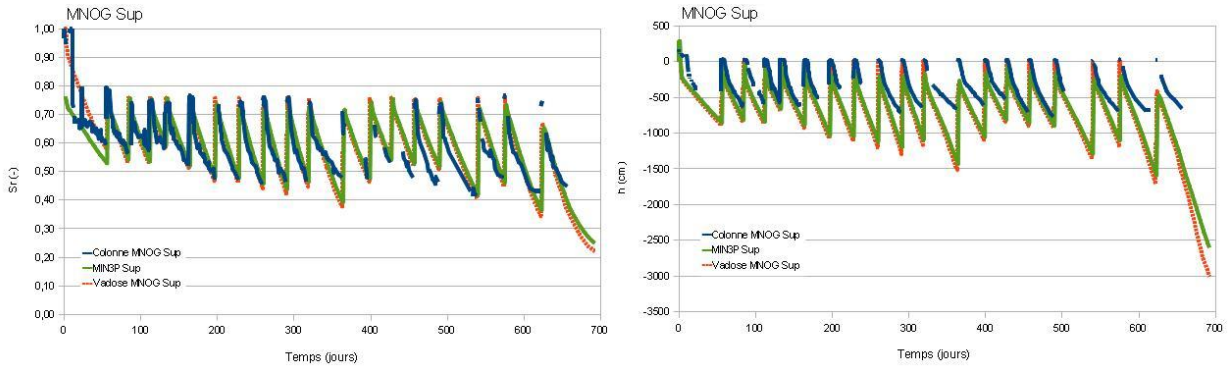


Figure 8.8: Simulation des degrés de saturation et des pressions interstitielles dans la couverture de la colonne MNOG, 10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture (capteurs Sup), au cours des cycles de mouillage-séchage, avec les valeurs mesurées (résultats de Min3P et Vadose)

On constate sur la figure 8.10 que le modèle Min3P reproduit bien les résultats obtenus avec Vadose/W (déjà calibrés sur les résultats de laboratoire). Les différences entre les deux codes

numériques ne sont que de quelques pourcents pour le degré de saturation, et généralement inférieures à quelques dizaines de centimètres pour les mesures de pressions d'eau (exception faite du dernier cycle).

Ces résultats confirment que Min3P est apte à bien reproduire les comportements hydrogéologiques dans les milieux étudiés et que le choix des conditions frontières est valide.

8.3.2 Simulations des essais dans la colonne MNOG

Les paramètres minéralogiques des résidus Goldex utilisés dans les simulations des essais dans la colonne MNOG (et MOG) sont présentés au tableau 8.6 (les réactions de dissolution et leur forme sont présentées entre autre dans Mayer et al., 2002 et Ouangrawa et al., 2009). Les paramètres des résidus MNO sont les mêmes que ceux présentés dans le tableau 8.4.

Tableau 8.6: Paramètres minéralogiques des résidus Goldex utilisés dans les simulations avec Min3P

Eléments	%Massique	Fraction Volumique	Area / Scalfac	radi/rads
Chlorite	6,60	$3{,}40.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Muscovite	7,40	$3{,}94.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Quartz	21,50	$1{,}25.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Anorthite	10,00	$5{,}83.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Albite	47,00	$2{,}79.10^{-1}$	100	-
Calcite	5,50	$3{,}13.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Dolomite	2,00	$1{,}08.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-

On note dans le tableau 8.6 que le paramètre « area » de l'albite est beaucoup plus importante ici que les valeurs habituellement employées. Les résidus Goldex contiennent presque 50% d'albite et les résidus MNO n'en contiennent presque pas. La majeure partie du Na récupéré dans le lixiviat provient donc de la couverture. Pour atteindre les concentrations mesurées, le paramètre « area » a été largement augmenté pour permettre une dissolution plus rapide de l'albite dans les modèles numériques.

Les résultats géochimiques simulés à la base de la couverture montrent une certaine régularité. Les concentrations de Na et Si, directement liées à la dissolution de l'albite, augmentent tout au long de l'essai, et ils se maintiennent autour de 170 ppm et 450 ppm respectivement entre les cycles 6 et 16. Ces valeurs de concentration sont employées ici. Comme il n'est pas possible de changer facilement les conditions frontières dans un modèle Min3P à chaque pas de temps, on appliquera dans les calculs, des concentrations d'entrées moyennes pour l'eau d'alimentation.

La concentration d'entrée en O_2 varie théoriquement au cours du temps et selon les fluctuations des degrés de saturation. Pour les même raisons, on utilisera des valeurs de concentration d'oxygène moyennes constantes tout au long de l'essai. Dans le code Min3P, on spécifie les concentrations d'oxygène comme pressions partielles (concentration atmosphérique = 276 g/m^3 = 8,6 mol/m^3 = 0,21). La valeur donnant les meilleurs résultats est de 15%, ce qui est légèrement plus que les 12% (moyenne) mesurés dans les essais. Les concentrations d'entrée dans le modèle de la colonne de résidus sont présentées au tableau 8.7.

On peut juger de la qualité de la simulation par la comparaison des variations du pH et des concentrations de certains éléments au cours des cycles de mouillage-drainage, à la figure 8.9.

Tableau 8.7: Chimie de l'eau d'infiltration dans les résidus MNOG, après que celle-ci ait traversé la couverture de résidus Goldex

Eléments	Unité	Entrée
Ca^{2+}	mol/L	$2{,}77.10^{-5}$
K^{+}	mol/L	$4{,}67.10^{-5}$
Cl^{-}	mol/L	$5{,}72.10^{-5}$
H_4SiO_4	mol/L	$1{,}67.10^{-2}$
Al^{3+}	mol/L	$2{,}08.10^{-06}$
CO_3^{2-}	mol/L	$5{,}59.10^{-3}$
H^{+}	pH	9,00
O_2(aq)	pO_2	0,15
Fe^{2+}	mol/L	$7{,}15.10^{-9}$
Fe^{3+}	mol/L	$1{,}43.10^{-5}$
SO_4^{2-}	mol/L	$7{,}16.10^{-6}$

Eléments	Unité	Entrée
Mg^{2+}	mol/L	$1{,}83.10^{-5}$
Na^{+}	mol/L	$8{,}38.10^{-3}$
Mn^{2+}	mol/L	$4{,}85.10^{-18}$
Zn^{2+}	mol/L	$7{,}15.10^{-9}$
Ni^{2+}	mol/L	$7{,}15.10^{-9}$
Pb^{2+}	mol/L	$7{,}15.10^{-9}$
Cu^{2+}	mol/L	$7{,}15.10^{-9}$
Co^{2+}	mol/L	$7{,}15.10^{-9}$
Cd^{2+}	mol/L	$7{,}15.10^{-9}$
HS^{-}	mol/L	$1{,}00.10^{-20}$
Mn^{3+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$

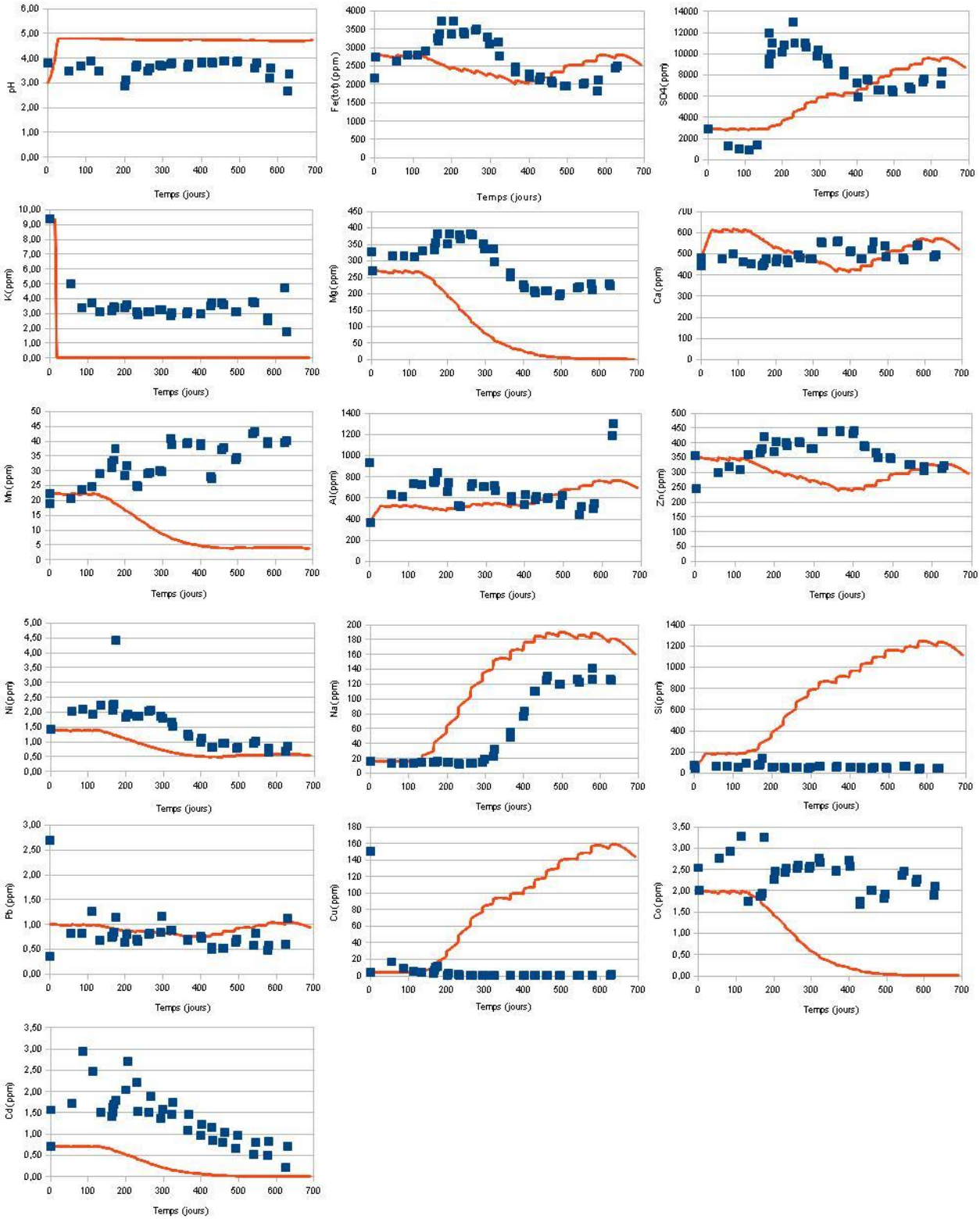


Figure 8.9: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la colonne MNOG au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation).

Les concentrations d'entrée, comme les paramètres géochimiques des résidus Goldex, présentent une certaine incertitude, puisqu'on ne dispose que d'informations indirectes (soit le lixiviat récupéré au bas de la colonne, après que celui-ci ait traversé les résidus Manitou). On montrera par la suite que cette incertitude a peu d'influence sur les résultats finaux.

On constate dans le tableau 8.7 que les concentrations en Mg et Ca demeurent relativement faibles, ce qui semble indiquer, comme constaté expérimentalement, que la calcite et la dolomite ne se dissolvent qu'en faibles quantités. On peut supposer que l'eau ajoutée au sommet des colonnes est proche de l'équilibre avec les résidus Goldex.

On constate à la figure 8.9 que l'ajustement des résultats est moins précis que pour les petites colonnes. Comme anticipé, la complexité du modèle, l'hétérogénéité des matériaux, et les instabilités numériques, limitent la qualité des résultats. Néanmoins, les tendances des éléments les plus importants pour cette étude sont relativement bien décrites par les simulations.

Le pH est surestimé par Min3P ici. Les simulations indiquent que le pH demeure autour de 4,8, alors qu'expérimentalement on a plutôt mesuré des valeurs entre 3,0 et 4,0. L'acidification semble s'accélérer à la fin des essais, mais cette tendance n'est pas correctement reproduite par le modèle. Pourtant, la réaction d'oxydation a bien lieu, comme l'indiquent les concentrations en sulfates. C'est la dissolution de l'anorthite qui semble maintenir le pH à des valeurs élevées dans les simulations (la réaction consomme 8 moles de H^+ pour une mole d'anorthite). Le modèle semble surestimer un peu l'importance de cette dissolution. La baisse de pH à partir du cycle 16 est peut-être reliée à l'épuisement de l'anorthite dans les résidus (les analyses DRX ont montré une certaine différence entre les teneurs en anorthite au début et à la fin de l'essai).

Les concentrations de Fe(tot) et de sulfates sont assez mal reproduites au début de l'essai, mais les résultats s'améliorent à partir du cycle 12. Alors qu'expérimentalement on observe une augmentation des concentrations en sulfates après quelques cycles (où elles demeurent faibles), le phénomène est beaucoup plus lent dans les simulations. Ces mêmes concentrations diminuent à partir du cycle 8, celles dans la simulation continuent d'augmenter. Expériences et simulations se rejoignent à partir du cycle 12 autour d'une valeur d'environ 7000 ppm. Le modèle tend encore à surestimer (d'environ 1000 ppm) les concentrations de sulfates, mais globalement, les résultats sont assez similaires. Pour le fer, les tendances sont les mêmes et les écarts sont plus faibles.

Le cas de Na est intéressant. Comme mentionné précédemment, Na provient exclusivement de la dissolution de l'albite, lequel minéral constitue plus de la moitié des résidus Goldex (il est presque inexistant dans les résidus MNO). Par conséquent, Na peut servir de traceur pour déterminer la vitesse d'arrivée du front de mouillage au bas du modèle et de la colonne. On constate que dans les deux cas, on observe une augmentation rapide puis une stabilisation autour de valeurs semblables (180 ppm pour le modèle, 120 ppm pour les essais de laboratoire). La différence entre le modèle et le laboratoire, c'est le temps que met le front de mouillage pour atteindre le bas de la colonne. Dans le cas réel, cela prend environ 10 cycles avant que la concentration de Na commence à augmenter au bas de la colonne. Dans les modèles, ce temps est réduit à 5 cycles. Cette différence s'explique en partie par les conditions hydrogéologiques appliquées aux frontières du modèle. Comme précisé plus tôt, la couverture n'a pas été prise en compte dans les modèles géochimiques ($2^{ème}$ étape de simulation), et l'eau d'infiltration a été ajoutée directement au sommet des résidus. En d'autres termes, on peut en déduire que le front d'infiltration prendrait environ 4 cycles à traverser la couverture (voir aussi discussion en 8.4.3).

On observe également cette avance dans les concentrations de Mg, Mn, Ni ou encore Cd. Expérimentalement, on observe un plateau de ces concentrations jusqu'au cycle 8 environ, puis celles-ci diminuent assez rapidement (en 4 cycles) avant de se stabiliser à des valeurs plus faibles. Le modèle numérique reproduit bien ces tendances, mais la diminution débute dès le 4ème cycle.

La dissolution des silicates n'est pas bien prise en compte par le modèle Min3P. Les concentrations de K ou Mg par exemple se maintiennent à des valeurs autours de 3 ppm et 200 ppm respectivement dans les essais de laboratoire. Le modèle numérique donne des résultats proches de 0 ppm. A l'inverse, les concentrations de Si simulées sont beaucoup plus importantes que celles mesurées (jusqu'à 1200 ppm contre moins de 50 ppm). Pourtant, elles devraient théoriquement être aussi importantes, en raison de la dissolution de l'albite. On peut supposer qu'il se produit des dissolutions partielles (dissolutions incongruentes ; Appelo et Postma, 1993) ou que Si est retenu d'une manière ou d'une autre dans les résidus.

On emploie ici le même modèle de substitution que pour MNOP (voir équation 8.1.) mais la quantité de Zn produite a été doublée. On constate qu'en général, les concentrations de Zn, Ni ou Pb sont bien reproduites. Par contre, le modèle numérique surestime largement les concentrations

de Cu et sous-estime celles de Mn. Les autres éléments non pris en compte (Co et Cd ici) sont également mal simulées.

En résumé, on peut donc affirmer que le modèle arrive à reproduire globalement le comportement du système, malgré certains écarts.

Par la suite on se limitera à analyser le pH ainsi que les concentrations de fer, sulfates, Mg, Ca et Zn. Les autres éléments suivent des tendances similaires ou ne sont pas correctement représentés par le modèle.

8.3.3 Simulations des essais dans la colonne MOG

Le modèle MOG est quelque peu différent des autres modèles de grandes colonnes. Comme les résidus ne contiennent pas de minéraux sulfureux détectables, il est possible de simuler l'essai en colonne en une seule et même analyse. La pression partielle d'oxygène au sommet du modèle est égale à 0,21 (= 276 g/m^3). Le détail des simulations est présenté à l'annexe 8.8.

En résumé, on peut déduire de ces simulations que :

- une petite quantité de pyrite serait encore présente dans les résidus MO, bien qu'elle n'ait pas été détectée au DRX ;
- le code Min3P est capable de bien reproduire les écoulements d'eau et les effets de mélange des éléments solubles non réactifs.

8.3.4 Simulations des essais dans les colonnes SNOG et SOG

Les paramètres minéralogiques de la moraine utilisés dans les modèles SNOG (et SOG) sont présentés au tableau 8.8. Les paramètres des résidus SNO sont ceux présentés dans le tableau 8.5.

On note dans le tableau 8.8 que la moraine contient très peu de minéraux neutralisants. On ne s'attend donc pas à voir d'effet tampon de la couverture sur les résidus sous-jacents.

Comme pour le cas MNOG, on construit d'abord un modèle avec le matériau de la couverture seulement, dont on extrait les résultats géochimiques pour les appliquer en tant que paramètres d'entrée dans les simulations du comportement des résidus (voir tableau 8.9). On s'attend donc à observer une arrivée plus rapide du front de mouillage (due à l'absence de la couverture).

Tableau 8.8: Paramètres minéralogiques de la moraine dans les simulations avec Min3P

Eléments	%Massique	Fraction Volumique	Area / Scalfac	radi/rads
Chlorite	2,00	$1{,}15.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Muscovite	13,00	$7{,}70.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Quartz	48,50	$3{,}14.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Anorthite	6,00	$3{,}89.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Albite	28,50	$1{,}88.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Calcite	2,00	$1{,}27.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-

Tableau 8.9: Chimie de l'eau d'infiltration dans les résidus SNOG, après que celle-ci ait traversé la couverture de moraine.

Eléments	Unité	Entrée
Ca^{2+}	mol/L	$6{,}08.10^{-4}$
K^{+}	mol/L	$1{,}64.10^{-14}$
Cl^{-}	mol/L	$4{,}56.10^{-5}$
H_4SiO_4	mol/L	$7{,}09.10^{-5}$
Al^{3+}	mol/L	$7{,}05.10^{-5}$
CO_3^{2-}	pCO_2	$5{,}00.10^{-4}$
H^{+}	pH	8,15
$O_2(aq)$	pO_2	0,10
Fe^{2+}	mol/L	$5{,}69.10^{-9}$
Fe^{3+}	mol/L	$1{,}14.10^{-5}$
SO_4^{2-}	mol/L	$5{,}70.10^{-6}$

Eléments	Unité	Entrée
Mg^{2+}	mol/L	$4{,}69.10^{-7}$
Na^{+}	mol/L	$1{,}14.10^{-5}$
Mn^{2+}	mol/L	$6{,}88.10^{-17}$
Zn^{2+}	mol/L	$5{,}69.10^{-9}$
Ni^{2+}	mol/L	$5{,}69.10^{-9}$
Pb^{2+}	mol/L	$5{,}69.10^{-9}$
Cu^{2+}	mol/L	$5{,}69.10^{-9}$
Co^{2+}	mol/L	$5{,}69.10^{-9}$
Cd^{2+}	mol/L	$5{,}69.10^{-9}$
HS^{-}	mol/L	$1{,}00.10^{-20}$
Mn^{3+}	mol/L	$1{,}00.10^{-8}$

La pression partielle d'oxygène employée est faible : 10% contre près de 19% mesurés. Ceci s'ajoute d'ailleurs à la diminution de la réactivité de la pyrite (3.10^{-7} contre 8.10^{-7} pour SNOP). Sans cela, les concentrations en sulfates, en Mg et en Ca étaient beaucoup trop importantes par rapport à ce que l'on a mesuré dans le lixiviat. On suppose ici que des conditions différentes (rapport eau-solide, passivation des surfaces, bactéries...) ont occasionné une baisse de la réactivité de la pyrite. Les résultats sont présentés à la figure 8.10.

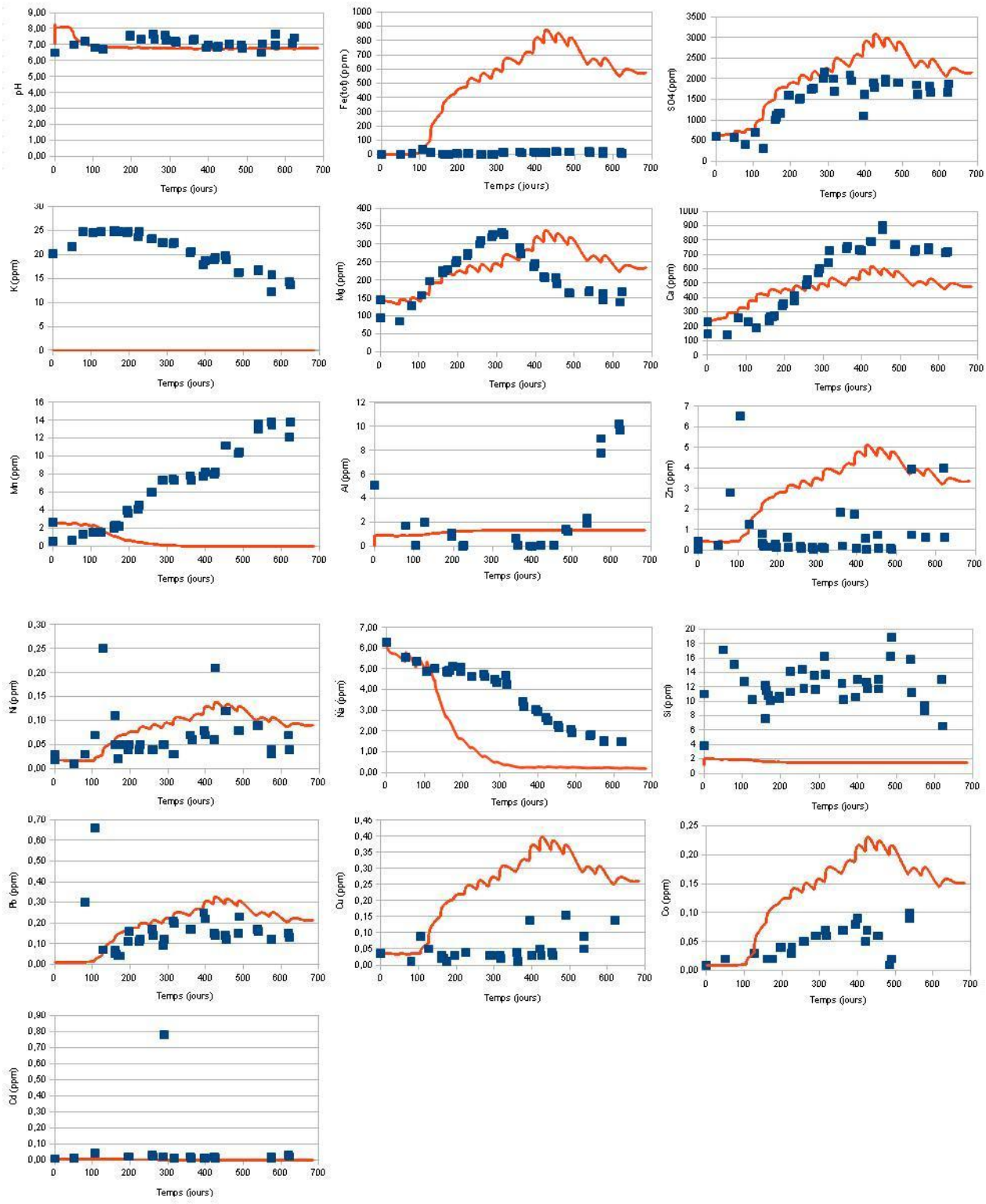


Figure 8.10: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la colonne SNOG au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation)

Le modèle numérique reproduit bien le pH, qui change peu au long de l'essai (~6,8). Les valeurs expérimentales sont un peu plus variables (entre 6,5 et 7,8), mais sont globalement assez similaires. Les concentrations de sulfates sont également bien reproduites par la simulation. On observe, comme pour les données de laboratoire, une augmentation progressive des concentrations de 500 ppm à 2000 ppm au cours des 6 premiers cycles, puis une stabilisation entre 2000 et 2500 ppm dans la suite de l'essai. Les concentrations simulées sont surestimées (d'environ 500 ppm) mais respectent globalement les mêmes tendances.

Comme pour les simulations des essais en petite colonne (section 8.2.5 et 8.2.6), les concentrations en fer sont surestimées en raison de l'absence de précipités secondaires dans les modèles.

Les concentrations de Mg et Ca ont le même comportement que les concentrations de sulfates : une augmentation au cours des premiers cycles suivie d'un plateau autour de 300 et 500 ppm respectivement. Le modèle numérique estime bien les concentrations de Mg sur l'ensemble des cycles. On observe une diminution des concentrations dans les essais et les modèles, mais celle-ci est retardée dans les simulations (3 cycles environ). Les concentrations simulées de Ca sont sous-estimées d'environ 200 ppm, mais les tendances sont similaires.

Pour les concentrations de Na on observe la même tendance entre les résultats simulés et mesurés, mais avec un décalage de quelques cycles. Les concentrations initiales sont relativement constantes avant de diminuer vers des valeurs très faibles. La diminution débute dans les simulations au cycle 4, et au cycle 8 dans les essais. Cette avance est liée au fait qu'on impose la condition frontière d'infiltration d'eau directement au sommet des résidus plutôt qu'au sommet d'une couverture. On en déduit que l'eau ajoutée au sommet de la grande colonne SNOG met un peu plus de 4 cycles à traverser la couverture de moraine (voir aussi 8.4.3).

Les concentrations de K, Al et Si sont largement sous-estimées par le code. Comme dans les autres cas, la dissolution des silicates est mal prise en compte dans les simulations.

Le modèle de substitution est le même que pour la simulation SNOP (équation 8.2). On constate ici que Pb et Ni sont bien reproduits par le modèle, mais que Zn, Co et Cu sont surestimés.

De façon générale, le modèle Min3P reproduit donc correctement le comportement géochimique dans la colonne SNOG. Par la suite, on analysera principalement le pH ainsi que les concentrations de fer, sulfates, Mg, Ca et Zn. Les autres éléments suivent des tendances

similaires ou ne sont pas correctement représentés par le modèle. A noter que Zn n'est pas forcément le métal donc les concentrations sont le mieux reproduites, mais il s'agit d'un élément mobile habituellement considéré dans les analyses de qualité d'eau et il sera analysé dans la suite.

Les simulations des essais dans la colonne SOG donnent des résultats similaires ; elles sont présentées à l'annexe 8.9.

8.3.5 Résultats complémentaires des simulations des essais en grande colonne

Une fois les calibrations achevées, les modèles numériques sont utilisés pour analyser l'évolution des concentrations des divers éléments au sein même des colonnes. L'analyse des profils de pH, Eh, oxygène dissout et des concentrations de certains éléments permettent également d'anticiper l'évolution de la qualité de l'eau. Les profils d'épuisement (pyrite ou dolomite) sont un bon moyen d'estimer la vitesse d'avancée du front d'oxydation et d'évaluer les risques de génération d'acide à long terme. On passe ici en revue les principaux résultats des simulations menées sur les différentes colonnes.

La figure 8.11 présente les profils pH, Eh, O_2(aq), Fe, sulfates, Zn, Mg et Ca dans la colonne MNOG, ainsi que les teneurs massiques en pyrite. Au total, 10 courbes sont tracées, à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18 ainsi qu'au temps initial. On constate qu'il y a oxydation et une tendance à l'acidification, mais selon les quantités d'eau ajoutées (et évaporées), les profils fluctuent, de sorte que les tendances ne sont pas claires.

On remarque que le pH dans les résidus, qui est initialement de 3,0, est neutralisé (par l'anorthite) jusqu'à des valeurs de 4,8 environ. Au cours des cycles suivants, il diminue dans les 50 cm supérieurs, et atteint des valeurs inférieures à 2,0 au sommet de la colonne. De la même façon, le Eh est égal à 750 mV environ dans le bas de la colonne, mais il peut atteindre 1,1 V au sommet des résidus, ce qui indique que des conditions oxydantes prévalent.

Les concentrations de sulfates augmentent sur tout le profil au cours du temps. Les concentrations au sommet de la colonne passent de 10 000 ppm à 20 000 ppm environ en 16 cycles, et de 3000 ppm à presque 10 000 ppm dans le bas de la colonne. Les concentrations en fer augmentent au sommet de la colonne au cours du temps, mais tendent vers une valeur moyenne de 2000 ppm avec la profondeur.

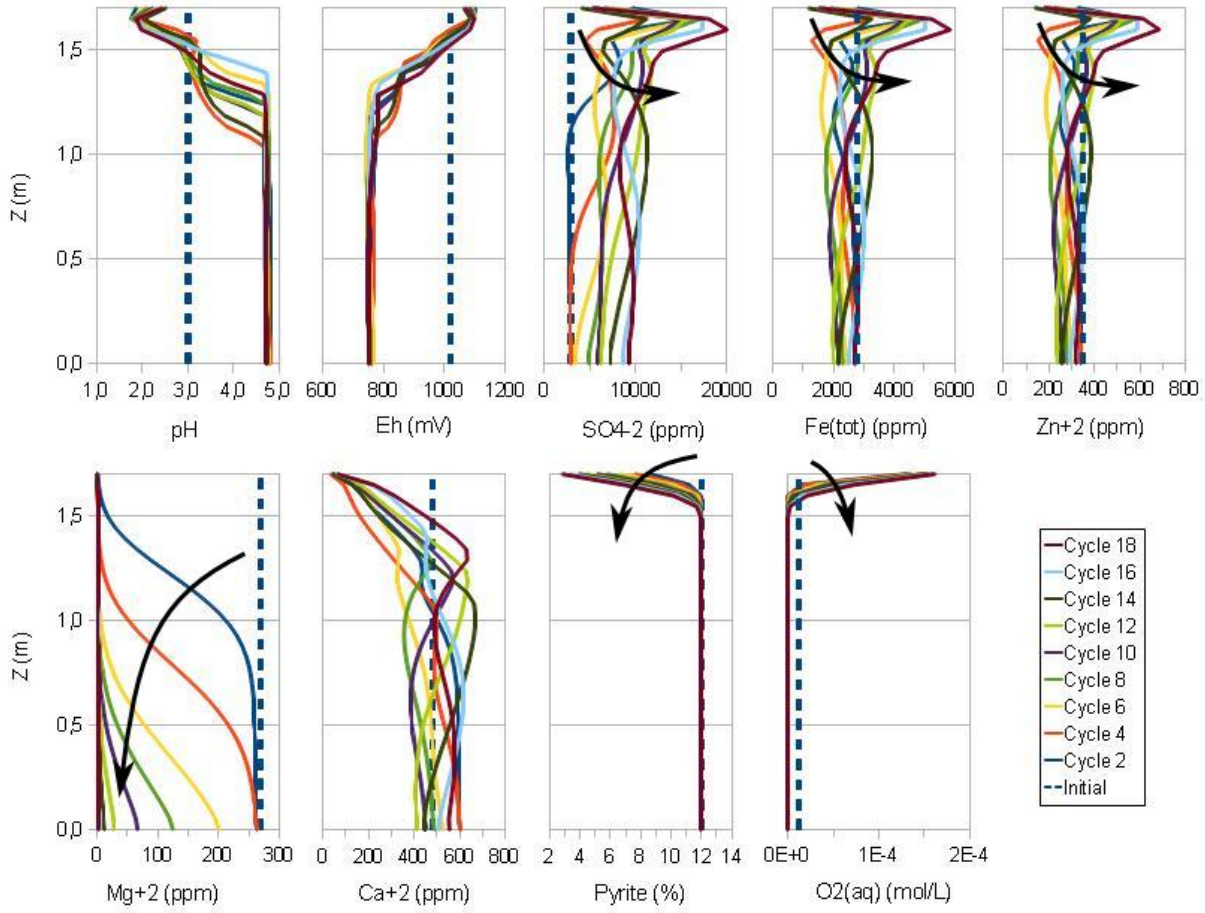


Figure 8.11: Profils du pH, du Eh, de la concentration d'oxygène dissout et des concentrations de métaux et autres éléments dans la colonne MNOG au cours des cycles de mouillage-drainage (au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18)

Les profils des concentrations de Zn sont assez constants au cours du temps et en fonction de l'élévation. Elles sont d'environ 300 ppm, avec des pics à plus de 600 ppm dans les 20 cm supérieurs. Les concentrations de Mg diminuent au cours du temps sur tout le profil, car aucune source ne produit suffisamment de Mg (on a vu plus haut que Min3P modélisait assez mal la dissolution des silicates). Après 8 cycles, la concentration de Mg sur tout le profil est presque nulle. Les concentrations de Ca restent élevées et augmentent dans les 50 premiers centimètres. Ceci s'explique par le fait que l'anorthite se dissout au fur et à mesure que le front de drainage, acide, traverse la colonne.

On constate également que la teneur en pyrite tend à diminuer au cours du temps. En 18 cycles l'oxydation de la pyrite ne se fait toutefois que sur les 20 premiers centimètres de la colonne. Les teneurs en pyrite au sommet des résidus passent de 12% à 3% environ. Sur l'ensemble du modèle, l'épuisement simulé de la pyrite correspond à un peu plus de 0,5% de la masse initiale, ce qui est assez proche des mesures de laboratoire (entre 0,3% et 0,9% ; voir section 5.5.1). On observe également que tout l'oxygène est consommé en surface par la réaction d'oxydation.

La tendance générale est donc à l'acidification.

La figure 8.12 présente les profils pH, Eh, O_2(aq), Fe(tot), sulfates, Zn, Mg et Ca dans la colonne MOG, ainsi que les teneurs massiques en pyrite. Au total, 7 courbes sont tracées, au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10 et 12.

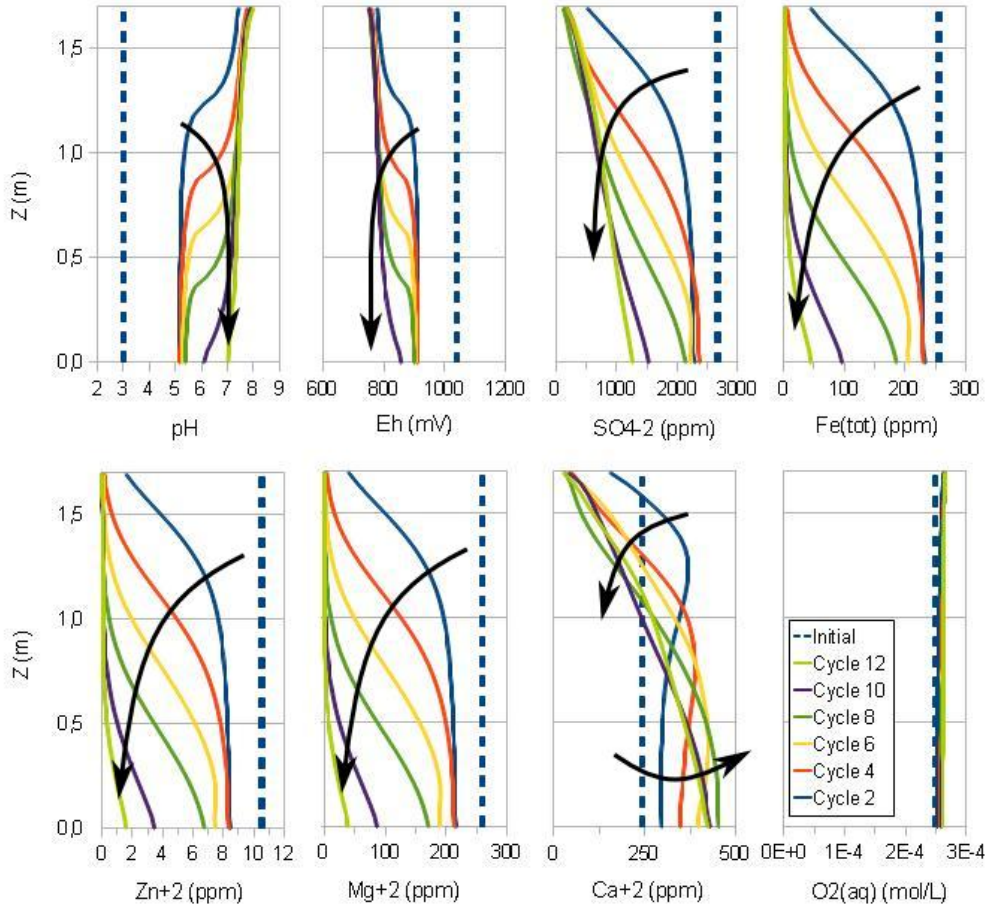


Figure 8.12: Profils du pH, du Eh, de la concentration d'oxygène dissout et des concentrations de métaux et autres éléments dans la colonne MOG au cours des cycles de mouillage-drainage (au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10 et 12)

Les résidus MO ne sont pas réactifs et les profils suivent des tendances claires au fil des cycles. Dans tous les cas, les profils tendent vers une homogénéisation selon la qualité de l'eau ajoutée au sommet des colonnes. L'évolution est plus lente que dans les autres simulations en raison du retard induit par la couverture incluse dans le modèle MOG.

La figure 8.13 présente les profils pH, Eh, O_2(aq), Fe(tot), sulfates, Zn, Mg et Ca dans la colonne SNOG, ainsi que les teneurs massiques en pyrite et en dolomite. Au total, 10 courbes sont tracées, au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18.

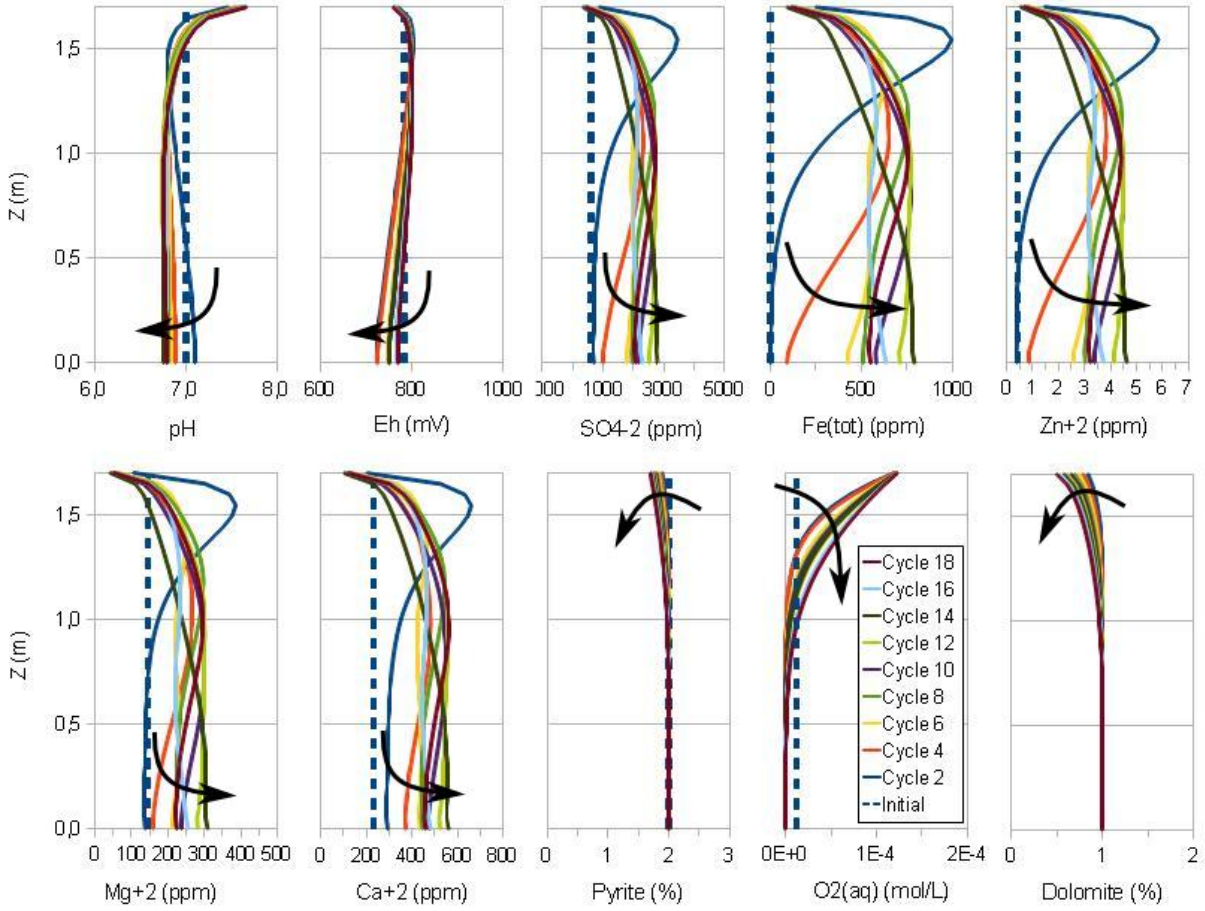


Figure 8.13: Profils du pH, du Eh, de la concentration d'oxygène dissout et des concentrations de métaux et autres éléments dans la colonne SNOG au cours des cycles de mouillage-drainage (au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18)

On constate que le pH est supérieur à 7 dans les 20 cm supérieurs. La dolomite présente dans le milieu neutralise donc assez rapidement l'acide produit. Le Eh est à peu près constant sur tout le

profil et égal à environ 800 mV. Les concentrations de sulfates, Fe(tot), Zn, Mg et Ca augmentent avec la profondeur et tendent vers une constante. Les plus grandes variations de concentrations sont observées au cours des 4 premiers cycles. Après 189 jours, les profils varient peu. La quantité de pyrite dans la colonne diminue doucement, à commencer par le sommet du profil, qui perd environ 0,5% sur 18 cycles. La diminution simulée de la teneur en pyrite sur l'ensemble de la colonne représente environ 0,07% de la masse totale de pyrite initiale, ce qui est nettement moins que les 2,2% estimés dans les essais en colonne au laboratoire (un certain nombre d'hypothèses ont été faites pour réaliser ces calculs d'épuisement ; voir section 5.5.3). Dans le même temps, la dolomite est dissoute en raison de la production d'acide et de sa neutralisation. Sur la même période, la teneur en dolomite passe de 1% à 0,5% environ ; elle semble donc s'épuiser plus rapidement que la pyrite. Cela laisse penser qu'à terme, la colonne SNOG devrait générer de l'acide (comme on l'a observé sur le site minier Selbaie).

Par ailleurs, même si le lixiviat est proche de la neutralité, les concentrations en sulfates et métaux indiquent que l'eau de drainage est très contaminée avec 2500 ppm de sulfates, 500 ppm de fer, etc. Le phénomène ne semble d'ailleurs pas ralentir.

Enfin, la figure 8.14 présente les profils pH, Eh, O_2(aq), Fe(tot), sulfates, Zn, Mg et Ca dans la colonne SOG, ainsi que les teneurs massiques en pyrite et en dolomite. Au total, 10 courbes sont tracées, au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18.

Ces profils indiquent que la qualité d'eau se dégrade au cours du temps. Le pH diminue progressivement sur tout le profil, et les concentrations en sulfates et en métaux augmentent rapidement. Les profils semblent d'ailleurs continuer d'évoluer, ce qui indique une dégradation du système. Au sommet des résidus, environ 1% de pyrite a été oxydé, alors que la dolomite a perdu la moitié de sa quantité initiale dans la même zone (soit 0,2% environ pour l'ensemble de la colonne ; contre 0,9% estimés dans les essais au laboratoire ; voir section 5.5.4). On remarque que l'épuisement de la dolomite semble plus rapide que l'épuisement de la pyrite. A terme, on s'attend donc à une acidification du milieu malgré les 3% initiaux de dolomite.

Même si le pH reste autour de 7 (et même plus au sommet de la colonne), les concentrations de sulfates et métaux sont élevées (largement supérieures aux normes). On mesure ainsi plus de 2000 ppm de sulfates, plus de 500 ppm de Fe(tot) et plus de 6 ppm de Zn sur presque toute la hauteur des résidus.

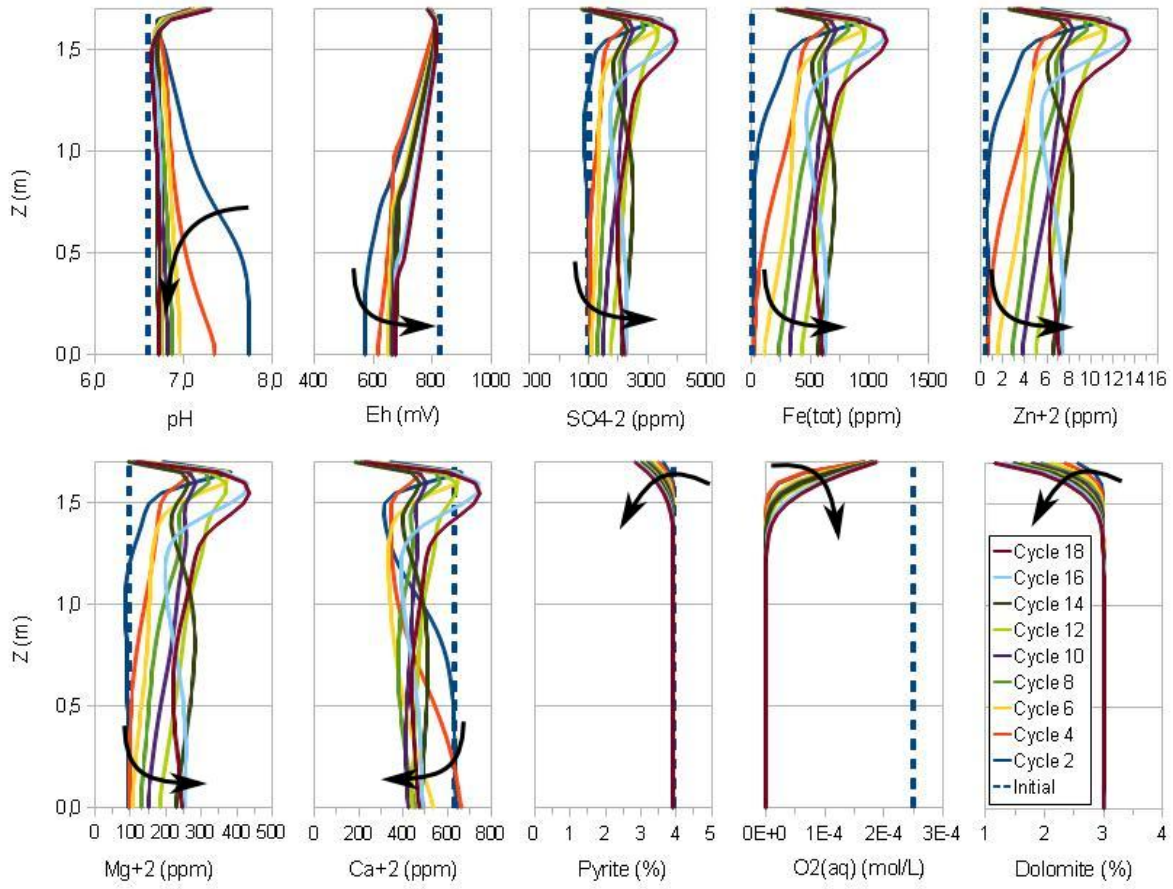


Figure 8.14: Profils du pH, du Eh, de la concentration d'oxygène dissout et des concentrations de métaux et autres éléments dans la colonne SOG au cours des cycles de mouillage-drainage (au temps initial et à la fin des cycles 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 et 18)

8.4 Analyse de sensibilité et étude paramétrique

L'analyse de sensibilité vise à compléter l'évaluation de l'influence du type de matériaux et des conditions hydrogéologiques (fait dans le chapitre 7) en mettant l'emphase sur l'influence de certaines caractéristiques des simulations, tels la taille du maillage, les conditions limites d'entrée (infiltration) et l'épaisseur de la couverture. Les résultats sont présentés en détails à l'annexe 8.10. Cette étude indique que :

- un maillage de 10 cm de hauteur pour les modèles de terrain est acceptable ;
- la simulation en deux étapes (couverture seule puis résidus seuls) donne de bons résultats ;

- le phénomène d'hystérésis de la CRE doit être pris en compte dans les modèles pour bien simuler le comportement des résidus et la génération d'eaux acides contaminées ;
- la qualité de l'eau ajoutée au sommet des simulations a peu d'impact sur les résultats. Par la suite, on considérera que la composition de l'eau d'infiltration sera celle de l'eau déionisée. On retiendra néanmoins que les concentrations de Na simulées ne seront pas nécessairement représentatives des conditions réelles sur le terrain. Cette approche est partiellement validée par les observations réalisées sur la colonne MNOG (pour laquelle les premiers cycles ont été réalisés avec de l'eau de procédé, sans que cela ne semble avoir d'influence sur la qualité du lixiviat ; voir section 5.5.1).

8.5 Simulations des conditions de terrain

8.5.1 Méthodologie

Les simulations des conditions de terrain avec le code Min3P se basent sur les mêmes principes que celles réalisées avec Vadose/W dans le chapitre 7. Géométriquement, les modèles numériques sont construits comme des colonnes parallélépipédiques 1D de 1 m² et de 10 mètres de hauteur, entièrement composées de résidus réactifs. La couverture n'a pas été directement incluse dans le modèle, pour les raisons exposées plus haut, mais son effet sera reproduit par l'application des conditions de concentration d'oxygène au sommet des résidus. Les calculs, sauf mention contraire, sont réalisés sur une période de 10 ans. Pour plus de clarté, les profils seront présentés pour les 5 mètres supérieurs des modèles.

Deux paramètres affectent tout particulièrement le comportement géochimique des résidus dans les simulations :

- la concentration d'oxygène au sommet des résidus ;
- la quantité d'eau traversant les résidus.

Parmi les quatre échantillons de résidus étudiés plus haut, quatre minéralogies distinctes ont été identifiées. Pour cette étude, deux ont été choisies : les résidus MNO et les résidus SO. Leurs propriétés géochimiques seront appliquées aux résidus M3 et M4 (MNO) et S2 et S3 (SO). Le choix de MNO et SO est basé principalement sur le fait qu'il s'agit des deux résidus les plus réactifs (ceux qui contiennent le plus de pyrite, soit respectivement 12% et 4% en masse) et qu'ils

vont donc permettre de mieux visualiser l'impact de la technique de restauration sur la qualité de l'eau interstitielle.

Les conditions frontières sont appliquées tel que décrit à la section 8.1.5, à savoir :

- une nappe phréatique fixe située à 1 m, 2 m, 4 m ou 6 m de profondeur sous la surface des résidus selon les cas ;
- un flux d'infiltration total annuel réparti sur toute l'année en fonction de l'infiltration journalière, obtenue à partir des résultats des simulations avec Vadose/W (voir aussi section 8.1.5). Ce flux est identique d'année en année ;
- une chimie simplifiée (eau déionisée) pour simuler les précipitations, afin de simplifier les comparaisons ; on rappelle que la qualité d'eau n'a pas vraiment d'effet sur le comportement géochimique des résidus simulés ici (tel que discuté à la section 8.4) ;
- une concentration d'oxygène constante à la surface calculée comme la moyenne annuelle des concentrations à l'interface résidus-couverture estimées au moyen de Vadose/W.

Dans Min3P, on ne peut pas imposer directement de flux d'oxygène, seulement des concentrations, et ces dernières ne peuvent pas être modifiées au cours des simulations (d'où la nécessité de considérer qu'elles sont constantes, ce qui n'est pas nécessairement représentatif des conditions de terrain). Le tableau 8.10 présente les concentrations d'oxygène moyennes à l'interface résidus-couverture pour chaque type de recouvrement testé dans le chapitre 7. Elles ont été déterminées à partir des résultats obtenues avec Vadose/W (moyenne annuelle des concentrations calculées à l'interface) et ramenées en pressions partielles. On constate que la concentration d'oxygène moyenne à l'interface est la même dans plusieurs cas et pour des couvertures très différentes. Cette concentration d'oxygène est le principal facteur qui contrôle les réactions d'oxydation dans les simulations (on considère les mêmes minéralogies dans tous les cas, et on a pu constater que les autres paramètres n'avaient qu'une influence limitée). On se limitera donc à l'étude de certains cas particuliers, indiqués en gris dans le tableau 8.10. Pour les autres cas non présentés en détail ici, on pourra considérer que des concentrations en oxygène semblables donnent des résultats proches.

Voir aussi la liste complète des simulations présentées à l'annexe 7.8.

Tableau 8.10: Pressions partielles d'oxygènes (%) à l'interface résidus-couverture pour chaque type de résidus et de couverture. Les concentrations ont été évaluées au moyen du logiciel Vadose/W. Les cas simulés avec Min3P sont indiqués en gris

Cas simulés		M3G2	M4G2	S2Mor2	S3Mor2
Monocouche 1 m,	nappe -1 m	0,03	$3{,}8.10^{-3}$	-	-
	nappe -2 m	0,26	0,17	3,53	4,45
	nappe -4 m	2,30	8,79	5,76	7,80
	nappe -6 m	5,05	9,33	6,69	9,92
Monocouche 2 m,	nappe -1 m	0,01	$3{,}8.10^{-3}$	-	-
	nappe -2 m	0,15	0,12	2,25	2,78
	nappe -4 m	1,36	1,64	4,27	5,15
	nappe -6 m	3,18	1,71	5,31	6,34
Monocouche 4 m,	nappe -1 m	$4{,}6.10^{-3}$	$5{,}8.10^{-3}$	-	-
	nappe -2 m	0,12	0,17	1,07	1,86
	nappe -4 m	0,90	0,60	3,04	3,32
	nappe -6 m	1,85	0,62	3,77	3,85
CEBC bicouche 1 m, stériles 1,	nappe -4 m	2,76	4,47	4,48	5,98
2 m, stériles 1,	nappe -4 m	0,66	0,78	3,07	3,73
3 m		0,32	0,33	2,42	2,67
CEBC bicouche 1 m, stériles 2,	nappe -4 m	2,38	N/A	4,40	5,59
	nappe -1 m	2,32	-	-	-
2 m, stériles 2,	nappe -4 m	0,23	0,01	1,66	0,80
3 m		0,03	0,01	0,29	0,29
CEBC tricouche, stériles 1, nappe -4 m		0,04	0,05	2,01	2,52
CEBC tricouche, stériles 2, nappe -4 m		$1{,}3.10^{-4}$	$1{,}4.10^{-4}$	0,02	0,02

Les flux d'infiltration d'eau à travers la surface des résidus dans les différents modèles sont très semblables. D'après les données météorologiques employées dans ces simulations, les précipitations totales sur une année sont de l'ordre de 850 mm. L'infiltration nette (i.e. l'eau infiltrée moins l'eau évaporée) sur une année varie selon le type de couverture employée. Elle peut être aussi faible que 110 mm dans le cas des CEBC bicouches avec couche de stériles de

50 cm d'épaisseur, et aller jusqu'à 500 mm, dans le cas des CEBC tricouches avec barrière à l'évaporation. En général, l'infiltration nette est comprise entre 150 mm et 200 mm selon l'épaisseur de la couche de rétention (couvertures monocouches et multicouches)

Dans la suite, les profils géochimiques obtenus dans les résidus pour différentes couvertures sur une période de 10 ans seront comparés entre eux. On présente dans chaque figure le profil obtenu au 188^{e} jour (8 juillet) de chaque année (soit le jour le plus "sec" de l'année).

Les réponses hydrogéologiques des simulations avec Min3P sont présentées succinctement à l'annexe 8.11. On en retient que le code reproduit de façon satisfaisante le régime d'écoulement dans les résidus, ainsi que leur degré de saturation.

8.5.2 Résultats pour le site Manitou

8.5.2.1 Simulations sans couverture et géochimie initiale

On analyse dans un premier temps le comportement des résidus Manitou M3 avec les propriétés géochimiques des résidus MNO.

Les conditions chimiques initiales (i.e. qualité de l'eau interstitielle initiale) ont été déterminées en simulant un modèle de terrain sans couverture, avec une pression partielle d'oxygène au sommet des résidus fixée à 20,9%. Dans cette simulation, la composition chimique initiale de l'eau interstitielle est la même que dans la colonne MNOG (voir section 4.1.6.3).

On observe qu'après 10 années, les pH dans ces simulations restent relativement élevés (> 4,5) ce qui est non conforme aux observations de terrain. Le même modèle a alors été repris, en retirant l'anorthite de la composition chimique des résidus. Cette fois, les pH sont plus faibles, atteignant des valeurs autour de 2,0, ce qui correspond mieux à ce qui a pu être constaté sur le terrain et mesuré dans les colonnes MNOG et MNOP. Une comparaison des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour les simulations avec et sans anorthite à la 10^{e} année est présentée à la figure 8.15.

On utilise la composition géochimique de l'eau obtenue dans la simulation après 10 ans à -2 m comme condition initiale des modèles suivants. Les résultats sont présentés au tableau 8.11.

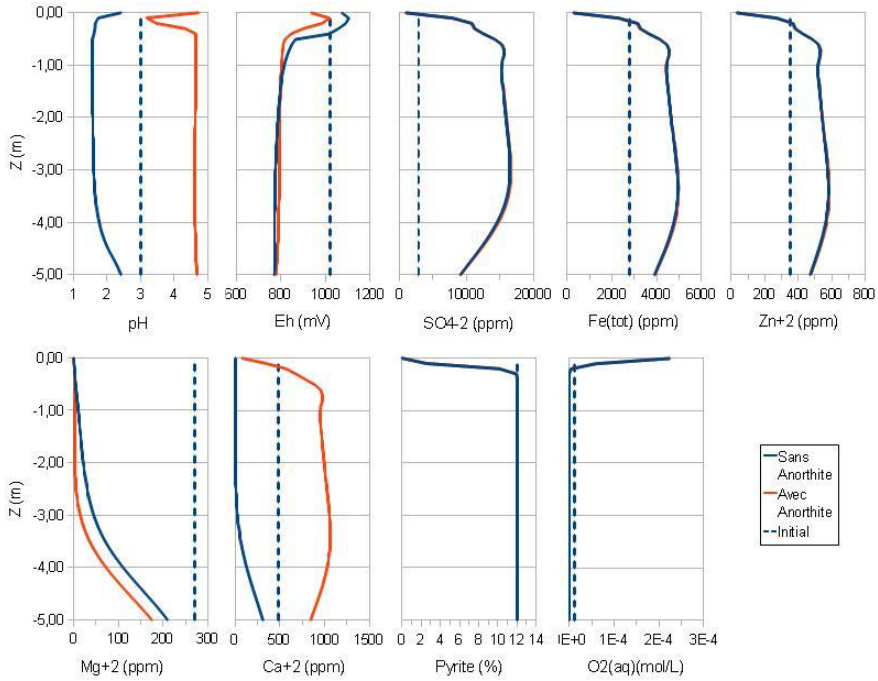


Figure 8.15: Profils simulés de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments dans les modèles sans couverture avec et sans anorthite après 10 ans (Manitou)

Tableau 8.11: Composition chimique de l'eau initialement présente dans les résidus Manitou pour les simulations des conditions de terrain (obtenue à partir de la simulation des résidus sans couverture, avec une nappe à -4 m)

Eléments	Unité	Entrée
Ca^{2+}	mol/L	$2{,}47.10^{-2}$
K^{+}	mol/L	$6{,}14.10^{-20}$
Cl^{-}	mol/L	$8{,}04.10^{-5}$
H_4SiO_4	mol/L	$4{,}92.10^{-2}$
Al^{3+}	mol/L	$4{,}92.10^{-2}$
CO_3^{2-}	pCO_2	$5{,}00.10^{-4}$
H^{+}	pH	4,50
$O_2(aq)$	pO_2	0,01
Fe^{2+}	mol/L	$3{,}09.10^{-6}$
Fe^{3+}	mol/L	$8{,}29.10^{-2}$
SO_4^{2-}	mol/L	$1{,}65.10^{-1}$

Eléments	Unité	Entrée
Mg^{2+}	mol/L	$8{,}51.10^{-5}$
Na^{+}	mol/L	$2{,}17.10^{-5}$
Mn^{2+}	mol/L	$1{,}25.10^{-4}$
Zn^{2+}	mol/L	$8{,}28.10^{-3}$
Ni^{2+}	mol/L	$1{,}65.10^{-5}$
Pb^{2+}	mol/L	$8{,}29.10^{-6}$
Cu^{2+}	mol/L	$4{,}14.10^{-3}$
Co^{2+}	mol/L	$9{,}37.10^{-8}$
Cd^{2+}	mol/L	$2{,}58.10^{-8}$
HS^{-}	mol/L	$1{,}00.10^{-100}$
Mn^{3+}	mol/L	$2{,}21.10^{-16}$

Dans les simulations avec Min3P, l'anorthite semble donc avoir un pouvoir neutralisant trop fort par rapport à ce qui a pu être observé en pratique. On supposera pour la suite que toute l'anorthite a été dissoute ; on fera l'hypothèse que l'on débute la simulation au moment où la dernière mole d'anorthite a été dissoute.

On observe sur la figure 8.15 que les profils sont généralement assez similaires pour les cas avec et sans anorthite, exceptés pour les concentrations de Ca. On note dans la simulation avec anorthite que le front d'oxydation (la profondeur sur laquelle la pyrite a été oxydée et partiellement épuisée) après dix ans a progressé vers le bas du modèle et que les concentrations en Ca au sommet du profil sont presque nulles, car une bonne partie de l'anorthite a été dissoute. Ceci vient corroborer l'hypothèse selon laquelle l'anorthite sera complètement dissoute après un certain temps.

On constate au tableau 8.11 que la qualité de l'eau initiale dans les simulations des conditions de terrain est moins acide et moins chargée en métaux lourds que celle vers laquelle tend l'essai en petite colonne MNOP (sans couverture ; laquelle est soumise à des conditions très favorables à la formation de DMA). Le pH simulé ici est de 4,5, soit plus élevé que les 2,5 mesurés, mais comme mentionné, il s'agit dans les simulations d'un effet neutralisant trop prononcé de l'anorthite. Les concentrations en sulfates sont de 16 000 ppm environ, contre des valeurs comprises entre 15 000 ppm et 40 000 ppm dans les essais, et les concentrations de fer et de zinc sont de 4600 ppm et 540 ppm respectivement, contre plus de 7000 ppm et 700 ppm dans la colonne. Le milieu initial simulé ici est donc certainement moins contaminé que ce qu'on mesure (au moins à certains endroits) sur le site.

Dans des essais réalisés en colonnes sur plusieurs échantillons de résidus Manitou par Bussière et al. (2011), les colonnes témoins (sans couverture) ont donné des pH compris entre 1,5 et 2,8 selon les résidus employés (plusieurs échantillons de granulométries et minéralogies différentes). D'après les mêmes essais, les concentrations en sulfates étaient comprises entre 4000 ppm et 60 000 ppm, celles de fer entre 700 ppm et 10 000 ppm, et celles de zinc entre 40 ppm et 3000 ppm. Aubertin et al. (1997) ont mesuré dans des colonnes de 30 cm de résidus Manitou des pH qui se sont maintenus autour de 7,0 (les résidus employés étaient passablement différents de ceux étudiés ici, et leur teneur en pyrite était de 3%). Enfin, lors d'essais en cellules de terrain (Aubertin et al., 1999), les résidus Manitou exposés (cellule 6, témoin) ont donné des pH entre

2,0 et 3,0, des concentrations de sulfates comprises entre 30 000 ppm et 100 000 ppm, en fer entre 10 000 ppm et 30 000 ppm et des concentrations de zinc entre 700 ppm et 1200 ppm.

La simulation des conditions de terrain pour des résidus Manitou exposés (sans couverture) donne donc des résultats géochimiques réalistes et comparables à d'autres essais réalisés en colonne ou sur le terrain sans couverture.

8.5.2.2 Comportement de l'anorthite dans les simulations

Afin d'évaluer plus en détails l'effet de l'anorthite sur les résultats des simulations, d'autres modèles numériques ont été réalisés avec une couverture monocouche de résidus Goldex G2 de 1 mètre d'épaisseur. La nappe est située à 4 mètres de profondeur. La concentration moyenne annuelle d'oxygène au sommet des résidus est de 2,3% (selon l'estimation réalisée avec Vadose). La figure 8.16 présente les résultats pour la simulation avec anorthite.

On constate que dans le cas où la simulation est réalisée avec présence d'anorthite, le pH reste élevé (> 4,5) dans la plus grande partie du profil. Un front acide se développe toutefois au sommet du modèle. En 10 ans, celui-ci n'a progressé que de quelques centimètres vers le bas. Bien que l'eau interstitielle ne soit pas très acide à des profondeurs supérieures à quelques centimètres, elle est tout de même contaminée. Les concentrations en sulfates sont supérieures à 2000 ppm, les concentrations en fer dépassent 600 ppm, celles de Zn 70 ppm. Tel que constaté dans les simulations des essais de laboratoire (en colonnes), les concentrations de Mg sont proches de 0 ppm et les concentrations de Ca demeurent assez élevées (> 170 ppm) en raison essentiellement de la dissolution de l'anorthite. On constate également qu'après 10 ans, la pyrite a été oxydée sur une vingtaine de centimètres et que les teneurs en sulfures au sommet des résidus ont diminué de plus de moitié par rapport aux valeurs initiales. On remarque aussi que l'ajout de la couverture permet d'améliorer la qualité de l'eau interstitielle. Les concentrations en sulfates passent de 16 000 ppm à 2000 ppm et les concentrations de fer et de zinc sont divisées par cinq.

Après dix ans, les concentrations sont devenues indépendantes des conditions initiales (i.e. elles ne varient plus) sur environ 3 mètres de profondeur depuis la surface des résidus. Le renouvellement de l'eau interstitielle est donc relativement lent en raison de la faible conductivité hydraulique des résidus et du flux d'infiltration net annuel limité.

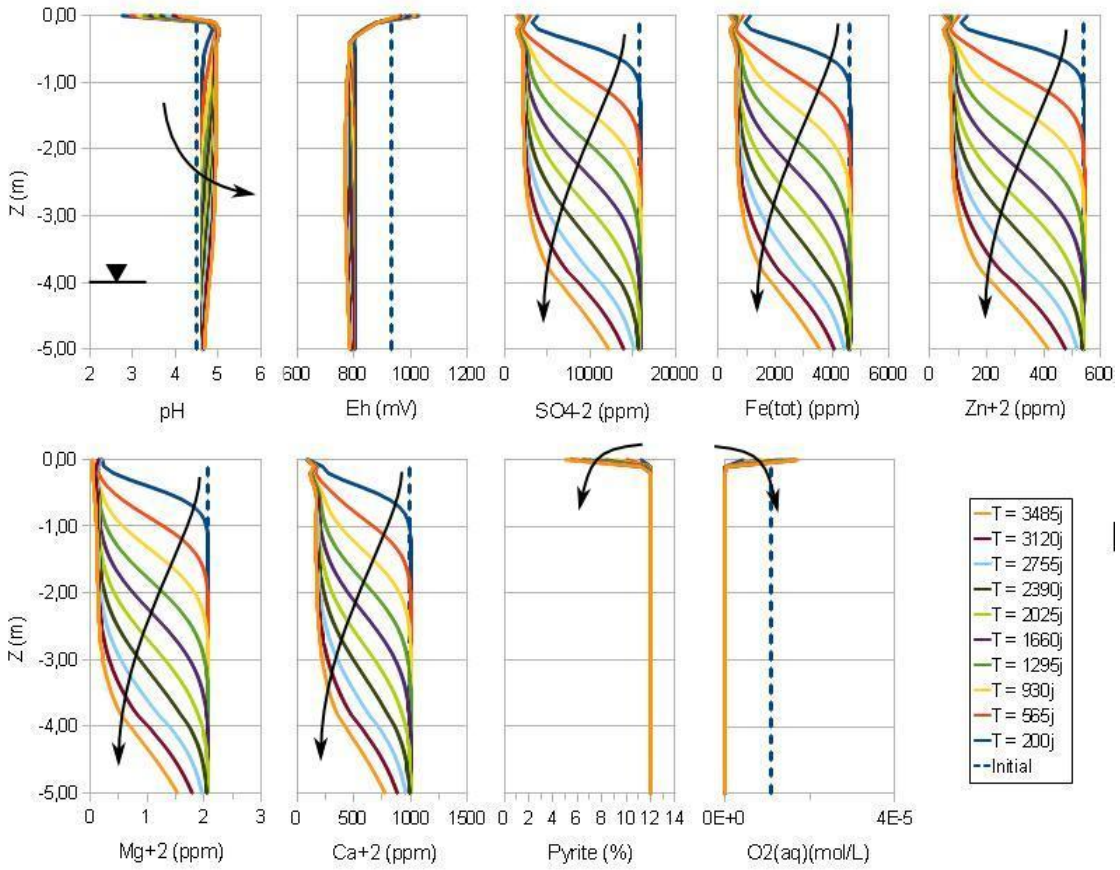


Figure 8.16: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments dans un modèle avec une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur, nappe à -4 m, en incluant l'anorthite dans les calculs (Manitou)

Les résultats du même modèle sans anorthite sont présentés à la figure 8.17. On constate sur celle-ci que la plupart des profils de concentrations (sulfates, fer, zinc...) sont identiques au modèle avec anorthite. La seule différence notable concerne les valeurs du pH, qui diminue ici jusqu'à des valeurs proches de 2,2. Le drainage peut donc être qualifié d'acide. Comme il n'y a plus d'anorthite dans le système, les concentrations de Ca diminuent progressivement jusqu'à 0 ppm. A l'inverse, les concentrations de Mg augmentent progressivement et elles peuvent dépasser 30 ppm en certains points du profil après 10 ans (alors qu'elles étaient au plus égales à 2 ppm dans le modèle avec anorthite). L'acidification du milieu entraîne donc une augmentation de la dissolution des silicates (ici la chlorite), mais on ne dispose pas de suffisamment de donnée pour valider l'ampleur du phénomène (qui est fonction du pH ; Klein et Hurlbut, 1999).

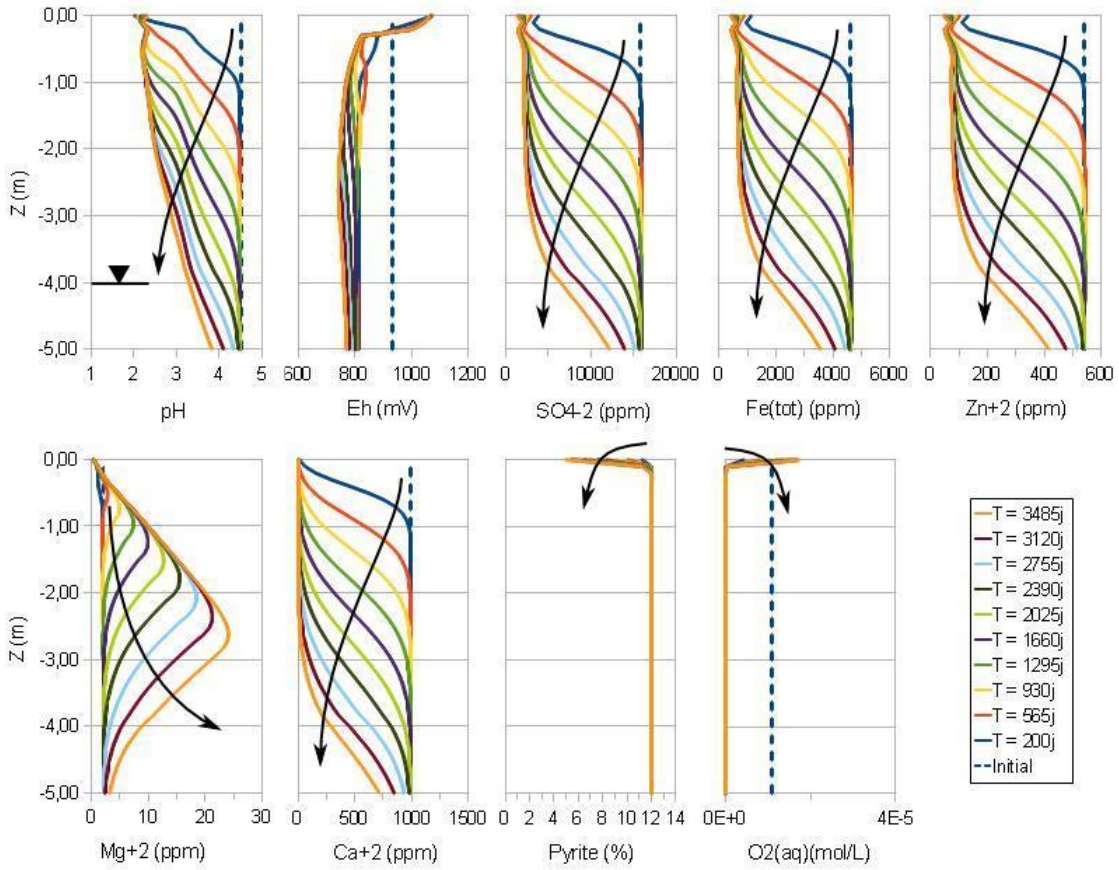


Figure 8.17: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments dans un modèle avec une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur, nappe à -4m, en retirant l'anorthite de la composition des résidus (Manitou)

8.5.2.3 Simulations de la sphalérite

Jusqu'ici, le modèle de substitution calibré plus haut (voir équation 8.1) a été employé. Or, la sphalérite a été identifiée à plusieurs reprises sur le site (Bussière et al., 2011). On emploie donc ici la réaction usuelle d'oxydation (modèle « pyrite-sc » de Min3P), et on remplace 2% de pyrite (il en reste donc 10%) par 2% de sphalérite (valeur ajustée). Les propriétés de cette dernière sont identiques à celles de la pyrite dans la simulation (mêmes paramètres « scalfac », « radi », « rads », même cinétique d'oxydation). On utilise également le modèle du noyau réactif pour simuler l'oxydation de la sphalérite (modèle « sphaler-sc »). Les résultats de cette simulation sont présentés à la figure 8.18.

On observe que les résultats obtenus en incluant la sphalérite dans la simulation sont similaires au cas précédent (avec le modèle de substitution et sans sphalérite). Dans l'ensemble, les tendances et les valeurs sont les mêmes. La seule différence se situe au niveau des concentrations de Zn. La simulation avec le modèle de substitution indiquait une tendance des concentrations vers 70 ppm. En incluant la sphalérite, les concentrations simulées sont plus élevées et tendent vers 180 ppm. Ces résultats sont dans l'ordre de grandeurs des résultats obtenus dans certains essais (voir figure 8.9 par exemple). Pour la suite des simulations, on considérera donc le modèle avec sphalérite (et non plus le modèle de pyrite avec substitution).

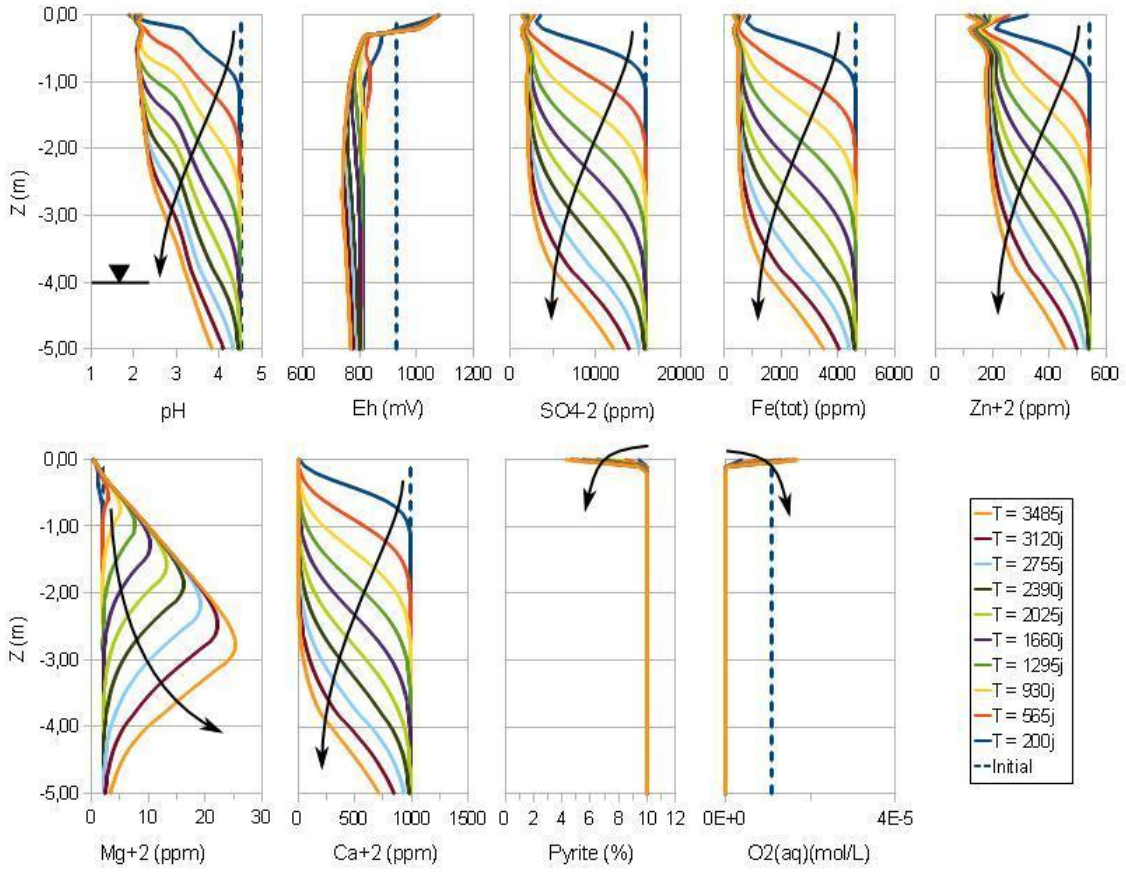


Figure 8.18: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments dans un modèle avec une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur, nappe à -4m, en incluant la sphalérite (2%) dans la simulation (Manitou)

8.5.2.4 Effets de la profondeur de la nappe

Les simulations avec Min3P permettent également d'évaluer le comportement d'un recouvrement monocouche pour différentes profondeurs de nappe. Dans la section précédente, on a analysé le comportement d'un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur avec une nappe située à 4 mètres de profondeur sous la surface des résidus. On choisit ici trois cas complémentaires étudiés dans le chapitre 7, soit une couverture identique de 1 m d'épaisseur de résidus Goldex G2, avec une nappe située à 1 m, 2 m et 6 m de profondeur sous l'interface résidus-couverture. La pression partielle d'O_2 moyenne annuelle au sommet des résidus pour le cas d'une nappe à -1 m est de 0,03%, soit une concentration presque 100 plus faible que dans le cas d'une nappe à -4 m.

La figure 8.19 présente les résultats pour le cas de la nappe à -1 m.

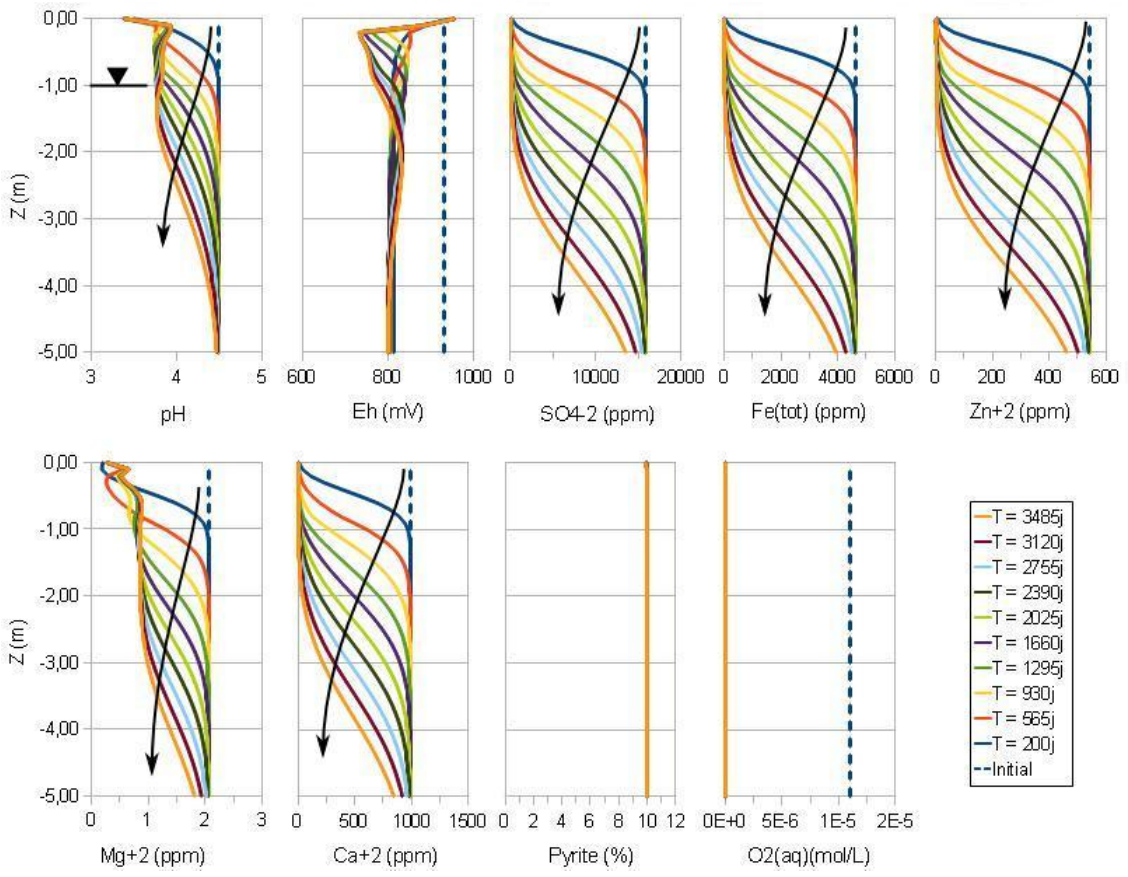


Figure 8.19: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à -1 m (Manitou)

On constate sur la figure 8.19 que le pH diminue au cours du temps par rapport aux conditions initiales, mais moins que précédemment, et tend progressivement vers des valeurs autours de 3,8. On observe aussi ce qui semble être une ré-augmentation du pH dans la partie supérieure des simulations après 10 ans. Les concentrations en sulfates, qui diminuent par rapport au cas sans couverture, sont comprises entre 20 ppm et 60 ppm jusqu'à 1 mètre de profondeur sous la surface des résidus. Les concentrations de Fe et Zn suivent la même tendance, et sont inférieures à 20 ppm et 4 ppm respectivement sur le mètre supérieur à la fin des simulations. Après 10 ans, la teneur en pyrite au sommet des résidus n'a diminué que de 0,12%, ce qui indique qu'elle a été peu oxydée.

Une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur avec une nappe située à -1 m semble donc être assez efficace pour prévenir l'oxydation des minéraux sulfureux et la génération de DMA. Néanmoins, le taux de remplacement de l'eau interstitielle (i.e. le temps que prend le milieu pour devenir indépendant des concentrations initiales et tendre vers une chimie liée uniquement aux conditions géochimiques du milieu) est très lent : après 10 ans, la qualité de l'eau ne s'est améliorée significativement que sur 1 mètre environ. Les concentrations en métaux demeurent relativement élevées et supérieures aux normes environnementales. Au sommet des modèles numériques, les concentrations de sulfates sont ainsi d'environ 22 ppm, celles de fer de 8 ppm, celles de zinc de 2 ppm et le pH est de 3,9.

On en déduit que, dans les simulations, la réactivité de la pyrite est si élevée que même des flux d'oxygène aussi faibles que 7,2 g/m²/an peuvent suffire à oxyder de petites quantités de pyrite qui suffisent à générer des eaux acides (on rappelle que l'on a inclus l'effet de l'oxydation indirecte dans le calibration du comportement géochimique de la pyrite).

Bussière et al. (2011) ont obtenu pour une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à 0,5 m de profondeur sous la surface des résidus (soit 0,5 m plus haute que le cas simulé ici) des pH de l'ordre de 3,0, des concentrations en sulfates autour de 1200 ppm, des concentrations en fer comprises entre 100 et 400 ppm et des concentrations de zinc entre 60 et 100 ppm. La contamination dans ce cas est beaucoup plus importante que celle simulée, ce qui peut-être lié aux différences minéralogiques entre les résidus utilisés, aux conditions plus favorables à la production de DMA (dimensions de l'essai réduites et cycles de mouillage-séchage plus fréquents au laboratoire).

La même simulation a ensuite été reprise en considérant cette fois une nappe située à 2 mètres sous la surface des résidus. Plus la nappe est profonde, plus le flux d'oxygène traversant la couverture est important (ici : 62,1 g/m²/an) et plus les minéraux sulfureux vont être susceptibles de s'oxyder. La concentration moyenne d'oxygène au sommet des résidus est ici de 0,26%, soit 10 fois plus que dans le cas précédent (nappe à -1 m). Les résultats sont présentés à la figure 8.20.

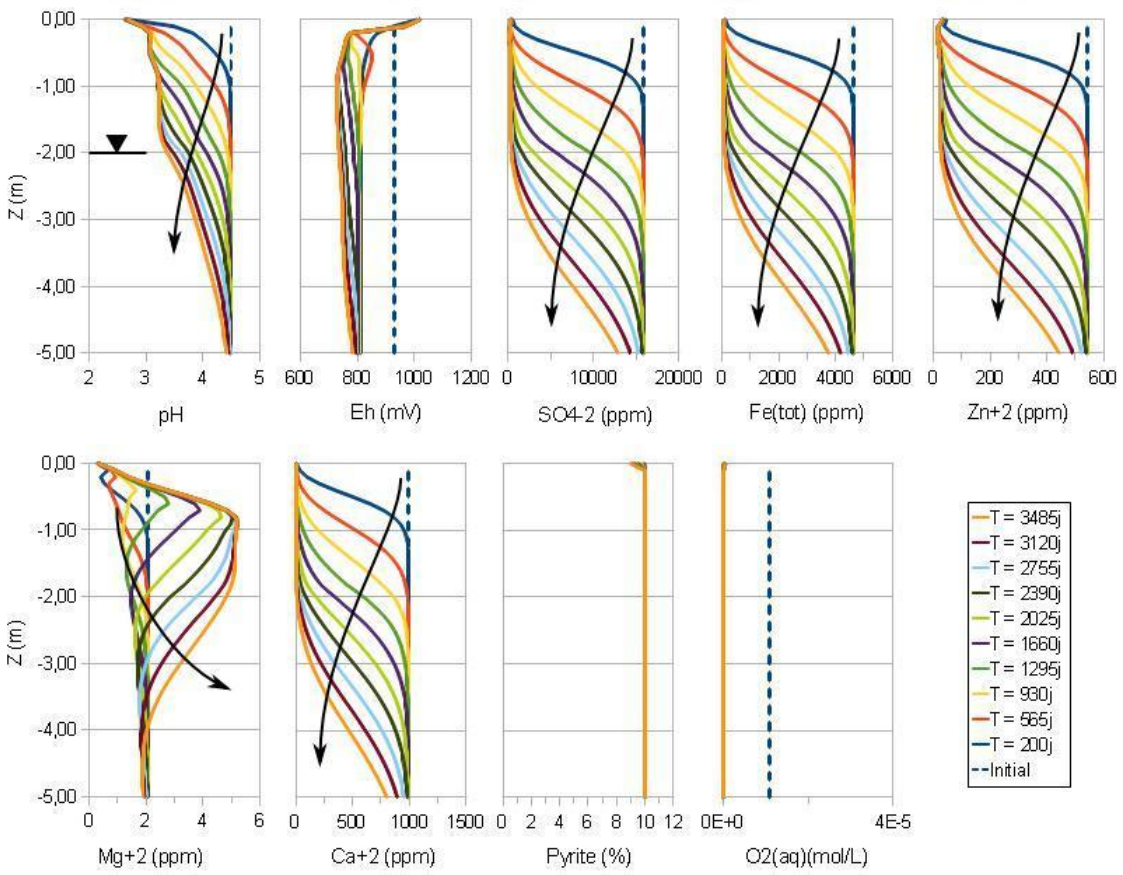


Figure 8.20: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à -2 m (Manitou)

On constate que la qualité de l'eau évolue de façon similaire au cas de la nappe à -1 m, mais que les concentrations en métaux sont plus importantes et le pH plus faible. Celui-ci tend vers une valeur de 3,0 environ et peut même atteindre des valeurs aussi faibles 2,7 au sommet du modèle numérique.

Les concentrations en sulfates, fer et zinc diminuent progressivement à mesure que les mouillages successifs diluent les concentrations initiales et tendent vers des valeurs de 200 ppm,

50 ppm et 20 ppm respectivement. L'eau interstitielle est donc d'avantage contaminée que dans le cas où la nappe se trouvait à -1 m.

On constate également que la pyrite a été d'avantage oxydée après 10 ans, avec plus de 1% consommée. Les concentrations en magnésium sont également plus importantes, signe d'une dissolution de la chlorite plus rapide (qui s'explique par des pH plus faibles).

L'abaissement du niveau de la nappe de 1 mètre suffit donc à augmenter de près de 10 fois le flux d'oxygène à travers la couverture, ce qui entraine une augmentation significative de la contamination de l'eau interstitielle.

Une configuration similaire (couverture de résidus Goldex de 1 m d'épaisseur, nappe à -1,9 m sous la surface des résidus) a été testée par Bussière et al. (2011) avec deux types de résidus Manitou (grossiers et fins, non oxydés). D'après leurs résultats, le pH varie entre 2,5 et 3,5, les concentrations de sulfates sont d'environ 3000 ppm et celles de fer et de zinc varient entre 100 ppm et 300 ppm et entre 10 ppm et 60 ppm respectivement. Les simulations réalisées ici donnent donc des pH assez semblables à ceux mesurés dans ces essais. Les concentrations en fer et zinc simulées sont également assez proches des résultats mesurés. Les concentrations en sulfates par contre sont sous-estimées d'un facteur 15 environ dans les simulations.

On réalise à nouveau la même simulation mais avec cette fois une nappe située à 6 mètres sous la surface des résidus. Dans ce cas, le flux d'oxygène est de 1200 g/m²/an et la pression partielle d'oxygène au sommet des résidus est de l'ordre de 5,1%.

Les résultats sont présentés à la figure 8.21. On constate que dans le cas où la nappe est située à 6 mètres de profondeur, l'oxydation des minéraux sulfureux est rapide, entraînant la libération d'importantes quantités de métaux et sulfates. Après 10 ans, le pH est inférieur à 2,0 sur une profondeur de plus de 3 mètres, les concentrations en sulfates sont autour de 3000 ppm, celles de fer de 800 ppm et celles de zinc de 300 ppm. Les concentrations de magnésium dépassent 30 ppm en certains points du profil. La pyrite a été oxydée sur plus de 20 cm ; il ne reste au sommet des résidus que 1,4% de pyrite.

On note également ici que l'évolution de la qualité de l'eau interstitielle est un peu plus rapide, due à une infiltration plus importante (166 mm/an contre 145 mm/an dans les cas précédents).

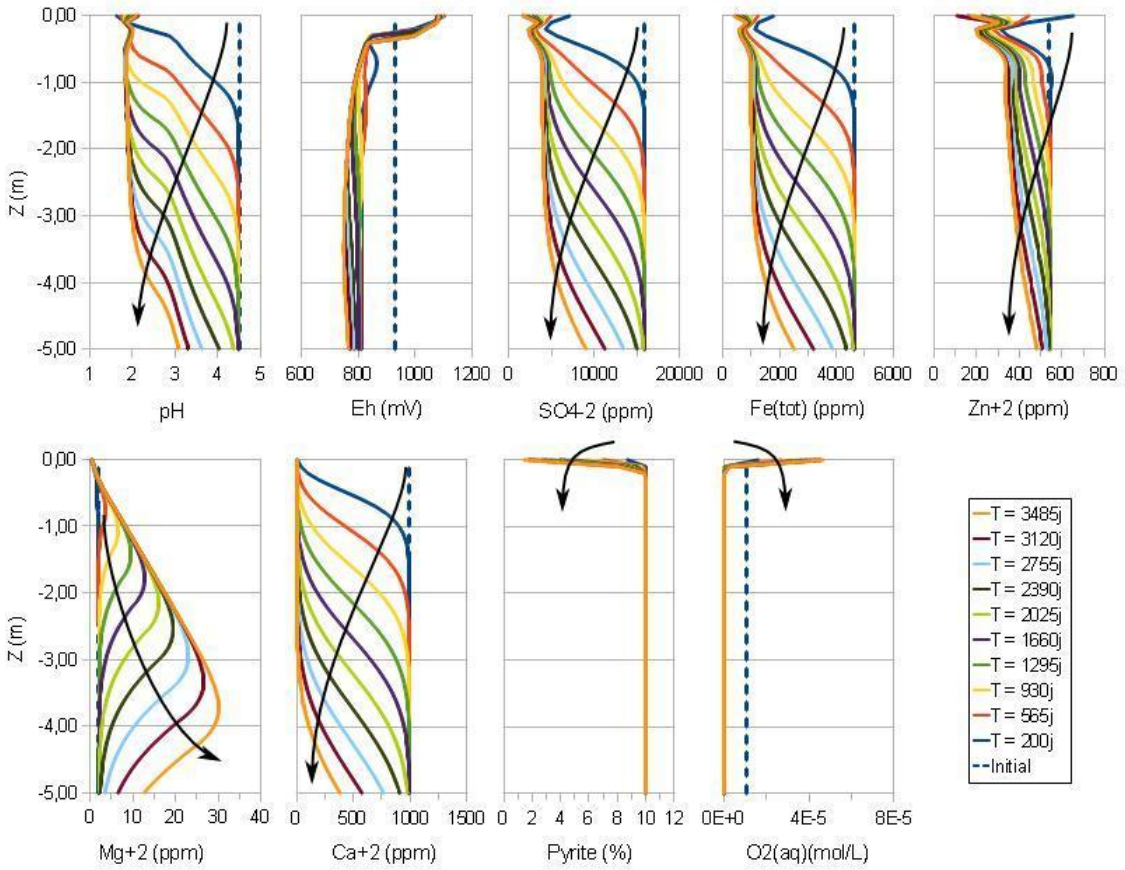


Figure 8.21: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à -6 m (Manitou)

Afin de comparer l'évolution de la qualité de l'eau interstitielle dans le cas d'une couverture monocouche de 1 mètre d'épaisseur et pour différentes profondeurs de nappe, on présente à la figure 8.22 les profils obtenus pour chaque simulation au bout de 10 ans.

On observe que pour une même couverture (ici un recouvrement monocouche de résidus Goldex G2 de 1 mètre d'épaisseur), plus la nappe est profonde, plus la génération de DMA et la contamination de l'eau interstitielle est importante. Une variation de 5 mètres dans la position de la nappe peut entraîner une baisse du pH de plus de 2 unités (soit une augmentation des concentrations de H^+ de deux ordres de grandeur), ainsi que l'augmentation des concentrations de sulfates, fer et zinc de 3000 ppm, 800 ppm et 300 ppm respectivement.

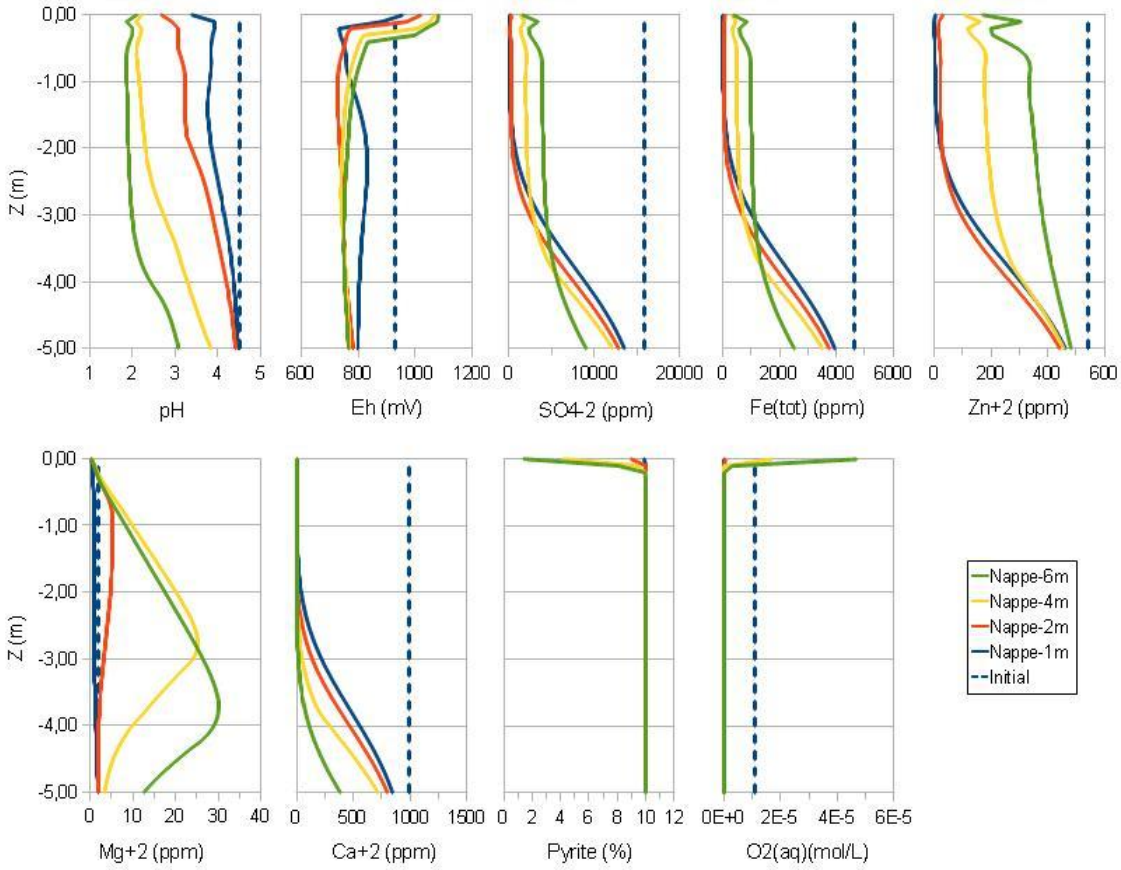


Figure 8.22: Simulation des profils de pH, Eh, O_2 dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur et différentes profondeurs de nappe après 10 ans (Manitou)

8.5.2.5 Couvertures bicouches à effet de barrière capillaire

On a vu au chapitre 7 que certaines couvertures bicouches à effet de barrière capillaire, selon leur configuration, pouvaient permettre de ralentir la désaturation gravitaire de la couche de rétention d'eau, de limiter le flux d'oxygène et ainsi de diminuer la génération d'acide des résidus. Quelques cas types ont été analysés, à savoir une couverture bicouche constituée de 1 mètre de stériles 2 surmontés de 1 ou 3 mètres de résidus Goldex G2, avec une position de nappe variable.

Considérons en premier lieu le cas d'une couche de rétention de 1 m et une nappe située à 4 m de profondeur sous la surface des résidus réactifs. Les simulations avec Vadose/W ont permis d'estimer le flux d'oxygène à travers la couverture à 571 g/m²/an environ, ce qui correspond une pression partielle d'oxygène moyenne au sommet des résidus de l'ordre de 2,4%.

Les résultats des simulations avec Min3P sont présentés à la figure 8.23. On observe que le pH diminue jusqu'à des valeurs de 2,1 au bout de 10 ans. Les concentrations en sulfates sont d'environ 1800 ppm, les concentrations en fer dépassent les 400 ppm, et celles de Zn les 150 ppm. On constate également qu'après 10 ans, la pyrite a été partiellement oxydée sur un peu plus de 10 centimètres et que les teneurs en pyrite ne sont plus que de 4% au sommet des résidus (contre 10% initialement).

Les résultats de cette simulation sont semblables à ceux obtenus avec une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à 4 m de profondeur, pour laquelle la pression partielle d'oxygène moyenne était de 2,3%. Ceci permet de confirmer que les simulations sont principalement fonction de la concentration d'oxygène appliquée au sommet des résidus.

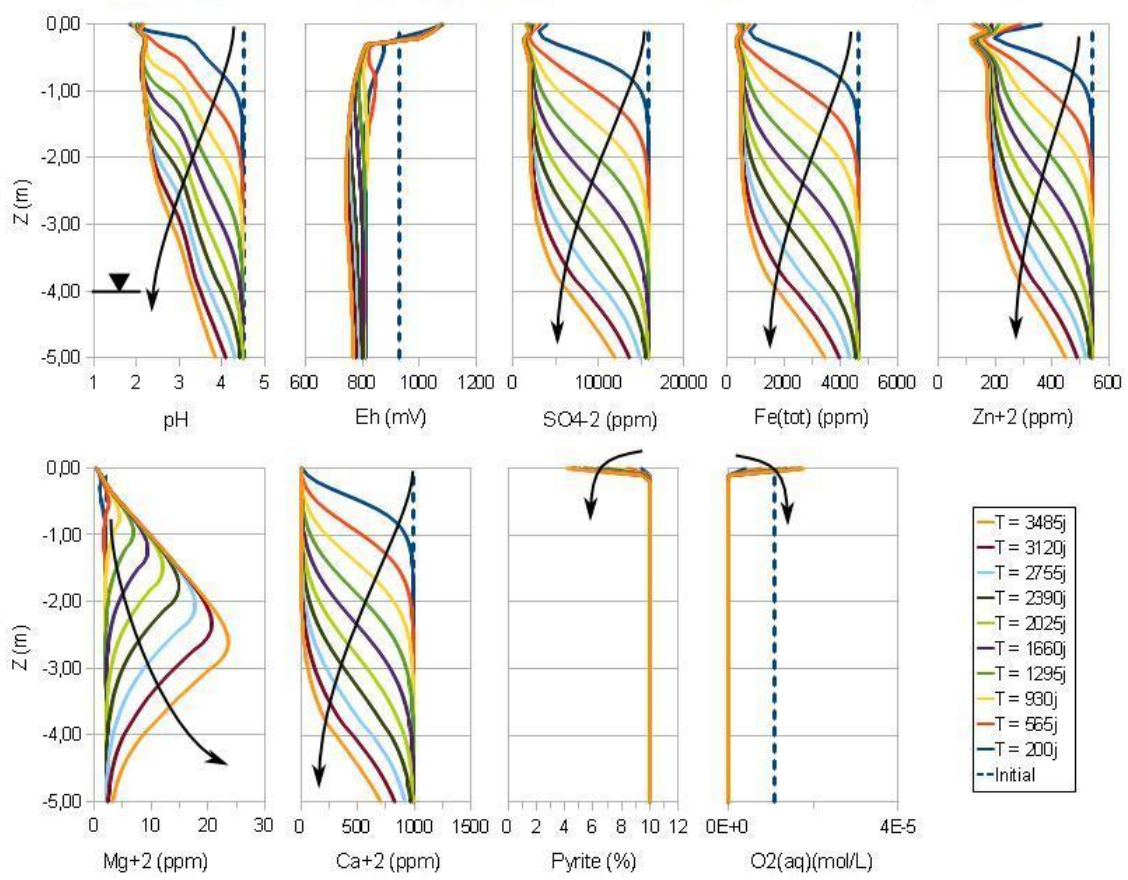


Figure 8.23: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire (Stériles 2 et résidus Goldex G2), avec une couche de rétention de 1 m d'épaisseur et une nappe à -4 m (Manitou)

On peut en déduire qu'une couverture bicouche à effet de barrière capillaire construite avec 1 mètre de résidus fins n'est pas suffisante pour prévenir la désaturation de la couche de rétention et le passage de l'oxygène.

Dans le cas des couvertures monocouches, le rehaussement du niveau de la nappe a permis d'améliorer l'efficacité de la couverture en y maintenant un degré de saturation plus élevé. On reprend ici le cas d'une couverture bicouche avec une couche de rétention de 1 mètre et la nappe à une profondeur de 1 m sous la surface des résidus. Le flux d'oxygène dans ce cas est de 557 g/m²/an, soit à peine moins qu'avec une nappe à -4 m, et la pression partielle d'oxygène moyenne est de 2,3%. Les résultats sont présentés à la figure 8.24.

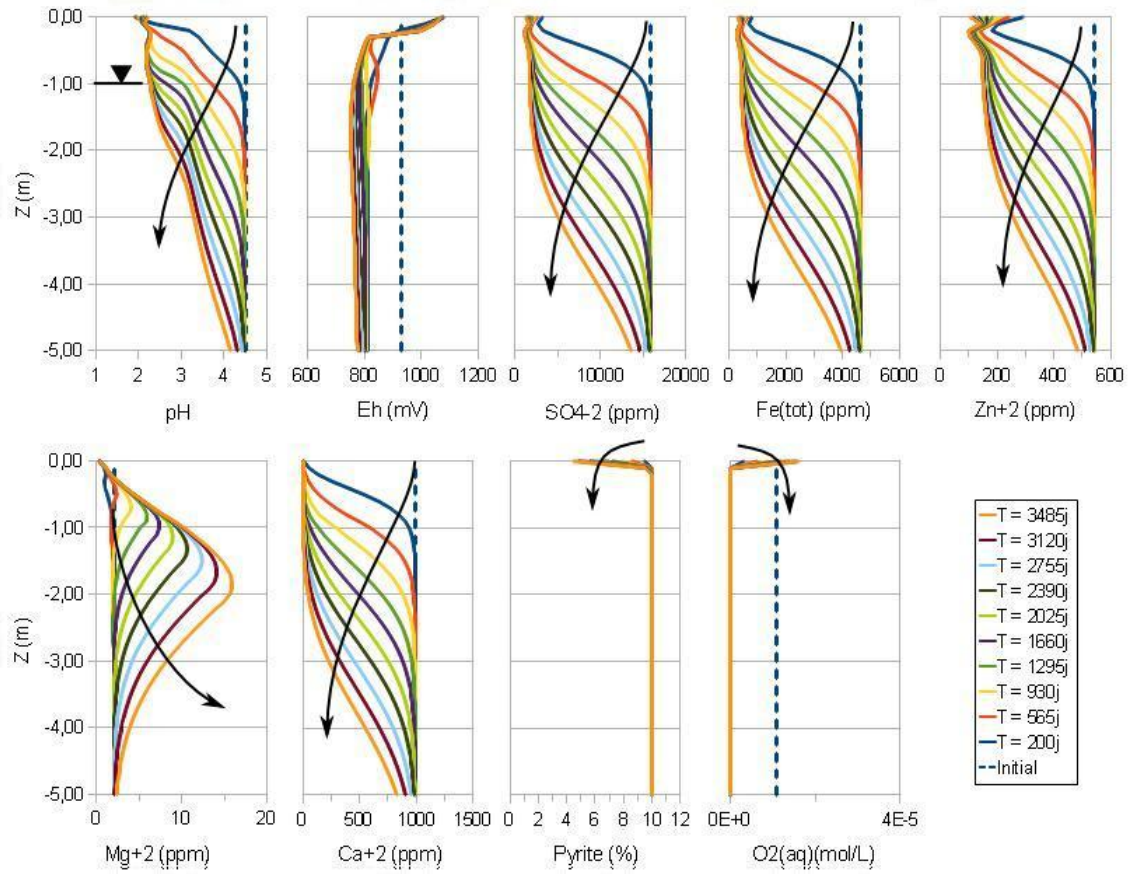


Figure 8.24: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire (Stériles 2 et résidus Goldex G2), avec une couche de rétention de 1 m d'épaisseur et une nappe à -1 m (Manitou)

On constate que la remontée de la nappe n'améliore pas vraiment la réponse des résidus réactifs et la génération de DMA semble toujours aussi importante. Le pH atteint des valeurs de 2,2 environ, les concentrations en sulfates dépassent 1800 ppm, les concentrations en fer et de zinc sont autour de 400 ppm et 150 ppm respectivement.

On en déduit que l'augmentation du niveau de la nappe ne permet pas de maintenir les résidus Goldex suffisamment saturés (sa désaturation est principalement due aux effets de l'évaporation ; voir section 7.5.3.2). Le bris capillaire de stériles 2, désaturés et très peu perméables dans ces conditions, ne permet pas la remontée d'eau depuis la nappe sous-jacente comme cela pouvait être le cas avec une couverture monocouche.

Afin de limiter les effets de l'évaporation, il est possible d'augmenter l'épaisseur de la couche de rétention d'eau (à 3 mètres ici ; mais il a été vu à la section 7.5.3.2 qu'une épaisseur de 2 m pouvait aussi être efficace). La nappe est située 4 mètres sous la surface des résidus. Le flux d'oxygène à travers la couverture est estimé au moyen de Vadose/W à 6,1 g/m²/an, soit une pression partielle d'oxygène au sommet des résidus de 0,03% environ. Les résultats des simulations avec Min3P sont présentés à la figure 8.25.

On observe que l'augmentation de l'épaisseur de la couche de rétention permet d'améliorer la qualité de l'eau interstitielle. Le pH est autour de 3,8, les concentrations de sulfates tendent vers des valeurs d'environ 30 ppm, les concentrations en fer et en zinc sont autour de 11 ppm et 3 ppm respectivement. Le pH présente également une tendance à la remontée après quelques années au sommet des résidus. La pyrite a été à peine oxydée, soit à peu près 0,1% au sommet des résidus.

La qualité de l'eau atteinte dans ce cas est donc proche de ce qui est obtenu avec une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur et une nappe à -1 m. Dans le cas où la nappe est profonde (ici 4 mètres sous la surface des résidus), il semble donc préférable d'employer une couverture bicouche à effet de barrière capillaire. La couche de rétention doit aussi être suffisamment épaisse pour permettre de la maintenir relativement saturée et ainsi limiter le passage de l'oxygène. Dans les conditions simulées ici, une couche de 1 m ne semble pas suffisante.

Néanmoins, si une couverture bicouche avec couche de rétention de 3 mètres permet d'améliorer la qualité de l'eau interstitielle, celle-ci reste contaminée au-dessus des critères usuels. La diminution du flux d'oxygène est donc, d'après les simulations, importantes, mais peut-être pas suffisante pour prévenir efficacement la génération de DMA.

Bussière et al. (2011) ont également observé dans leurs essais que malgré des flux d'oxygène parfois faibles (dans le cas d'une nappe élevée à -0,5 m par exemple), l'eau récupérée à la base des colonnes pouvait être contaminée.

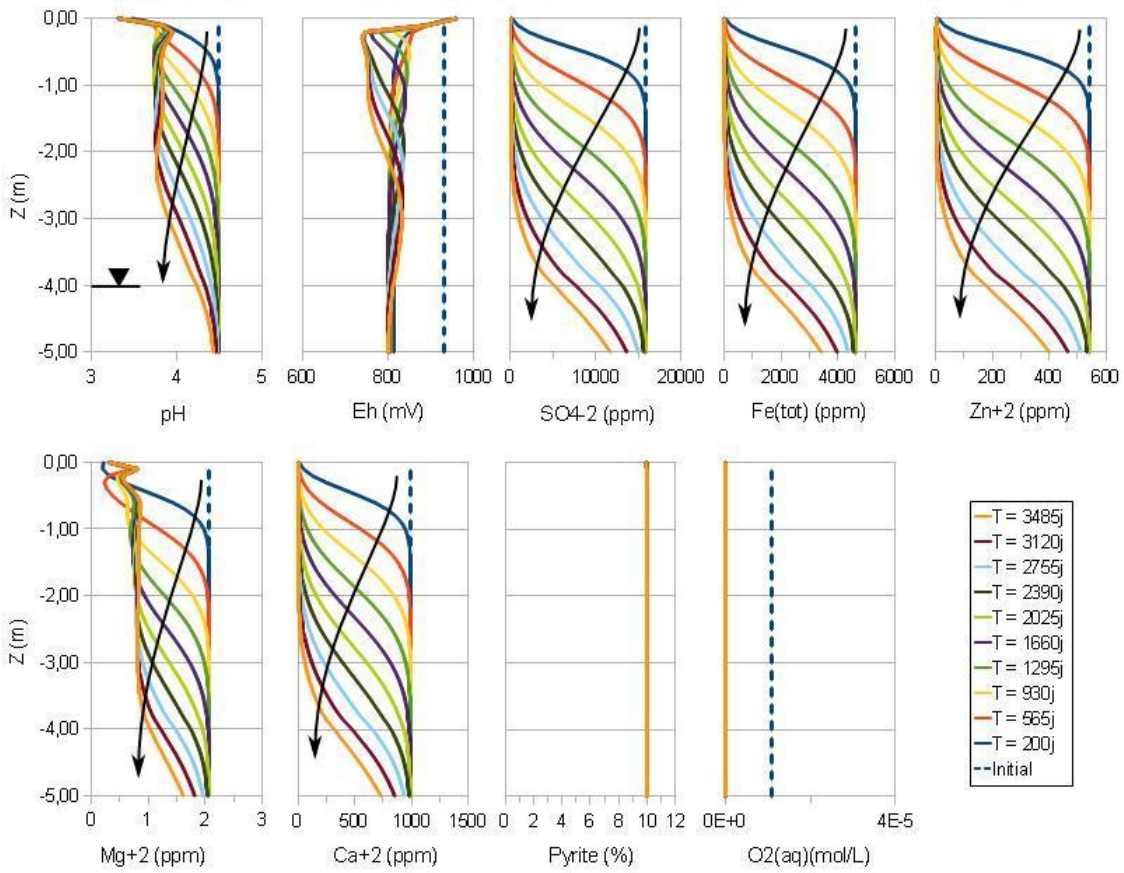


Figure 8.25: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire (Stériles 2 et résidus Goldex G2), avec une couche de rétention d'eau de 3 mètres d'épaisseur et une nappe à -4 m (Manitou)

8.5.2.6 Couverture tricouche à effets de barrière capillaire

L'utilisation d'une couverture à double effet de barrière capillaire (CEBC, tricouche) permet d'empêcher la désaturation de la couche de rétention de manière gravitaire et de limiter les effets de l'évaporation. On se propose de simuler ici le cas d'un recouvrement constitué de 1 m de stériles 1, surmontés de 1 m de résidus Goldex, eux-mêmes recouverts de 50 cm de stériles 1. Le flux d'oxygène estimé par Vadose/W est de l'ordre de 10,5 g/m²/an (ce qui, comme cela a été vu

plus haut, est proche des valeurs usuellement obtenues dans les essais de laboratoire ; voir aussi Bussière et al., 2011 et section 7.5.4.1), et la pression partielle moyenne d'oxygène au sommet des résidus est de 0,04%. Le flux d'infiltration net annuel est d'environ 420 mm/an pour moins de 200 mm/an pour les cas avec couverture monocouche et bicouche. Les résultats des simulations réalisées avec Min3P sont présentés à la figure 8.26.

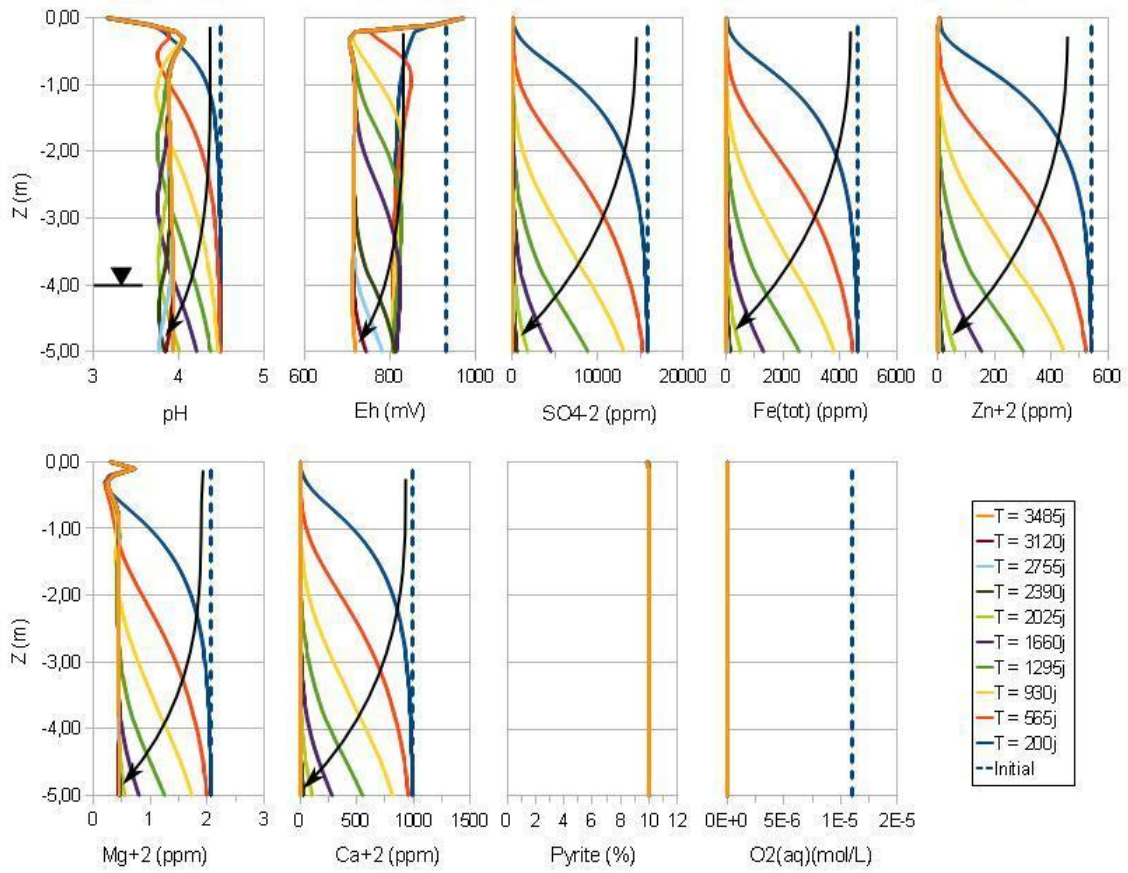


Figure 8.26: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour CEBC tricouche (Stériles 1), avec une nappe à -4 m (Manitou)

On constate tout d'abord que l'évolution de la chimie de l'eau interstitielle est plus rapide que dans les cas précédents, en raison du flux d'infiltration plus élevé. Ainsi, au bout de 6 ans, les concentrations et le pH semblent indépendants des conditions initiales sur plus de 5 mètres de profondeur (plus de variations). On observe par ailleurs que le pH dans le cas simulé ici tend vers une valeur de 4,0 environ, avec des concentrations de sulfates inférieures à 20 ppm, et des concentrations de fer et de zinc ne dépassant pas 7 ppm et 2 ppm respectivement. La pyrite a à

peine été oxydée et seuls 0,2% ont été consommés au sommet des résidus. Les concentrations de calcium et magnésium diminuent également et tendent vers 0,4 ppm et 0,9 ppm respectivement, ce qui indique que la dissolution des silicates est très faible (car le pH simulé est élevé).

Une couverture tricouche à double effets de barrière capillaire, faite de stériles 1 et de résidus Goldex, semble donc efficace pour limiter le flux d'oxygène. Mais les concentrations en sulfates et métaux restent assez élevées et le pH est inférieur à 4,0. Le pH estimé semble faible par rapport aux valeurs mesurées pour des essais en colonne avec des flux d'oxygène comparables (Bussière et al., 2011 ont par exemple obtenu des valeurs proches de 7,0 pour des flux d'oxygène inférieurs à 1 mol/m²/an). Le modèle parait donc surestimer la production d'acide. On note toutefois que l'eau d'infiltration a un pH plus faible que celle dans les essais de Bussière et al. (2011), qu'aucune couche d'amendement alcalin n'est présente et que l'anorthite, dont le pouvoir alcalin n'est peut-être pas négligeable, a été retirée des simulations.

Il a été observé dans le chapitre 7 que les stériles 1 étaient relativement fins et étaient moins efficaces comme bris capillaire que les stériles 2. Aussi simule-t-on ici le cas où le bris capillaire au bas de la couverture tricouche est constitué de stériles 2 (1 m d'épaisseur). Le flux d'oxygène estimé par Vadose/W est de l'ordre de 0,03 g/m²/an, ce qui représente une pression partielle moyenne d'oxygène au sommet des résidus de $1{,}25.10^{-6}$. Le flux d'infiltration net annuel est de 410 mm/an. Les résultats des simulations avec Min3P sont présentés à la figure 8.27.

On constate que la qualité de l'eau interstitielle est très nettement améliorée dans ce cas-ci. Ainsi, le pH tend vers des valeurs proches de 6,0 (pH de l'eau d'infiltration), et les concentrations de sulfates, fer et zinc sont, après quelques années, inférieures à 1 ppm, 1,1 ppm et 0,005 ppm respectivement. Les concentrations de Mg et Ca sont autour de 0,02 ppm et 0,9 ppm. Ces concentrations sont proches de celles de l'eau d'infiltration, indiquant que dans ces conditions, le milieu ne semble pas s'oxyder. On observe d'ailleurs que la pyrite n'a pas été oxydée au sommet des résidus (les simulations indiquent une perte de 0,0007% de la masse initiale de la pyrite en dix ans).

On peut déduire de ces observations que :

- les couvertures tricouches à double effet de barrière capillaire sont plus efficaces que les autres types de couvertures pour limiter le flux d'oxygène et réduire l'oxydation des minéraux sulfureux dans les résidus.

- les stériles 2, plus grossiers que les stériles 1, permettent de développer un bris capillaire plus marqué avec la couche de rétention de résidus Goldex et donc de limiter d'avantage le flux d'oxygène. Les résultats des simulations avec Min3P indiquent une nette amélioration de la qualité de l'eau interstitielle quand les stériles 2 sont utilisés comme bris capillaire dans la CEBC tricouche.

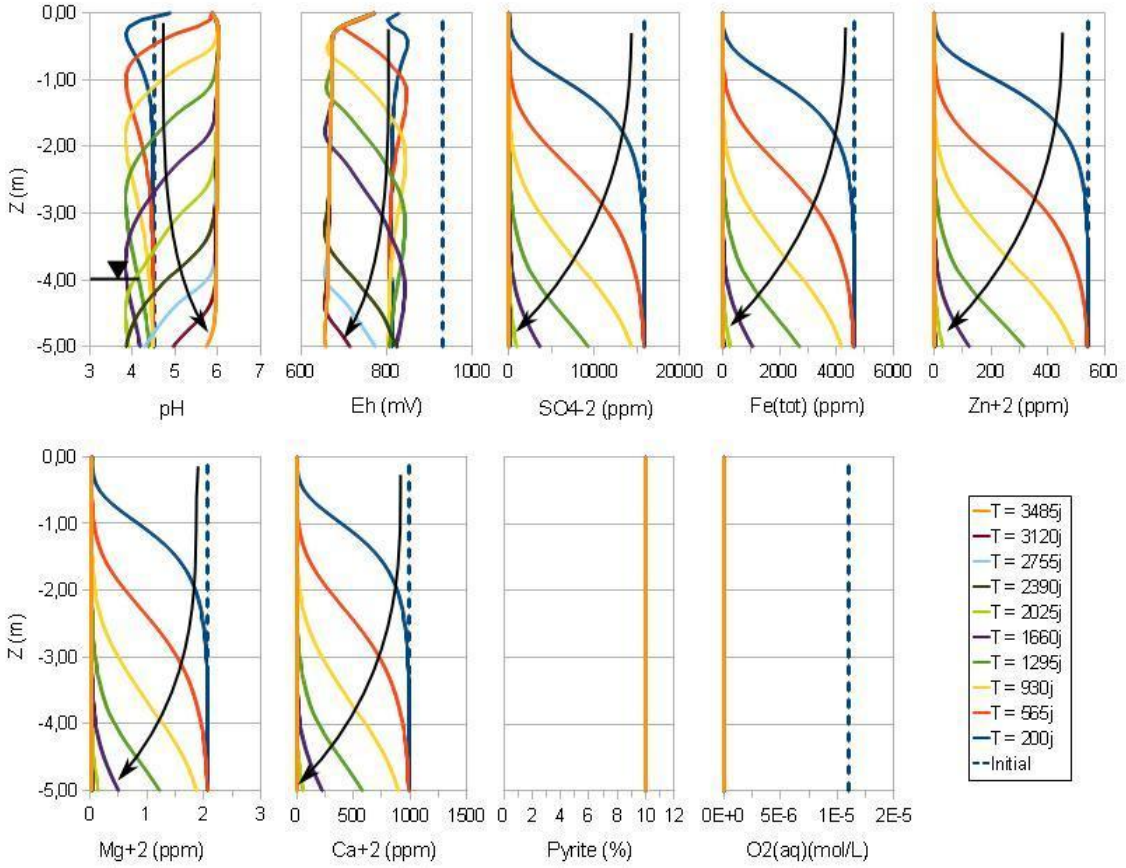


Figure 8.27: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour une CEBC tricouche (Stériles 2), avec une nappe à -4 m (Manitou)

8.5.2.7 Synthèse des résultats des simulations pour les résidus Manitou

Les résultats principaux des simulations du comportement géochimique des résidus Manitou en fonction des couvertures modélisées sont rassemblés au tableau 8.12. On constate d'abord qu'il y a un lien direct entre la concentration d'oxygène appliquée au sommet des modèles numériques et la qualité de l'eau interstitielle simulée : plus la concentration d'oxygène est élevée, plus le pH

est faible et plus les concentrations en sulfates, fer et zinc sont élevées. Le débit d'infiltration joue aussi sur le taux de remplacement de l'eau interstitielle initiale.

Tableau 8.12: Caractéristiques chimiques de l'eau interstitielle simulée pour les résidus Manitou selon la méthode de recouvrement employée, 1 mètre sous la surface des résidus après 10 ans (les pressions partielles d'O_2 appliquées au sommet des simulations sont également rappelées)

Cas simulés		pO_2 (%)	pH (-)	Sulfates (ppm)	Fe_{tot} (ppm)	Zn (ppm)
Monocouche 1 m,	nappe -1 m	0,03	3,8	60	20	4,0
	nappe -2 m	0,26	3,2	230	64	22
	nappe -4 m	2,30	2,2	2000	500	180
	nappe -6 m	5,05	1,9	3900	990	340
CEBC bicouche 1 m, stériles 2,	nappe -4 m	2,38	2,2	1900	490	170
	nappe -1 m	2,32	2,3	1700	430	150
3 m		0,03	3,8	32	12	3,0
CEBC tricouche, stériles 1, nappe -4 m		0,04	3,9	20	7,0	1,9
CEBC tricouche, stériles 2, nappe -4 m		$1{,}3.10^{-4}$	6,0	1,0	1,1	$8{,}4.10^{-3}$

On constate également au tableau 8.12 que dans presque tous les cas simulés (exceptée la CEBC tricouche avec stériles 2) les pH demeurent faibles (< 4,0) et les concentrations en métaux et sulfates élevées, malgré des flux d'oxygène parfois très faibles. La sous-estimation du pH observée dans certains cas (voir aussi comparaison avec la littérature plus bas) pourrait être liée à la non prise en compte de l'anorthite (retirée en totalité des simulations, mais qui joue néanmoins un certain rôle neutralisant dans la réalité). Rappelons également que les effets de l'oxydation indirecte par le Fe(III) ont été artificiellement inclus aux simulations, ce qui a tendance à augmenter la génération d'acide.

Si on se base sur les résultats de pH, seule la CEBC tricouche constituée de stériles 2 semble donc efficace pour prévenir la contamination des eaux d'exhaure. Si on se limite à comparer les concentrations en sulfates, fer et zinc, les CEBC tricouches semblent efficaces, ainsi que les couvertures monocouches lorsque la nappe est peu profonde (1 m sous la base de la couverture

ou moins) et bicouches lorsque la couche de rétention est suffisamment épaisse pour limiter l'évaporation et la désaturation de celle-ci (épaisseur de plus d'un mètre). Ces configurations correspondent à des flux d'oxygène inférieurs à environ 10 g/m²/an.

Dans les résultats de Bussière et al. (2011), on constate que, malgré la remontée de la nappe (ce qui devrait augmenter l'efficacité du recouvrement monocouche et s'approcher du cas simulé ici où la nappe est à -1 m), les pH mesurés après 17 cycles de lixiviation demeurent inférieurs à 4,5 en général. Dans ces essais encore, les concentrations de sulfates tendent vers 1800 ppm, celles de fer vers 10 ppm et celles de zinc vers 3 ppm. Ces résultats sont assez différents des résultats des simulations, ce qui pourrait être lié à de nombreux facteurs, comme le fait que les résidus employés ne sont pas les mêmes, que les conditions de laboratoire sont généralement plus favorables à la production de DMA, ainsi qu'aux simplifications et incertitudes des simulations.

Par ailleurs, dans des essais en cellule de terrain (Aubertin et al., 1999) les flux d'oxygène ont été estimés par les auteurs. Il est donc possible de comparer le comportement géochimique des résidus non pas par la configuration du recouvrement, mais en fonction des flux à leur sommet. Les flux estimés à travers les couvertures des cellules de terrain sont compris entre 6 et 144 g/m²/an, ce qui correspond par exemple aux flux estimés dans les simulations pour les couvertures monocouches de 1 m avec nappe à -2 m. Les mesures géochimiques effectuées dans chaque cellule donnent des résultats relativement proches les uns des autres. Les pH mesurés dans les cellules sont compris entre 5,5 et 7,0, les concentrations en sulfates sont d'environ 2000 ppm, les concentrations de fer entre 0,01 ppm et 400 ppm, mais généralement plutôt autour de 10 ppm, et les concentrations de zinc entre 2 ppm et 50 ppm mais habituellement proches de 10 ppm. En comparaison, les simulations sous-estiment le pH de deux unités et les concentrations de sulfates de presque 10 fois, mais les concentrations de fer et de zinc sont du même ordre de grandeur.

Les essais en colonne réalisés par Aachib (1997), avec différentes configurations de CEBC, donnent des concentrations en sulfates supérieures à 1000 ppm, des pH autour de 7, et des concentrations en fer et zinc proches de 1 ppm. Comme pour les résultats des essais en cellules de terrain, en comparaison des essais en colonnes, les pH et concentrations de sulfates simulées sont sous-estimés, mais les concentrations de fer et zinc sont similaires.

On constate donc ici que généralement, les concentrations en sulfates sont plus importantes dans les essais que dans les simulations. Ceci pourrait s'expliquer, en partie, par la contamination initiale des résidus. On observe ainsi dans les simulations des essais en cellules de terrain (Molson et al., 2008), que malgré l'installation d'une CEBC, l'amélioration de la qualité de l'eau interstitielle (diminution des concentrations de sulfates de 3000 à 1200 ppm par exemple) peut prendre jusqu'à 1200 jours. Ce qui confirme que la lixiviation de l'eau interstitielle initialement contaminée peut prendre un certain temps (plus de 10 ans dans certaines des simulations).

Rappelons enfin que, malgré le fait que les essais documentés présentés ici aient été réalisés sur des échantillons provenant du site Manitou, l'hétérogénéité des résidus (voir section 4.2.1) ne permet pas de comparer directement le comportement des matériaux vis-à-vis de l'oxydation.

8.5.2.8 Circulation des eaux de drainage à travers les résidus Goldex

Sur le site Manitou, en raison des variations topographiques entre le parc principal et les zones alentours, il est possible qu'une partie de l'eau provenant des parcs A et/ou B vienne à traverser les résidus Goldex par endroits (les écoulements à l'échelle du site n'ont pas été étudiés dans le cadre de ce projet). Aussi propose-t-on de simuler ce qu'il pourrait advenir de l'eau interstitielle contaminée lorsqu'elle circulerait à travers les résidus Goldex (lesquels, tel qu'observé, sont alcalins, et contiennent environ 5% de calcite et 2% de dolomite).

Pour ce faire, on considère ici un modèle numérique constitué de 1 mètre cube de résidus Goldex au travers duquel transitent diverses eaux acides à un flux constant de $6{,}34.10^{-9}$ m/s (ce qui correspond à un flux d'infiltration annuel net de 200 mm/an environ, soit ce qui a été estimé dans les simulations des conditions de terrain). Pour évaluer l'effet de la chimie de l'eau d'infiltration, on reprend l'eau produite dans les simulations sans couverture et avec couverture monocouche de 1 mètre d'épaisseur et une nappe située à -6 m, -4 m, -2 m et -1 m sous la surface des résidus. Les caractéristiques principales de ces eaux de drainage sont présentées au tableau 8.12. Le pH initial de l'eau imposé dans les résidus Goldex est de 6,0.

On compare à la figure 8.28 l'évolution du pH au bas du modèle de 1 m^3 de résidus Goldex en fonction du temps et de l'eau d'infiltration, pendant 1000 jours. Les profils de la teneur en calcite et en dolomite dans le modèle après 1000 jours de simulation sont présentés à la figure 8.29.

On constate à la figure 8.28 que les carbonates contenus dans les résidus Goldex permettent de faire remonter le pH de l'eau infiltrée à des valeurs supérieures à 9,0, malgré des pH initiaux aussi faibles que 1,1. Des essais similaires réalisés à l'URSTM (colonne de 40 cm de résidus Goldex avec eau d'infiltration acide et contaminée) ont montré que le pH à la sortie était de l'ordre de 8,0.

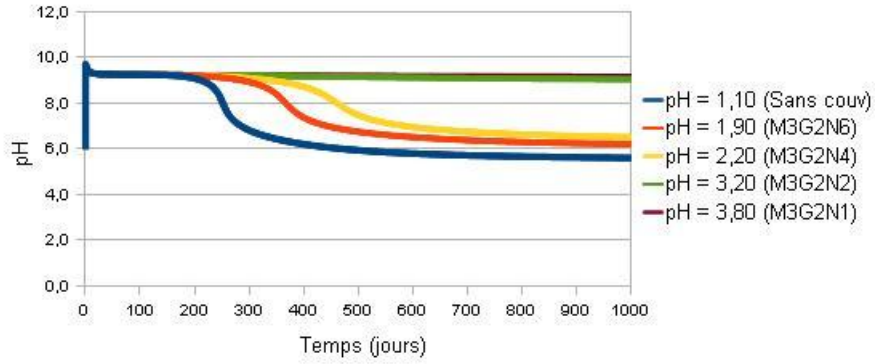


Figure 8.28: Evolution du pH simulé en fonction du temps, à la base d'un modèle numérique de 1 m^3 de résidus Goldex à travers lequel on fait passer une eau de diverses qualités à un débit de $6.34.10^{-9}$ m/s pendant 1000 jours

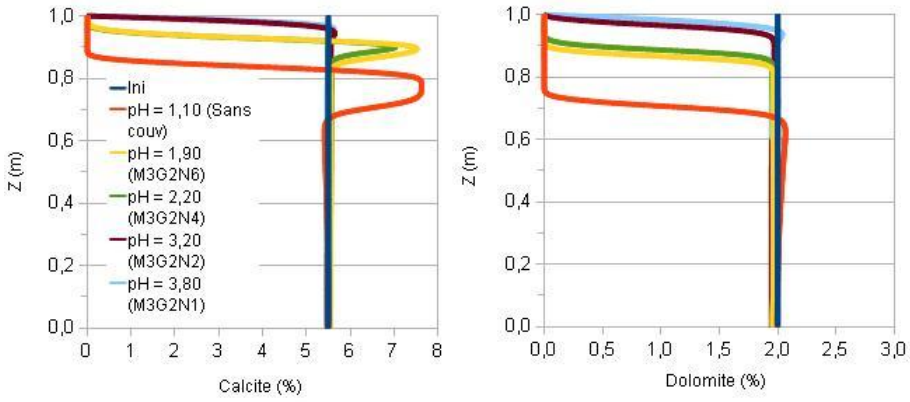


Figure 8.29: Simulation du profil de la teneur en calcite et en dolomite (en pourcentage massique) dans un modèle numérique de 1 m^3 de résidus Goldex à travers lequel on fait passer un eau de diverses qualités à un débit de $6.34.10^{-9}$ m/s après 1000 jours de simulation

On observe également que pour quelques cas, le pH se maintient durant les 1000 jours de la simulation au-dessus de 9,0. Dans d'autres, il diminue après quelques jours (environ 400 jours pour un pH de l'eau d'infiltration de 2,20, 320 jours pour un pH de 1,90 et 230 jours pour un pH de 1,10).

De même, on constate, sur les profils de calcite et dolomite de la figure 8.29, que plus le pH d'entrée est faible, plus l'épuisement des carbonates est important. Avec un pH de 1,1, la dolomite est épuisée sur 30 cm environ et la calcite sur 15 cm en 1000 jours, alors qu'avec un pH de 3,8, l'épuisement de la dolomite et de la calcite s'est produit sur moins de 30 cm et 10 cm respectivement en 1000 jours.

Ces résultats montrent que la recirculation d'une eau acide à travers les résidus Goldex permettrait de faire remonter son pH (et par conséquent faire précipiter un certain nombre de métaux en solution). Par contre, le pouvoir tampon des résidus Goldex est limité est après un certain temps, ils ne contiendraient plus suffisamment de carbonates pour neutraliser l'acide des eaux de percolations. Il serait possible de quantifier le pouvoir tampon des résidus Goldex et le temps requis avant l'épuisement des carbonates suite à une calibration des modèles numériques basés sur des expériences spécifiques sur cette question.

8.5.3 Résultats pour le site Selbaie

8.5.3.1 Simulations sans couverture et conditions initiales

On applique la même méthode que précédemment à l'étude numérique du comportement géochimique des résidus Selbaie et de leur couverture de moraine. Pour analyser le comportement des résidus dans des conditions de terrains, la première étape consiste à déterminer la chimie de l'eau interstitielle initiale. Pour ce faire, on réalise un modèle sans couverture, simulant ainsi le comportement du parc exposé à l'atmosphère (concentration d'oxygène au sommet des résidus de 20,9%). La nappe est fixée à -4 m, et l'eau interstitielle initiale a les propriétés de celle de la grande colonne SNOG (voir section 4.1.6.3). On présente les résultats des simulations pour 10 années à la figure 8.30.

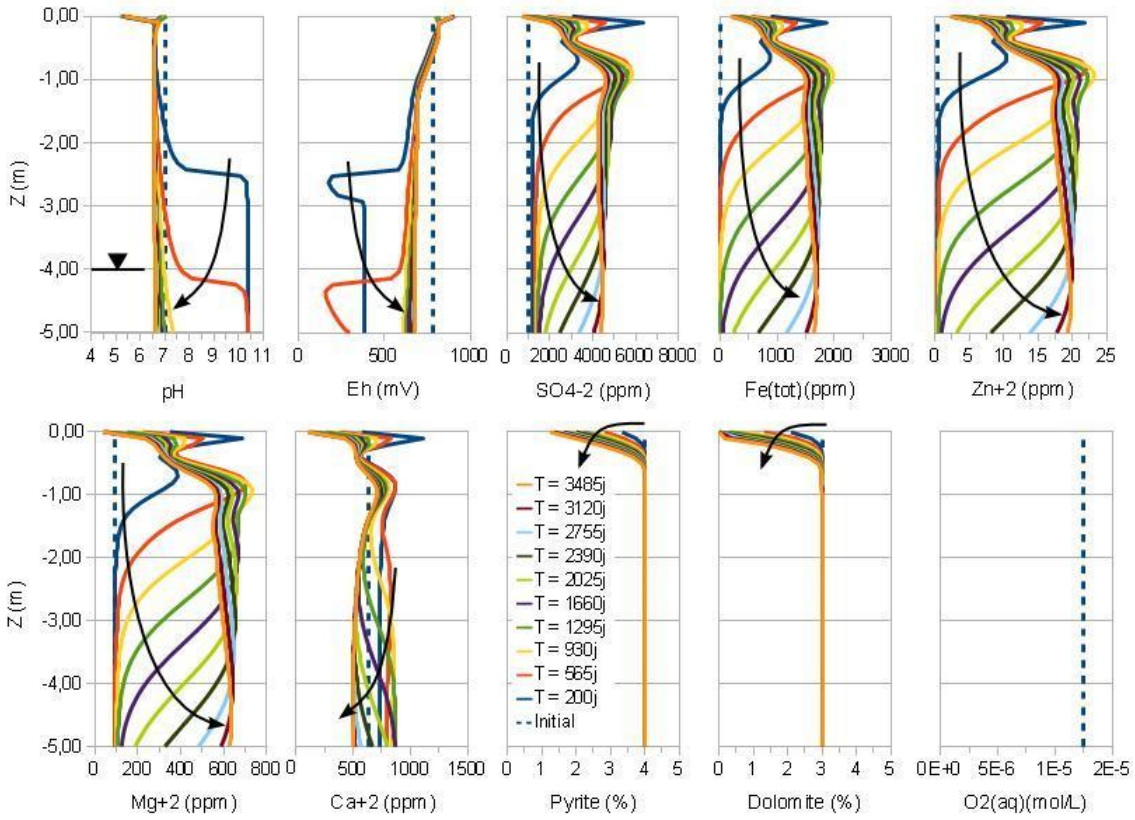


Figure 8.30: Simulation des profils simulés de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments en l'absence de recouvrement, pour une nappe située 4 m sous la surface des résidus Selbaie

On constate sur la figure 8.30 que les résidus exposés s'oxydent de façon importante. Après une dizaine d'année de simulation, les concentrations de sulfates à la base des modèles numériques dépassent les 4000 ppm, celles de fer sont supérieures à 1500 ppm et les concentrations de Zn sont autour de 20 ppm. Le pH demeure autour de 7 ce qui est en accord avec les mesures de laboratoire. On note cependant qu'au sommet du profil, après plusieurs années, le pH commence à diminuer. Au bout de 10 ans, il est d'environ 5,4 sur les 10 premiers centimètres. On constate aussi, sur les profils de pyrite et de dolomite, que cette dernière s'épuise plus rapidement que la pyrite. Au sommet des résidus, la pyrite continue donc de s'oxyder et de générer de l'acide alors qu'il n'y a plus de dolomite pour neutraliser l'acidité.

Les concentrations en Mg et en Ca sont également élevées (autour de 600 ppm et de 500 ppm respectivement après 10 ans) et sont directement liée à la dissolution de la dolomite. On note que

l'anorthite se dissout peu ici, contrairement au cas Manitou, en raison du pH qui demeure assez élevé. On peut s'attendre à ce qu'elle joue le rôle de neutralisant une fois la dolomite épuisée.

On utilise la composition chimique de l'eau estimée par ce modèle après 10 ans, 2 m sous la surface des résidus réactifs, comme condition initiale aux modèles étudiés par la suite.

8.5.3.2 Effets de la dolomite et de son épuisement

On simule le cas d'une couverture monocouche constituée de 1 mètre de moraine. Le flux d'oxygène à l'interface résidus-couverture est estimé par Vadose/W à environ 690 g/m²/an, soit une pression partielle moyenne de 5,76%. Les résultats des simulations sur 10 ans sont présentés à la figure 8.31.

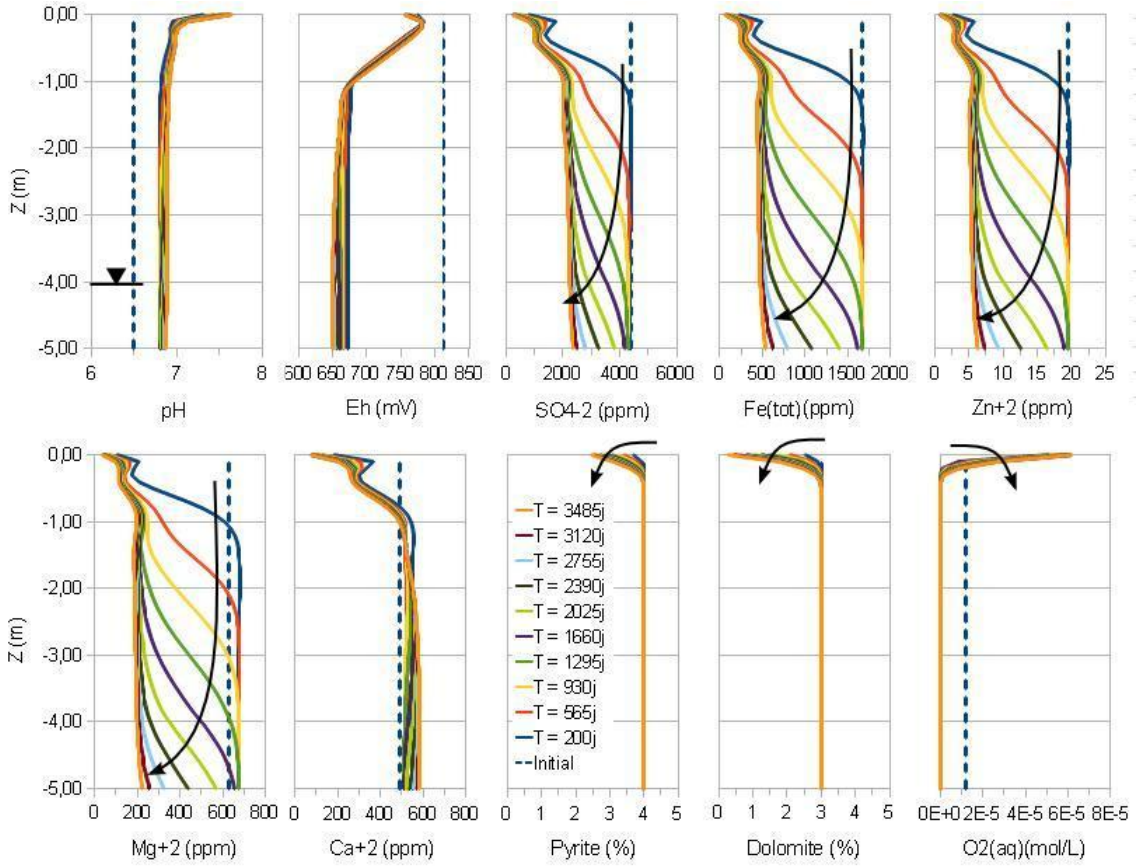


Figure 8.31: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 mètre d'épaisseur avec une nappe à -4 m (Selbaie)

On constate sur celle-ci que l'installation d'une couverture monocouche dans ces conditions permet d'améliorer sensiblement la qualité de l'eau interstitielle. Les concentrations en sulfates sont réduites de moitié environ, et celles de fer et de zinc sont presque divisées par trois et quatre respectivement. Le pH reste au-dessus de 6,8 sur la plus grande partie du profil avec des valeurs autour de 7,5 au sommet des résidus. Au bout de quelques années, on constate toutefois que le pH peut diminuer jusqu'à 5,5 environ sur les quelques centimètres supérieurs des résidus. Comme mentionné, la neutralisation est essentiellement due à la dissolution de la dolomite. Or on constate sur les profils de pyrite et de dolomite que cette dernière semble s'épuiser plus rapidement que la première, ce qui laisse penser qu'à terme, les résidus devraient devenir de plus en plus générateurs d'acide (ce qui a été constaté sur le site).

Ces observations sont en accord avec l'étude de laboratoire, mais elles ne semblent pas correspondre vraiment à ce que l'on observe à certains endroits sur le terrain. Le parc à résidus des mines Selbaie est globalement générateur d'acide, comme le montre la qualité des eaux drainées sur le site qui doivent être traitées sur place. Comme les résidus ne semblent cependant pas générer d'acide même au bout de 10 ans dans les simulations, on peut penser que les matériaux analysés ne sont pas représentatifs du comportement *in situ*, du moins à certains endroits du parc.

Afin de pousser plus loin l'évaluation du comportement à long terme, on réalise une autre simulation pour une durée étendue de 20 ans. Les résultats sont présentés à la figure 8.32.

On constate sur la figure 8.32 que les quantités de sulfates, fer et zinc produites après 20 ans sont un peu plus faibles qu'après 10 ans. On observe également qu'à partir de la 6^{e} ou 8^{e} année, le pH au sommet des résidus diminue sous 5,5. La dolomite est épuisée sur une vingtaine de centimètres au sommet du profil, alors qu'il reste encore de la pyrite en quantité (près de la moitié des teneurs initiales, soit autour de 2%). Ce modèle indique que la dolomite serait progressivement dissoute et qu'après un certains temps, elle disparaîtra du site.

Le temps que peut prendre l'épuisement de la dolomite est difficile à évaluer car il dépend de nombreux facteurs (qui sont variables sur le site, dont la teneur en pyrite). En 20 ans, la dolomite n'a été épuisée que sur quelques dizaines de centimètres, mais il reste encore plusieurs mètres de résidus. Sur le terrain, aucune mesure effectuée n'a montré de quantité importante de dolomite. Si on ajoute à cela le fait que le site génère effectivement de l'acide, on peut supposer que la

dolomite *in situ* est épuisée en certains endroits du site. Gardons également à l'esprit que les résidus étudiés au laboratoire ont été prélevés dans une zone particulièrement humide du parc, et donc préservée en partie de l'oxydation. Dans les zones où la nappe est plus profonde (jusqu'à 15 mètres sous la surface), on peut s'attendre à ce qu'une grande partie de la dolomite ait déjà été dissoute (du moins près de la surface).

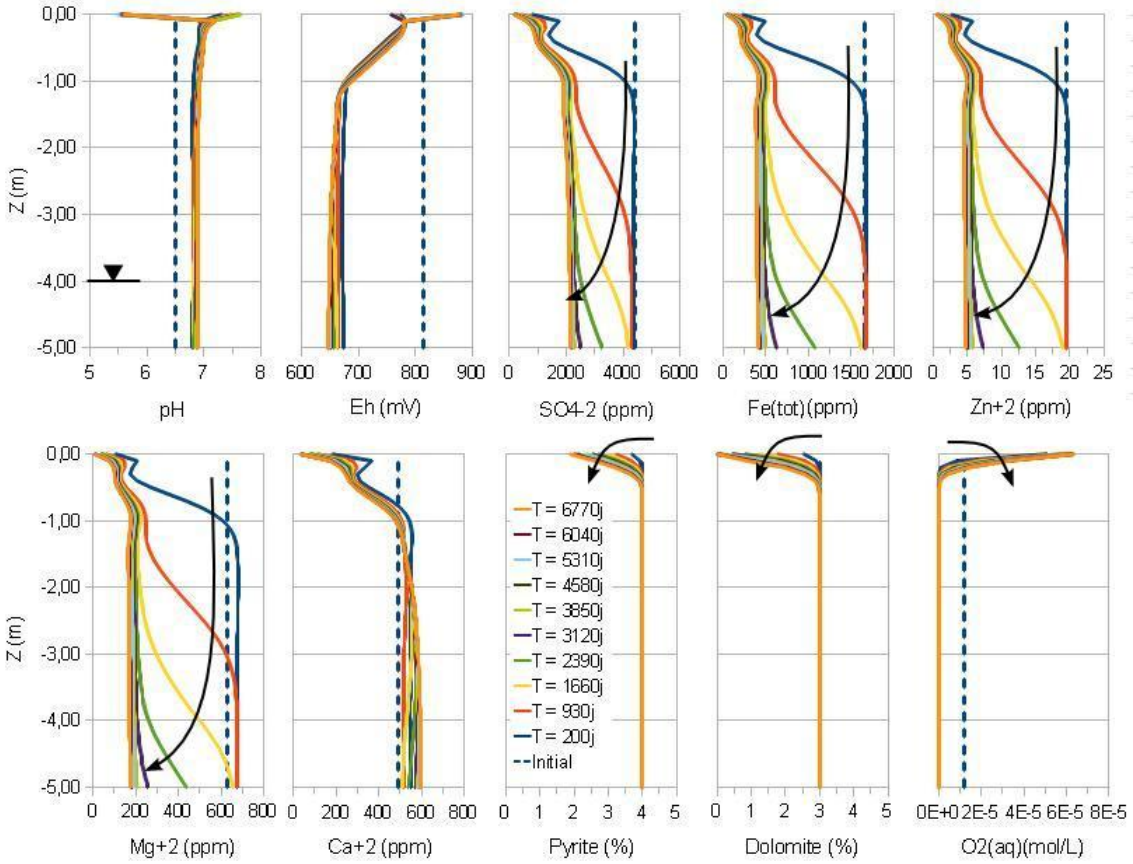


Figure 8.32: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur avec une nappe à -4 m, sur une durée de 20 ans (Selbaie)

Pour compléter l'étude du comportement des résidus Selbaie et de leur couverture à long terme, on fera par la suite l'hypothèse qu'ils ne contiennent plus de dolomite. Puisque l'effet de l'anorthite semble surestimé dans le code Min3P (voir section 8.5.2.2), elle sera également retirée des simulations. Les résultats des simulations pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur avec une nappe à -4 m (sans dolomite ni anorthite) sont présentés à la figure 8.33.

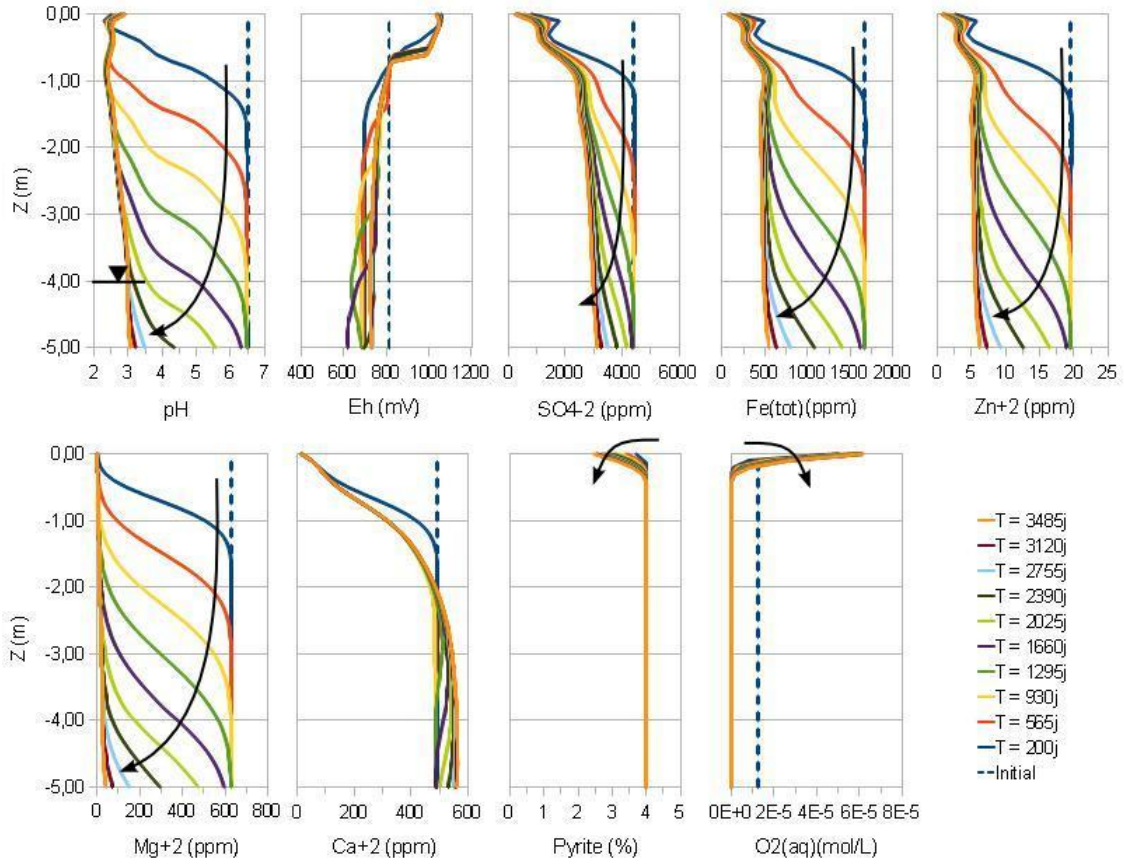


Figure 8.33: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 mètre d'épaisseur avec une nappe à -4 m, résidus SNO sans dolomite ni anorthite (Selbaie)

On constate à la figure 8.33 qu'en l'absence de dolomite et d'anorthite (cas « pessimiste ») les résidus sont clairement générateurs d'acide. Après 10 ans, le pH au sommet des résidus est de l'ordre de 2,4. Les concentrations de sulfates (3000 ppm), fer (500 ppm) et zinc (5 ppm) sont similaires aux cas avec anorthite et dolomite. Les concentrations de Mg diminuent (car il n'y a plus de dolomite). Les concentrations en Ca restent relativement élevées (autour de 500 ppm sous -2 m) mais elles diminuent dans la partie supérieure du profil. Le calcium provient essentiellement de la dissolution du gypse dans les résidus.

Ces résultats indiquent qu'une couverture monocouche de moraine de 1 mètre d'épaisseur ne suffirait pas à prévenir la génération de DMA et la contamination des eaux interstitielles.

8.5.3.3 Effet de la position de la nappe

La position de la nappe influe sur le degré de saturation d'une couverture monocouche et donc sur son efficacité à limiter le flux d'oxygène jusqu'aux résidus réactifs. On simule ici le cas d'un recouvrement monocouche de 1 mètre d'épaisseur avec une nappe située 2 mètres sous la surface des résidus. Les simulations au moyen de Vadose/W ont permis d'estimer le flux d'oxygène traversant la couverture à 424 g/m²/an, soit encore une pression partielle moyenne d'oxygène de 3,53% à la surface des résidus. Les résultats des simulations avec Min3P sont présentés à la figure 8.34.

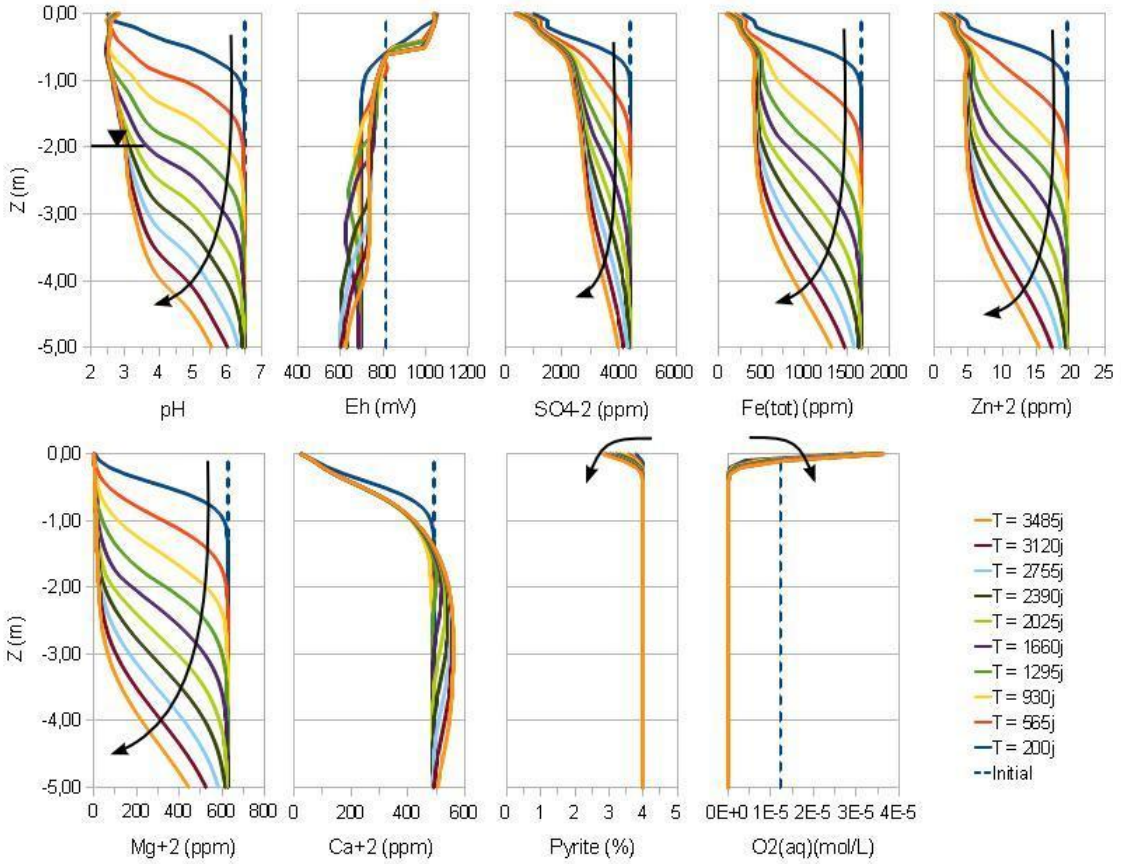


Figure 8.34: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 mètre d'épaisseur avec une nappe à -2 m (Selbaie)

On constate que la remontée de la nappe n'améliore que marginalement la qualité de l'eau interstitielle par rapport au cas où la nappe est à -4 m. Le pH est inférieur à 3,3 sur les 3 mètres

supérieurs et peut être aussi bas que 2,5 par endroit. Les concentrations de sulfates à 1 mètre sous la surface sont de 2300 ppm environ, celles de fer et de zinc de 410 ppm et 5 ppm respectivement. Au sommet des résidus, un peu plus de 1% de pyrite a été oxydée.

Une différence notable avec le cas précédent est la vitesse d'évolution de la qualité de l'eau interstitielle, en raison d'un flux d'infiltration net annuel plus faible (145 mm/an) que dans le cas d'une nappe à -4 m (225 mm/an).

On simule également le cas où la nappe se situerait d'avantage en profondeur, soit 6 mètres sous la surface des résidus. Dans ce cas, le flux d'oxygène simulé à travers la couverture est de 800 g/m²/an, soit une pression partielle d'oxygène moyenne de 6,7% environ.

Les résultats des simulations sont présentés à la figure 8.35.

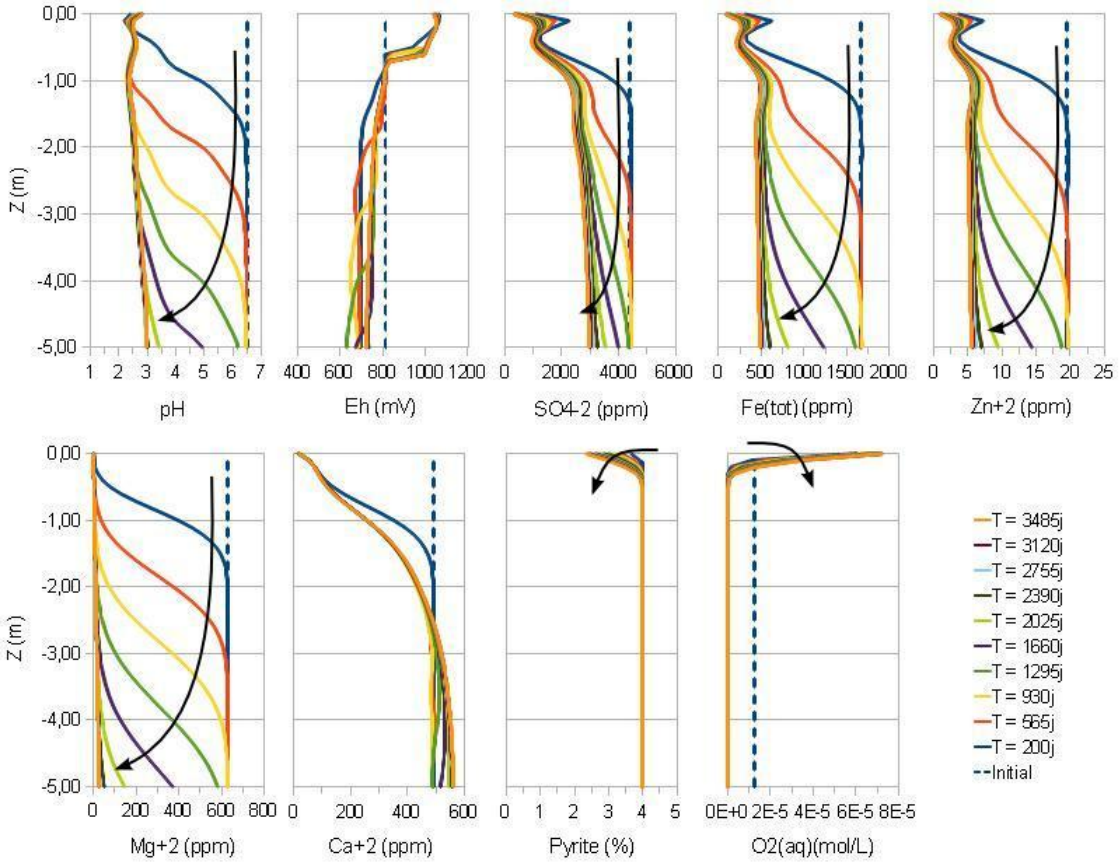


Figure 8.35: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur avec une nappe à -6 m (Selbaie)

On y observe qu'après 10 ans, le pH est inférieur à 3 sur les 5 mètres supérieurs des modèles. Les concentrations en sulfates, plus faibles au sommet, tendent vers 3000 ppm en profondeur (sous environ -1 m). Les concentrations de Fe et Zn sont autour de 500 ppm et 6 ppm respectivement. Les teneurs en métaux dissouts sont comparables aux cas avec nappe à -2 m et -4 m. La diminution de la teneur en pyrite au sommet des résidus est d'un peu moins de 2% après 10 ans.

8.5.3.4 Couverture bicouche à effet de barrière capillaire

On simule ici le cas d'un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire, composé de 1 mètre de stériles 2 sous 1 mètre de moraine. On considère une nappe située à 4 mètres sous la surface des résidus. Le flux d'oxygène estimé est de l'ordre de 530 g/m²/an, et la pression partielle d'oxygène moyenne au sommet des résidus est de 4,4%. Les résultats des simulations géochimiques sur 10 ans sont présentés à la figure 8.36.

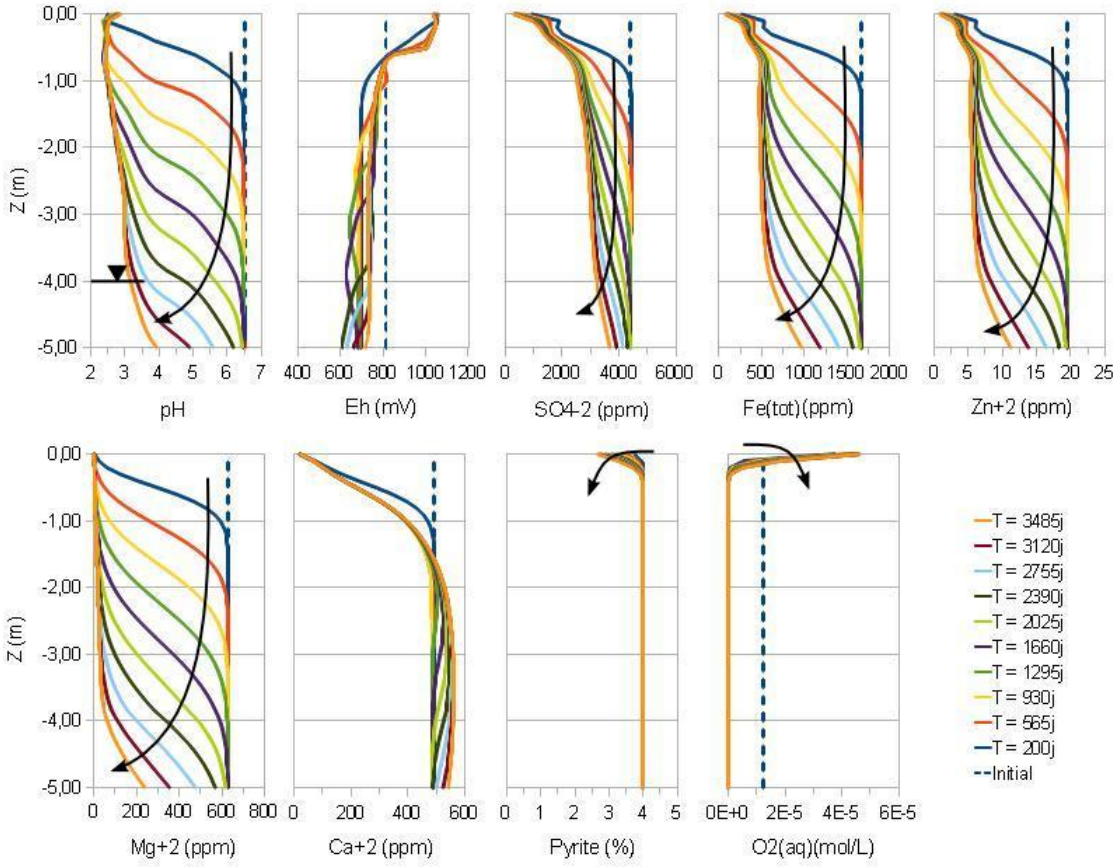


Figure 8.36: Simulation des profils de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire, avec une couche de rétention de 1 mètre d'épaisseur et une nappe située à -4 m (Selbaie)

On constate qu'un recouvrement bicouche avec une couche de rétention de 1 m d'épaisseur n'est pas efficace pour empêcher l'oxydation de la pyrite et la génération de DMA. Le pH est inférieur à 3,0 sur la majeure partie du profil et atteint des valeurs autour de 2,5 au sommet des résidus. Les concentrations en sulfates sont de l'ordre de 2500 ppm, celles de fer et de zinc de 500 ppm et 5 ppm respectivement. La quantité de pyrite oxydée après 10 ans est supérieure à 1%.

On se trouve ici dans un cas intermédiaire entre le cas d'une couverture monocouche de 1 m d'épaisseur avec une nappe à -2 m et une nappe à -4 m. La désaturation de la couche de rétention est principalement due aux effets de l'évaporation. Afin de remédier partiellement à ce problème, on peut augmenter l'épaisseur de moraine. On simule donc un cas où celle-ci est épaisse de 3 mètres ; le flux d'oxygène au travers est de 34 g/m²/an et la pression partielle au sommet des résidus est estimée à 0,3%. Les résultats des calculs sont présentés à la figure 8.37.

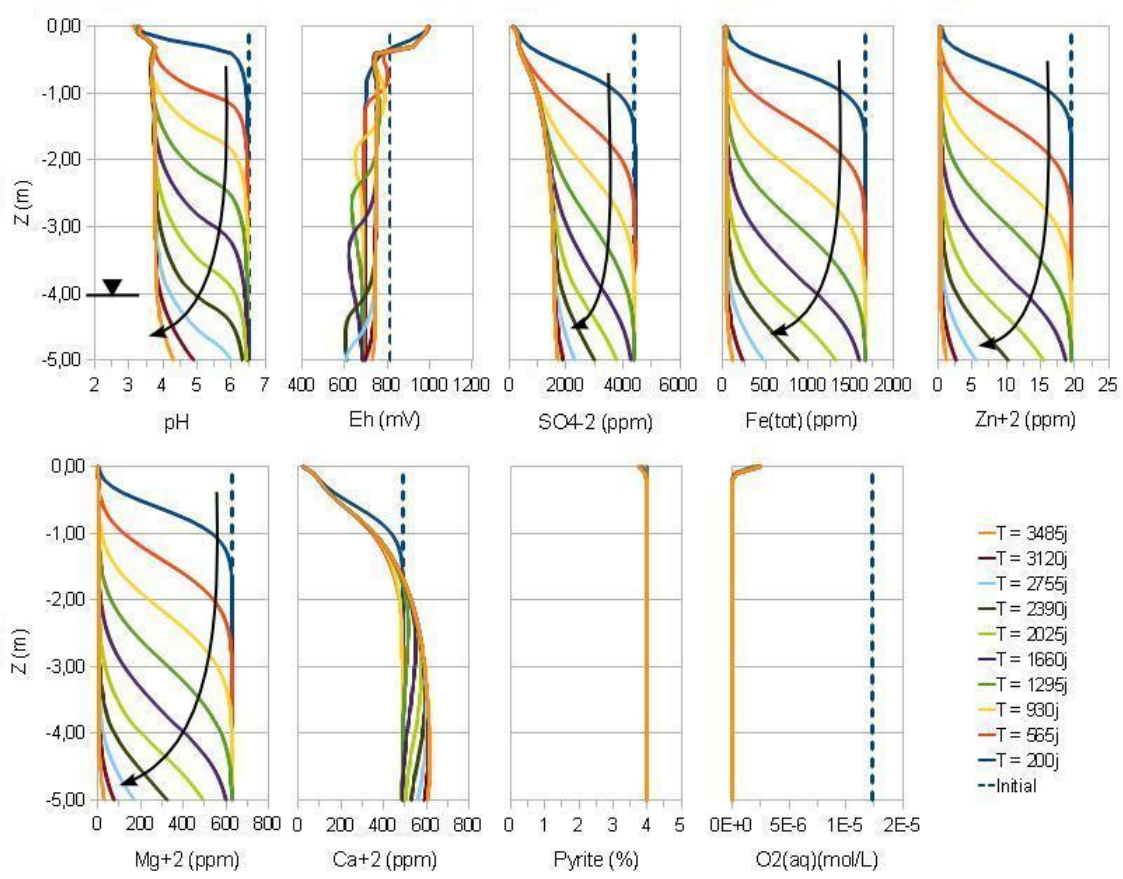


Figure 8.37: Simulation des profils simulés de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire, avec une couche de rétention de 3 mètres d'épaisseur et une nappe située à -4 m (Selbaie)

L'utilisation d'une couche de rétention de 3 mètres permet de limiter le flux d'oxygène par rapport à d'autres configuration (il est 20 fois inférieur au cas avec une couverture monocouche et une nappe à -4 m). On constate ainsi à la figure 8.37 que le pH de l'eau interstitielle dans les résidus tend vers des valeurs proches de 3,8. Les concentrations de sulfates sont inférieures à 1200 ppm, les concentrations de fer sont autour de 40 ppm et celles de zinc ne dépassent pas les 0,4 ppm. La diminution de la teneur en pyrite est de moins de 0,3% ce qui indique qu'elle a été très peu oxydée. Les concentrations élevées en sulfates sont donc essentiellement dues à la dissolution du gypse (comme l'indique d'ailleurs les concentrations en calcium autour de 500 ppm). Elles devraient donc diminuer lorsque celui-ci aura été épuisé.

On en déduit que l'utilisation d'un recouvrement bicouche avec une couche de rétention de 3 mètres d'épaisseur permettrait de limiter le flux d'oxygène et d'améliorer un peu la qualité de l'eau interstitielle par rapport aux cas monocouches, mais peut-être pas suffisamment. Les concentrations en métaux sont relativement faibles, mais le pH reste inférieur à 4,0, ce qui suffit à dissoudre le gypse et libérer d'importantes quantités de sulfates.

8.5.3.5 Couverture tricouche à effets de barrière capillaire

Afin de diminuer encore les effets de l'évaporation, on se propose d'analyser le comportement des résidus avec une couverture tricouche à double effet de barrière capillaire, à savoir une couche de 1 mètre de stériles 2 surmontée d'une couche de moraine de 1 mètre, elle-même recouverte de 50 cm de stériles 1. Les simulations avec Vadose/W ont permis de constater qu'une telle couverture permettait de maintenir la couche de rétention à des degrés de saturation plus élevés que dans les autres configurations, et de limiter le flux d'oxygène à 2 g/m²/an. La pression partielle d'oxygène imposée au sommet des simulations avec Min3P est de $1{,}75.10^{-4}$.

Les résultats des calculs sont présentés à la figure 8.38. On constate qu'avec une couverture tricouche, le pH de l'eau dans les résidus est d'environ 5,2 à des profondeurs supérieures à 1 m. Les concentrations de sulfates restent relativement élevées (> 1000 ppm) sur la plus grande partie du profil mais peuvent atteindre des valeurs aussi faibles que 200 ppm au sommet des résidus. Les concentrations en fer et en zinc tendent vers des valeurs de 3 ppm et 0,01 ppm environ.

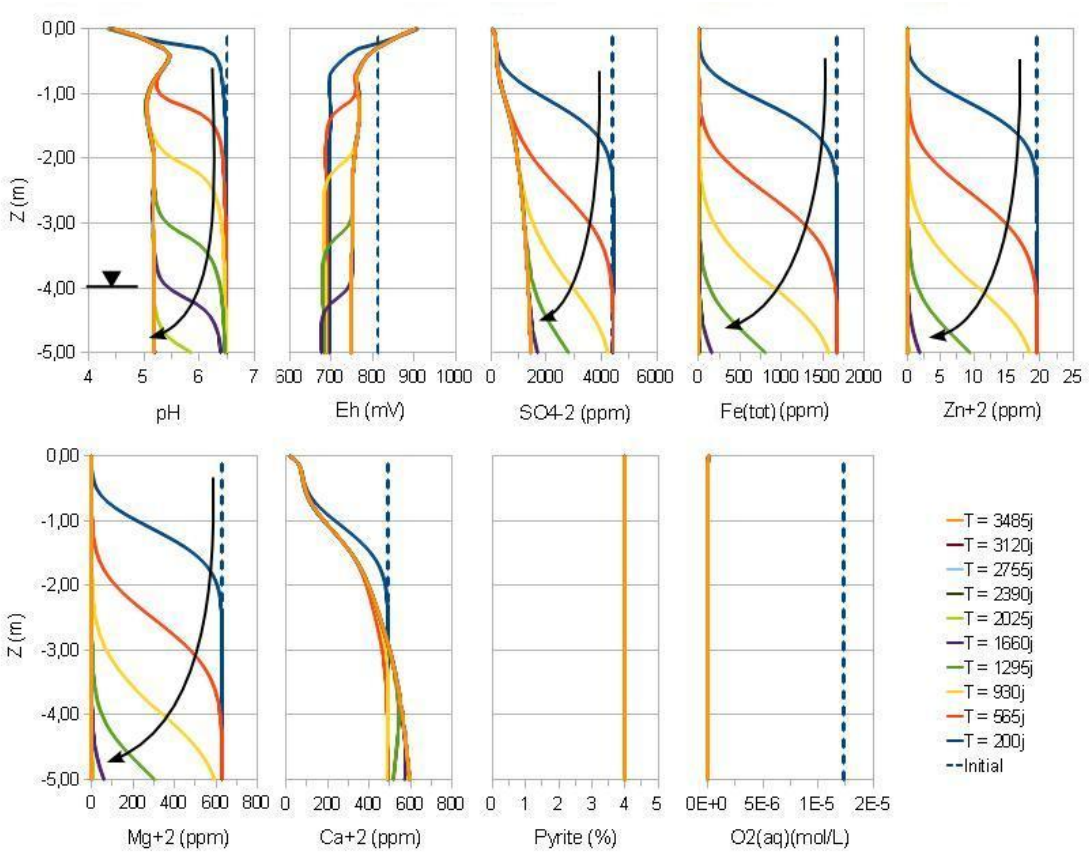


Figure 8.38: Simulation des profils simulés de pH, Eh, oxygène dissout et concentrations de certains éléments pour CEBC tricouche avec une nappe située à -4 m (Selbaie)

Les concentrations élevées en calcium (>200 ppm) indiquent que les sulfates proviennent essentiellement de la dissolution du gypse. Les faibles concentrations de calcium et de sulfates au sommet des résidus indiquent que celui-ci commence à s'épuiser ou à se stabiliser ce qui laisse penser que les concentrations de sulfates devraient diminuer avec le temps. Enfin, on observe sur le profil de la teneur en pyrite qu'elle n'a presque pas été oxydée au cours des 10 années de simulation (moins de 0,03%).

8.5.3.6 Synthèse des résultats de simulation des résidus Selbaie en conditions de terrain

Les résultats principaux des simulations du comportement des résidus Selbaie en fonction des couvertures modélisées sont rassemblés au tableau 8.13. Comme pour les simulations avec les résidus Manitou, on constate d'abord ici qu'il y a un lien direct entre la concentration d'oxygène appliquée au sommet des modèles numériques et la qualité de l'eau interstitielle simulée.

On constate également au tableau 8.13 que dans tous les cas simulés les pH demeurent faibles et les concentrations de sulfates élevées, malgré des flux d'oxygène parfois très faibles. On a pu constater plus haut (voir section 8.5.2.7) que les simulations tendaient à sous-estimer le pH car on ne considérait aucun minéral neutralisant dans les résidus. Les concentrations élevées de sulfates sont liées à la dissolution du gypse et sont donc temporaires.

En termes de pH, seule la couverture CEBC tricouche constituée de stériles 2 semble, parmi les simulations présentées ici, assez efficace à prévenir la contamination du milieu (et encore le pH est-il assez loin de la neutralité). Si on se base sur les concentrations en sulfates, en fer et en zinc, la couverture bicouche avec une couche de rétention de 3 m pourrait également être considérée comme relativement efficace (en supposant que les concentrations élevées de sulfates sont liées à la dissolution du gypse et qu'elles sont temporaires). Sur ces critères, une couverture efficace correspondrait à un flux inférieur à environ 35 g/m²/an.

Tableau 8.13: Chimie de l'eau interstitielle simulée pour les résidus Selbaie (sans dolomite ni anorthite) selon le recouvrement employé, 2 m sous la surface des résidus après 10 ans (les pressions partielles d'O_2 appliquées au sommet des simulations sont également rappelées)

Cas simulés		pO_2 (%)	pH (-)	Sulfates (ppm)	Fe (ppm)	Zn (ppm)
Monocouche 1 m,	nappe -2 m	3,53	3,0	2700	430	4,8
	nappe -4 m	5,76	2,7	2700	460	5,2
	nappe -6 m	6,69	2,6	2500	440	5,0
CEBC bicouche 1 m, stériles 2,	nappe -4 m	4,40	2,8	2900	490	5,5
3 m		0,29	3,8	1400	39	0,36
CEBC tricouche, stériles 2, nappe -4 m		0,02	5,2	960	3,0	$1{,}5.10^{-2}$

CHAPITRE 9 SYNTHÈSE, CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

9.1 Synthèse et discussion des résultats

L'objectif de ce projet était d'évaluer l'efficacité de divers recouvrements pour prévenir la génération de drainage minier acide par des résidus déjà partiellement oxydés, en se basant sur le cas de deux anciens sites miniers situés en Abitibi : le site Manitou et le site Selbaie. Pour le premier, la restauration a débuté sur une partie du site. La méthode considérée jusqu'ici pour prévenir la formation d'eaux acides est l'installation d'une couverture monocouche faite de résidus Goldex qui sont non générateurs d'acide et légèrement alcalins. La configuration de cette couverture pourrait cependant évoluer et l'étude menée ici devrait aider à apporter un éclairage sur les options envisagées. Le second site a déjà fait l'objet de travaux de restauration, avec un recouvrement monocouche fait de moraine (sable silteux).

Les travaux ont inclus des expériences de terrain (caractérisation, échantillonnage), des essais au laboratoire (caractérisation, cycles de drainage en colonne, consommation d'oxygène) et l'utilisation de modèles numériques hydrogéologiques (Vadose/W) et hydrogéochimiques (Min3P). Ces approches ont été employées conjointement afin d'évaluer le comportement hydrogéochimique des résidus et de leur couverture (de divers types). On présente ici la synthèse des travaux, avec une discussion des principaux éléments.

9.1.1 Essais de laboratoire

9.1.1.1 Propriétés des matériaux

Les échantillons de résidus et de moraine ont été prélevés directement sur le site ; les résidus Goldex ont été fournis par la mine, avant le début de l'exploitation. La moraine a été tamisée et les particules supérieures à 4,75 mm ont été retirées ; ces particules plus grossières sont dispersées et ne devraient pas avoir une influence marquée sur le comportement de la couverture. Les différences entre les divers matériaux sont relativement marquées : par exemple, leurs CRE sont bien distinctes (avec un AEV variant de quelques centimètres à quelques mètres), leur minéralogie est variable (entre 0 et 12% de pyrite par exemple), et leurs indices des vides sont assez différents (de 0,35 à plus de 1,0 sur le terrain). Leur conductivité hydraulique saturée est cependant assez semblable (entre 8.10^{-8} et 1.10^{-6} m/s).

9.1.1.2 Essais en colonne

Des essais en colonne ont été réalisés pour étudier le comportement des résidus avec une couverture en conditions contrôlées (chapitres 5 et 6). Quatre grandes colonnes (170 cm de résidus réactifs et 30 à 40 cm de couverture) de 15 cm de diamètre, et quatre petites colonnes (35 cm de résidus réactifs environ) de 10 cm de diamètre, ont été montées. Entre 10 et 19 cycles de mouillage-drainage (séchage), d'une trentaine de jours chacun (parfois plus), ont été appliqués sur les colonnes. A chaque cycle on a ajouté environ 10 cm d'eau au sommet des grandes et des petites colonnes. L'eau interstitielle dans les colonnes au début de l'essai était déjà contaminée. En cela, les essais en colonne reflètent, partiellement, l'effet de la contamination initiale sur le site. On juge par conséquent que les calibrations des modèles numériques sont en partie représentatives du comportement géochimique des résidus dans le milieu naturel.

Tout au long des essais en colonne, on a mesuré les teneurs en eau volumiques θ_w, les pressions d'eau u (positives ou négatives) et les concentrations d'oxygène en divers points, et on a analysé le lixiviat à la sortie (pH, conductivité électrique, concentrations en sulfates, fer et autres éléments).

Au cours de ces essais, on a constaté une désaturation avancée des couvertures. On a également mesuré des concentrations d'oxygène importantes au sommet des résidus et dans les couvertures, ce qui s'est traduit par l'oxydation des minéraux sulfureux (lorsqu'ils étaient présents). Dans le cas des résidus Manitou « frais » non oxydés (MNO), la génération de DMA est claire : le pH est faible et les concentrations de sulfates, de fer et des autres métaux sont importantes. Les résidus Selbaie (SNO et SO) s'oxydent aussi comme le laissent percevoir les concentrations élevées de fer et de sulfates mais l'acidité est tamponnée par des minéraux acidivores. Dans tous les cas, le recouvrement monocouche, de résidus Goldex ou de moraine, ne semble pas efficace pour prévenir l'oxydation des minéraux sulfureux dans les conditions du laboratoire.

On a aussi noté, au cours des essais avec cycles de mouillage-séchage (drainage), le développement d'un fort effet d'hystérésis sur les relations θ_w-ψ. Pendant la phase de mouillage, les résidus et les matériaux de couverture ne se resaturent pas complètement, même lorsque la succion devient très faible. Le degré de saturation à satiation reste alors inférieur à 80%, ce qui a pour conséquence d'augmenter les flux d'oxygène à travers le recouvrement.

Malgré les résultats intéressants obtenus, les essais en colonne montrent des limites, notamment concernant la configuration du système (30 à 40 cm de couverture plutôt qu'un mètre ou plus sur le terrain), la représentativité des matériaux (quelques échantillons pour représenter des résidus sur plusieurs hectares), la succion imposée (valeur unique imposée à la base des résidus) et l'absence d'une nappe phréatique réelle (i.e. pas de remontée d'eau alimentée par la nappe phréatique sous l'effet de l'évaporation). Ces limites créent un contexte particulier qui n'est pas représentatif de l'ensemble des conditions de terrain. Les simulations numériques permettent cependant d'étendre ces résultats à des cas plus réalistes.

9.1.1.3 Hétérogénéités des matériaux

Au cours des campagnes de terrain (2007-2010), il a été observé une très forte hétérogénéité des matériaux sur les deux sites étudiés. Les propriétés (granulométrie, minéralogie) des résidus et des matériaux de couverture varient de manière importante d'un point à l'autre du site (chapitre 4). Sur le site Manitou, deux échantillons prélevés à quelques mètres de distance peuvent avoir des teneurs en pyrite de 0% et 20% et des granulométries allant du silt argileux au sable silteux. Les conditions hydrogéologiques sur le terrain sont également variables ; par exemple, la nappe sur le parc à résidus de la mine Selbaie peut être presque affleurante à certains endroits et à 15 mètres de profondeur à d'autres. L'épaisseur du recouvrement de moraine peut varier entre 1 et 2 mètres.

Afin de prendre en compte cette hétérogénéité dans les analyses, les propriétés hydrogéologiques (courbes de rétention d'eau et fonctions de perméabilité) des divers matériaux ont été estimées à partir des propriétés mesurées sur un grand nombre d'échantillons. Ont alors été retenues les propriétés représentatives de la plage de variations pour ces matériaux, lesquelles ont ensuite été incluses dans les modélisations numériques.

9.1.2 Simulations numériques

9.1.2.1 Essais de laboratoire

Les résultats des caractérisations et des essais au laboratoire et sur le terrain ont été intégrés à des modèles numériques hydrogéologiques (code Vadose/W ; chapitre 7) et hydrogéochimiques (code Min3P ; chapitre 8). Ces simulations ont été développées suivant trois étapes :

conceptualisation, calibration et extrapolation. L'étape de conceptualisation a amené à simplifier le problème étudié à un cas 1D. Ce choix découle de la configuration des colonnes au laboratoire ainsi que de la géométrie des sites étudiés. L'objectif était principalement d'étudier des configurations types de couverture et d'en déterminer les facteurs d'influence. Pour les situations étudiées ici, les écoulements latéraux et autres effets bi- ou tri-dimensionnels se sont avérés moins pertinents. On considère que les modèles 1D représentent adéquatement ce qui pourrait se passer au cœur des parcs à résidus (i.e. relativement loin des digues).

La phase de calibration a permis de constater qu'au prix de quelques ajustements, notamment en ce qui a trait aux conditions frontières et aux propriétés hydrogéologiques des matériaux (incluant la CRE), les modèles numériques étaient en mesure de reproduire relativement bien les observations de laboratoire en conditions contrôlées. En particulier, Vadose/W reproduit très bien la variation du degré de saturation S_r dans les résidus et les matériaux de couverture. Les tendances générales sont alors bien respectées et les vitesses de variation de S_r bien reproduites. On constate néanmoins de légères différences en fin de cycle lorsque la phase de sécheresse tend à se prolonger. Comme cela a été vu, cet effet est principalement lié à la condition frontière inférieure des essais, avec une remontée d'eau bloquée à la base des colonnes. Les pressions mesurées sont également bien reproduites dans les simulations des essais en colonne. Les comparaisons indiquent par contre que l'évaporation est surestimée dans les simulations. La quantité d'eau perdue par évaporation est surestimée et les débits de sortie à la base des colonnes sont sous-estimés dans les calculs pour les grandes colonnes).

Les débits de sortie simulés dans les petites colonnes sont plus proches des mesures de laboratoire que dans le cas des grandes colonnes. Les vitesses d'écoulement sont également assez bien reproduites par les simulations.

Les débits de sortie ne constituent cependant pas une donnée critique des modèles étant donné que le flux d'oxygène est principalement contrôlé par le degré de saturation dans les couvertures et les résidus, lequel est bien reproduit dans les simulations.

Les résultats des analyses hydrogéologiques menées avec Vadose/W ont ensuite été employés pour calibrer les modèles hydrogéochimiques. Le code Min3P ne prend pas en compte les interactions avec l'atmosphère (notamment l'évaporation ou les précipitations et l'accumulation d'eau en surface). L'application des pressions calculées par Vadose/W à la base des colonnes a

permis de palier (en partie) à cette limitation et d'obtenir avec Min3P des résultats hydrogéologiques très proches de ceux obtenus avec Vadose/W (déjà calibrés sur les résultats de laboratoire). Ayant observé que les débits étaient relativement mal estimés par Vadose/W, il a été choisi d'imposer directement le bilan d'eau net mesuré dans les colonnes aux simulations réalisées avec Min3P, c'est-à-dire que le volume d'eau traversant effectivement les résidus a été fixé a priori. Les simulations avec Min3P ont donc permis de reproduire les profils de la pression d'eau et du degré de saturation dans les colonnes au cours du temps, avec des débits représentatifs traversant les matériaux.

Les propriétés géochimiques des résidus ont été calibrées à partir des résultats des essais en petite colonne. Un certain nombre de problèmes numériques et d'instabilités du code ont été rencontrés, et des hypothèses simplificatrices se sont avérées nécessaires. Par exemple, il n'a pas été possible d'ajouter la plupart des précipités secondaires habituellement rencontrés sur les parcs à résidus (gypse, ferrihydrite, boehmite etc.), sous peine de voir les simulations s'arrêter inopinément au milieu des calculs. De plus, il n'a pas été possible de simuler intégralement les essais en grande colonne avec deux couches de matériaux aux minéralogies très différentes ; on a dû passer par deux étapes de calculs (décrites à la section 8.1.1). Enfin, la paramétrisation de la réactivité des minéraux a été compliquée par des sensibilités soient trop fortes (notamment pour les minéraux sulfureux) soient trop faibles (notamment pour les silicates lorsque le pH est proche de la neutralité). Ajoutons à cela l'incertitude entourant la détermination des paramètres de dispersion et de diffusion des solutés, ainsi que les valeurs de Eh dans les colonnes (non mesurées). Ces divers facteurs engendrent une incertitude marquée quant à la représentativité des calculs menés avec Min3P. La calibration a été axée sur les paramètres jugés les plus importants de cette étude, à savoir le pH, les concentrations en sulfates et en fer, ainsi qu'en zinc, calcium et magnésium. Pour ces paramètres, les simulations avec Min3P ont permis de reproduire assez bien les observations de laboratoire. Dans certains cas, notamment pour le fer, les concentrations se sont avérées toutefois être largement surestimées par les modèles numériques en raison de l'absence de formation des précipités ; on a pu constater au vu des résultats obtenus que les conditions Eh-pH simulées devraient engendrer la précipitation de ces minéraux secondaires. La réaction d'oxydation indirecte (par le Fe(III)) n'a pas été prise en compte explicitement ; la réaction d'oxydation directe de la pyrite (modèle du noyau réactif) a plutôt été calibrée de telle sorte que

les deux phénomènes (qui se produisent simultanément au sein des colonnes) soient reproduits de façon globale.

Au cours de cette phase de calibration, les codes numériques ont été modifiés pour prendre en compte les conditions particulières des essais. On a notamment travaillé avec l'équipe de développement de Vadose/W pour corriger une mauvaise estimation de la constante du taux de réaction K_r lorsque la teneur en eau varie. Le code Min3P a de plus été modifié pour qu'il prenne en compte l'effet de l'hystérésis. Il s'agit de deux contributions particulières découlant de ces travaux.

Suite à ces divers ajustements, les simulations menées au moyen des codes Vadose/W et Min3P ont permis de reproduire les comportements hydrogéochimiques des résidus et des couvertures de façon satisfaisante pour les essais de laboratoire. L'étude a ensuite été étendue à des conditions plus représentatives du terrain, sur une période de temps plus importante que les 700 jours des essais.

9.1.2.2 Effets des caractéristiques des résidus

A partir de l'ensemble des mesures de terrain et de laboratoire, il a été possible de simuler le comportement de résidus réactifs et de matériaux de couverture dont les propriétés étaient représentatives des deux sites. En raison des variations observées (notamment concernant l'indice des vides *in situ* et les CRE), on a considéré un ensemble de caractéristiques des matériaux parmi lesquelles des propriétés représentatives ont été choisies. Pour les résidus Manitou, qui ont déjà fait l'objet de quelques études antérieures (Aubertin et Chapuis, 1990; Aubertin et Bussière, 1991; Aubertin et al., 1995, 1997, 1999; Bernier, 1997; Tassé et Germain, 1999, 2003; Journeaux, Bédard et assoc., 2004, 2005, 2007; Teknika HBA, 2005), les propriétés de résidus grossiers et d'autres relativement fins ont été considérées. Pour Selbaie, les caractéristiques des résidus retenus sont plus proches des valeurs habituelles observées pour les résidus de mines en roche dure. Les caractéristiques hydrogéologiques des quatre types de résidus retenus couvrent donc une large gamme de propriétés.

Géochimiquement, on s'est basé sur les minéralogies des résidus des deux colonnes les plus réactives. La teneur en pyrite est le paramètre le plus critique en ce qui a trait à la composition minéralogique des résidus réactifs. La production de sulfates et de fer varie avec la quantité de minéraux sulfureux présents dans le milieu. Le pH varie un peu moins (l'échelle est

logarithmique), et de faibles teneurs en pyrite suffisent généralement à atteindre des pH faibles. On constate alors que le comportement géochimique des divers types de résidus est assez comparable dans les simulations.

Le comportement de chacun des matériaux a été simulé, pour des conditions frontières typiques, en considérant un recouvrement monocouche de 1 m d'épaisseur pour différentes profondeurs de nappe. Les simulations montrent des réponses variées. Ainsi, les résidus les plus fins demeurent pratiquement saturés même avec une nappe relativement profonde et une phase de sécheresse prolongée. A l'inverse, les résidus les plus grossiers se désaturent rapidement.

L'effet de la conductivité hydraulique n'a pas été étudié en détail lors des essais, car elle était assez proche entre les différents matériaux (i.e. peu d'effet dans les expériences de laboratoire). Les simulations montrent aussi qu'une variation de k_{sat} de plus ou moins un ordre de grandeur aurait un effet assez limité. L'écoulement serait ralenti avec une conductivité hydraulique plus faible, mais on tendrait vers les mêmes valeurs de teneurs en eau à long terme. A noter que le fait que l'eau s'écoule plus ou moins lentement n'est pas pris en compte directement dans les simulations géochimiques avec le code Min3P (qui utilise seulement les équilibres chimiques locaux).

D'après les observations et les simulations, le phénomène d'hystérésis de la CRE a un grand impact sur les résultats hydrogéologiques et géochimiques. Les flux d'oxygène peuvent être très différents selon que les matériaux de couverture se resaturent complètement ou non. Ce phénomène a donc été pris en compte dans plusieurs des simulations ; en raison des contraintes du logiciel Vadose/W l'hystérésis n'a pas été considérée pour calculer le flux d'oxygène dans les simulations des conditions de terrain. Il n'y a pas d'évidence directe que le phénomène sur le site a une ampleur comparable à celle observée au laboratoire, mais des observations antérieures ont permis d'identifier des phénomènes similaires et une resaturation partielle de la couverture (e.g. Aubertin et al., 1999; Maqsoud et al., 2002, 2006; Bussière, 2007). Une certaine incertitude entoure également l'effet de l'hystérésis sur la fonction de perméabilité (variation de la conductivité hydraulique à satiation notamment).

9.1.2.3 Effets des caractéristiques des matériaux de couverture

Les résidus Goldex et la moraine sont apparus moins hétérogènes que les résidus réactifs (Manitou et Selbaie) mais leurs propriétés varient tout de même, ce qui peut changer leur comportement de façon assez importante. En général, les simulations montrent que les matériaux les plus fins demeurent à des degrés de saturation plus élevés et plus longtemps et permettent donc de limiter plus efficacement le flux d'oxygène. A l'inverse, les matériaux les plus grossiers se désaturent plus facilement. Dans certains cas, ils peuvent jouer un rôle de barrière à l'évaporation.

D'après cette étude, la minéralogie de la couverture a une influence limitée sur le comportement des résidus sous-jacents. Comme les couvertures se trouvent en amont des résidus (en termes d'écoulement de l'eau), elles ne participent pas à la neutralisation l'acide produit par les résidus. L'albite semble se dissoudre dans l'eau de pluie simulée, mais les carbonates se solubilisent peu. Les simulations montrent aussi que les résidus Goldex pourraient être employés en aval pour neutraliser (du moins temporairement) une partie de l'eau acide produite par les résidus Manitou.

9.1.2.4 Effets des conditions frontières

Evaporation

L'évaporation est un paramètre clef dans les travaux. Elle est souvent responsable de la désaturation marquée des couvertures et de leur perte d'efficacité, en particulier pour les couvertures monocouches ou bicouches (matériau fin sur grossier). Par contre, l'intensité de l'évaporation ne semble pas être un paramètre déterminant quant à la désaturation des matériaux pour les conditions climatiques et les périodes de temps considérées. Le fait que les simulations surestiment les valeurs de l'évaporation en laboratoire, comparativement aux valeurs mesurées (2,7 mm/j contre 1,8 mm/j) ne serait donc pas critique. Néanmoins, plus l'évaporation est importante, moins l'eau aura tendance à s'infiltrer profondément dans les couvertures et les résidus. La géochimie de l'eau sur le profil évolue plus lentement dans ce cas.

Profondeur de nappe phréatique

On a simulé le comportement des couvertures et résidus pour différentes profondeurs de nappe, variant entre 2 m et 6 m. Dans le cas des résidus Manitou, une position de la nappe à 1 m sous la surface des résidus a également été simulée. Comme attendu, les simulations indiquent que plus

la nappe est profonde, plus la couverture et les résidus ont tendance à se désaturer. Le flux d'oxygène devient alors beaucoup plus important.

La profondeur de la nappe est clairement un paramètre majeur. Une position de nappe supérieure à -2 m permettrait d'avoir une couverture efficace (en terme de flux d'oxygène) dans presque toutes les configurations. Une nappe profonde (à -4 m ou -6 m) est souvent beaucoup plus problématique (notamment avec des couvertures monocouches). La profondeur de la nappe phréatique joue principalement sur la désaturation des couvertures, car les résidus réactifs sont moins susceptibles à ces variations en général (pour les propriétés retenues ici).

Climat

Il a déjà été observé que la période de gel, le phénomène de cryosuction et le dégel peuvent permettre d'améliorer l'efficacité des couvertures (Aubertin et al., 1999; Dagenais, 2005; Bussière, 2007). On a tenté de reproduire certaines observations de terrain, comme la formation de lentilles de glace dans les matériaux fins et la resaturation, au moins partielle, des couvertures à la fonte des neiges. Les précipitations imposés dans les modèles sont celles d'une année moyenne pour Val d'Or (850 mm/an ; données d'Environnement Canada), mais des simulations ont également été menées en prenant en compte une année sèche (640 mm/an, sans précipitations pendant deux mois en été ; e.g. Aachib, 1997; Aubertin et al., 1999; Dagenais, 2005). Les résultats ont permis de constater que dans le cas de recouvrements monocouches, plusieurs configurations qui sont efficaces pour une année moyenne, ne le sont plus en cas de sécheresse. Par contre, les couvertures tricouches (CEBC) maintiennent leur niveau d'efficacité même dans ces conditions particulières.

Avec Min3P, on a aussi tenté de reproduire les effets des conditions climatiques, ce qui s'est avéré plus problématique, en particulier en ce qui a trait à l'effet d'une période de gel (non traité ici). De plus, il est difficile de modifier les conditions frontières au cours du temps dans les simulations avec Min3P. La concentration d'oxygène imposée au sommet des modèles numériques est donc maintenue constante tout au long de l'année et elle constitue la condition frontière qui contrôle la production d'acide. Sa valeur a été estimée par le code Vadose/W à l'interface entre les résidus et la couverture.

9.1.2.5 Couvertures monocouches

La méthode de restauration initialement envisagée pour l'ensemble du site Manitou est l'installation d'une couverture monocouche de résidus Goldex, d'une épaisseur de 1 m ou plus, combinée au rehaussement de la nappe phréatique (Journeaux, Bédard et assoc. inc., 2004, 2005, 2007). Sur le site Selbaie, le recouvrement monocouche de moraine déjà en place a une épaisseur de 1 à 2 mètres. On a, dans ce projet, simulé le comportement de telles couvertures et fait varier leur épaisseur, la position de la nappe et le type de résidus réactifs sous-jacents. Les figures 9.1 à 9.4 présentent de façon schématique une synthèse de l'ensemble des résultats des simulations hydrogéologiques pour les différentes configurations de couverture et pour chaque type de résidus réactifs. La couche de rétention est colorée dans chaque cas selon sont l'efficacité relative du recouvrement, estimée en fonction du flux d'oxygène simulé au sommet des modèles. On considère trois catégories : les couvertures jugées efficaces ($FO_2 < 50$ g/m²/an), les couvertures jugées très peu ou non efficaces ($FO_2 > 100$ g/m²/an) et enfin celles sur lesquelles les incertitudes liées aux simulations empêchent de véritablement statuer ($50 < FO_2 < 100$ g/m²/an). Rappelons toutefois que les simulations avec Min3P indiquent que même si les flux d'oxygène semblent faibles dans certains cas (par exemple pour une couverture monocouche avec nappe à -1 ou -2 m), l'eau interstitielle pourrait tout de même être contaminée. Ceci montre l'importance d'employer à la fois des modèles hydrogéologiques et hydrogéochimiques. Néanmoins, considérant l'incertitude régnant sur les modèles géochimiques, et ayant observé une corrélation directe entre flux d'oxygène, concentration d'oxygène en surface et oxydation des résidus (et contamination de l'eau interstitielle), seul le critère de flux est employé dans ces figures pour représenter l'efficacité des couvertures. Cette efficacité pourrait aussi être évaluée à partir d'autres indications, tel le pH et/ou les concentrations d'autres éléments (sulfates, fer, zinc, etc. ; e.g. Aubertin et al., 1995, 1999, 2002; Aachib, 1997; Villeneuve, 2004; Dagenais, 2005; Ouangrawa, 2007; Demers et al., 2010).

Pour les deux sites, on ne constate pas de différences notables quant à l'efficacité des couvertures entre les résidus les plus fins et les plus grossiers (M3 ou M4 et S2 ou S3). L'épaisseur du recouvrement monocouche (résidus Goldex G2 ou moraine Mor2) semble aussi avoir un effet limité sur le flux d'oxygène. Ici, le niveau de désaturation et l'efficacité relative de la couverture sont principalement reliés à la position de la nappe.

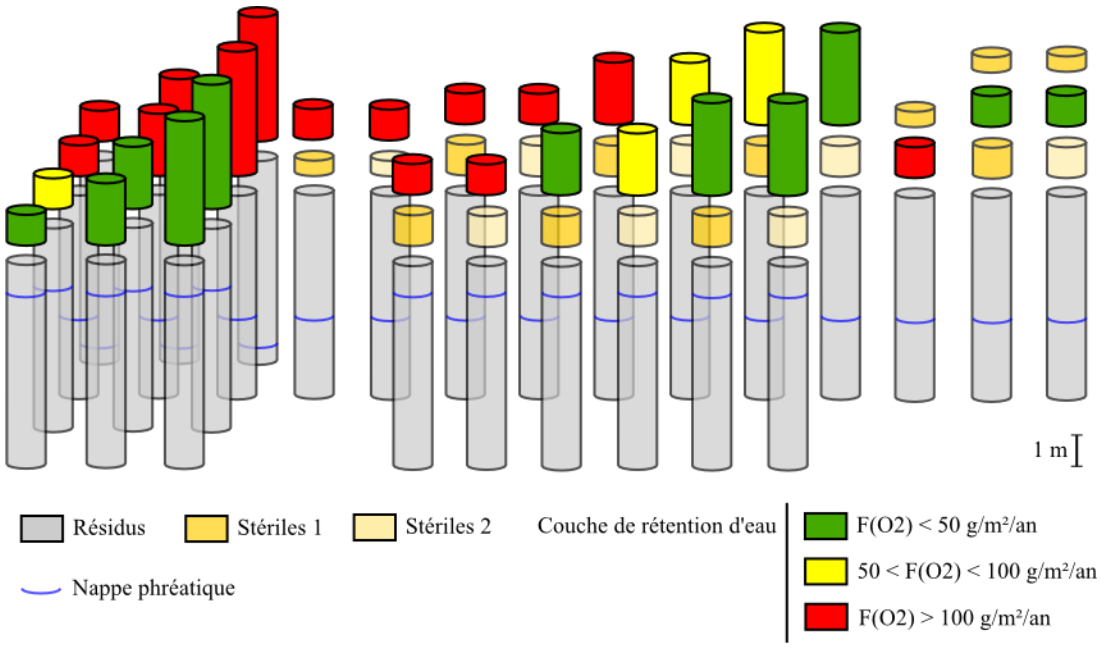


Figure 9.1: Représentation graphique de l'efficacité relative (en termes de flux d'oxygène) des divers scénarios de recouvrement simulés pour les résidus Manitou M3 ; la couche de rétention d'eau est constituée de résidus Goldex G2 ; résultats basés sur les simulations avec Vadose/W

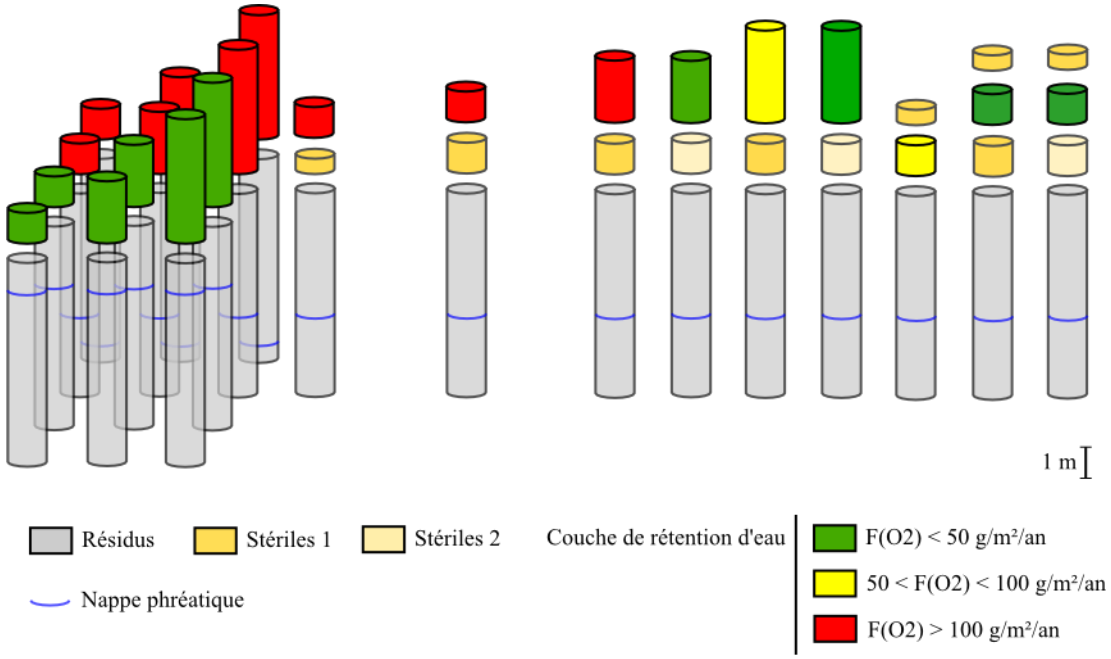


Figure 9.2: Représentation graphique de l'efficacité relative (en termes de flux d'oxygène) des divers scénarios de recouvrement simulés pour les résidus Manitou M4 ; la couche de rétention d'eau est constituée de résidus Goldex G2 ; résultats basés sur les simulations avec Vadose/W

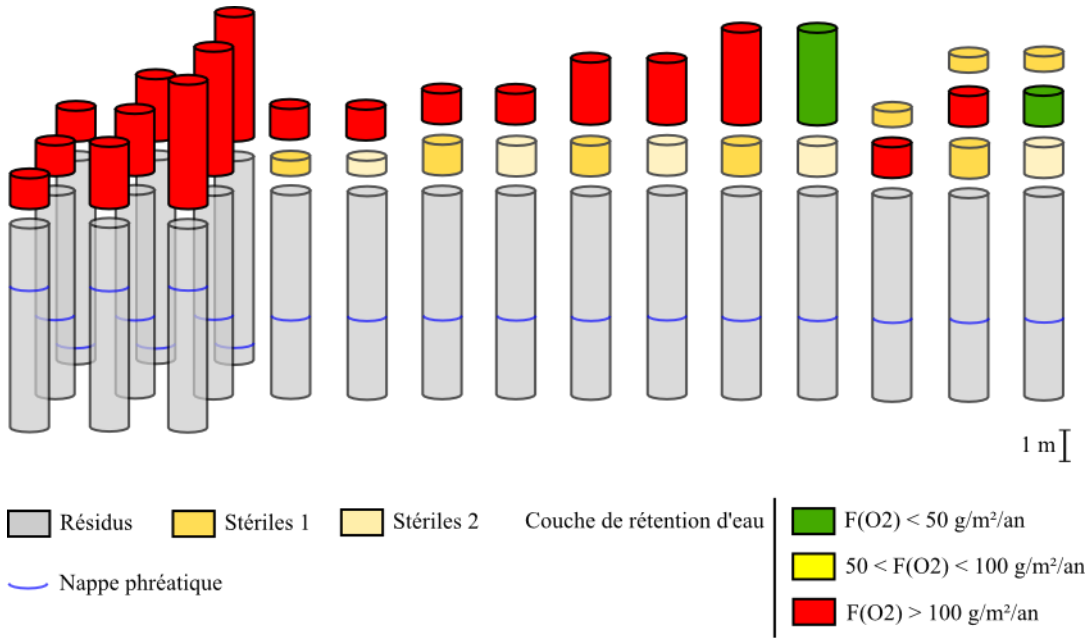


Figure 9.3: Représentation graphique de l'efficacité relative (en termes de flux d'oxygène) des divers scénarios de recouvrement simulés pour les résidus Selbaie S2 ; la couche de rétention d'eau est constituée de Moraine Mor2 ; résultats basés sur les simulations avec Vadose/W

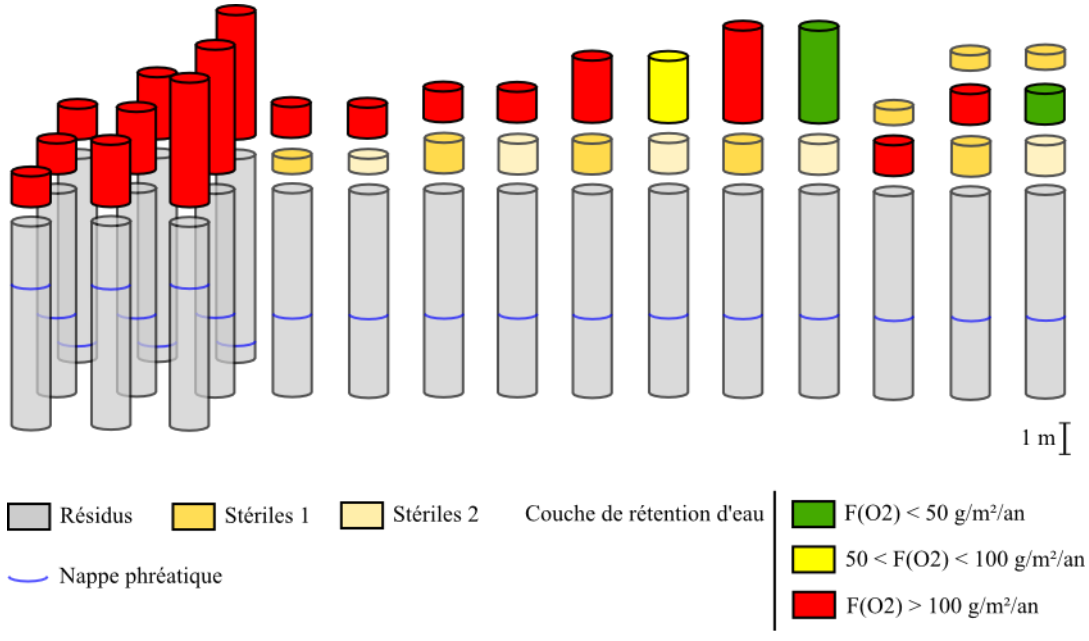


Figure 9.4: Représentation graphique de l'efficacité relative (en termes de flux d'oxygène) des divers scénarios de recouvrement simulés pour les résidus Selbaie S3 ; la couche de rétention d'eau est constituée de moraine Mor2 ; résultats basés sur les simulations avec Vadose/W

Dans le cas des résidus Manitou, une nappe située 1 mètre sous la base de la couverture permettrait de maintenir la couche de résidus Goldex à des degrés de saturation élevés et de limiter le flux d'oxygène. Pour une nappe à -2 m, la couverture reste efficace en terme de flux (i.e. proche des critères de design). Par contre, lorsque la nappe est située à 4 mètres de profondeur ou plus, le flux d'oxygène dépasse 100 g/m²/an. Les simulations avec Min3P indiquent que l'oxydation des résidus devient alors très marquée et que d'importantes quantités de DMA sont générées. Les simulations avec Min3P indiquent aussi que même dans le cas où la nappe est à -2 m ou -1 m, le flux d'oxygène semble suffisant pour oxyder une part non négligeable des minéraux sulfureux. Les concentrations de fer et de sulfates produites sont alors assez élevées et le pH demeure inférieur à 5,0. Les simulations réalisées pour une année particulièrement sèche ont montré que l'efficacité décroit de manière significative dans ces conditions. Ces caractéristiques géochimiques sont en accord avec les observations générales découlant des essais en colonne menés par Bussière et al. (2011).

Pour le site Selbaie, les simulations avec Vadose/W indiquent que la moraine est trop grossière pour maintenir un degré de saturation élevé dans la couverture, même lorsque la nappe est située à -2 m de profondeur. L'épaisseur du recouvrement monocouche a aussi un effet très limité sur son efficacité qui demeure faible dans pratiquement tous les cas (F > 100 g/m²/an). La moraine n'est cependant pas suffisamment grossière pour jouer efficacement le rôle de barrière à l'évaporation, de sorte que les résidus réactifs se désaturent aussi (voir aussi Cosset et Aubertin, 2010). Les simulations géochimiques menées avec Min3P indiquent qu'une couverture monocouche de moraine ne permet pas de prévenir la génération de DMA (c'est d'ailleurs ce que l'on constate sur le site).

Sur les deux sites, la différence de coûts occasionnée par l'installation d'une couverture monocouche plus épaisse pourrait ne pas être justifiée au vu du faible gain d'efficacité.

En résumé, les simulations indiquent que pour la majorité des conditions et des configurations testées, une couverture monocouche ne semble pas efficace à prévenir l'oxydation des résidus miniers et la génération de drainage minier acide.

9.1.2.6 Couvertures à effets de barrière capillaire

On a également simulé d'autres alternatives pour le recouvrement des résidus Manitou et Selbaie, pour une nappe située à -4 m (parfois -1 m pour certaines configurations avec les résidus

Manitou). Pour les couvertures à effet(s) de barrière capillaire, bicouches ou tricouches (les diverses configurations sont rappelées aux figures 9.1 à 9.4), deux types de stériles ont été considérés, leurs propriétés hydrogéologiques étant proches de celles d'un sable (stériles 1) et d'un gravier (stériles 2).

Pour les deux sites étudiés, on constate tout d'abord que le choix de l'épaisseur de la couche de stériles du bas a une influence très limitée sur les résultats. L'efficacité augmente toutefois avec l'épaisseur de la couche de rétention d'eau (formée de résidus Goldex ou de Moraine). On note aussi que les stériles plus grossiers (stériles 2) permettent de former un bris capillaire plus efficace pour limiter la désaturation de la couche de rétention d'eau. Comme on le constate aux figures 9.1 à 9.4, la position de la nappe n'a pas beaucoup d'influence sur le comportement des couvertures bicouches (fin sur grossier) et tricouches ; les stériles ont un AEV faible et se désaturent dans tous les cas.

Les couvertures bicouches faites de résidus Goldex, sur les stériles, semblent assez efficaces (FO_2 < 100 g/m²/an avec les stériles 1, FO_2 < 50 g/m²/an avec les stériles 2) lorsque la couche de rétention est suffisamment épaisse (plus de 2 m), ce qui limite sa désaturation par évaporation. Le gain d'efficacité entre une couche de rétention d'eau de 1 m et 2 m est plus important qu'entre une couche de 2 m et 3 m. Pour les résidus Selbaie, une couverture bicouche faite de moraine placée sur des stériles ne semble presque jamais efficace (pour les configurations simulées). La moraine ne présente pas de contraste granulométrique et hydrogéologique suffisant avec les stériles (en particulier les stériles 1) pour qu'un bris capillaire se forme, et son AEV est trop faible pour retenir l'eau par capillarité. Cette couche de rétention (de moraine) se désature donc à la fois par drainage et par évaporation.

Une couverture bicouche (fin sur grossier, voir configurations aux figures 9.1 à 9.4) ne semble efficace (FO_2 < 50 g/m²/an), sur les deux sites, que lorsque la couche de rétention est épaisse (au moins 3 m) et que les matériaux utilisés pour le bris capillaire sont très grossiers (comme les stériles 2). Cependant, si les flux respectent les critères usuels de design dans ce cas, les simulations géochimiques indiquent que la qualité de l'eau interstitielle dans les résidus ne s'améliore que marginalement. L'eau interstitielle reste acide et assez largement contaminée, et les minéraux sulfureux continuent de s'oxyder.

L'utilisation d'une couverture bicouche avec barrière à l'évaporation (grossier sur fin) améliore peu l'efficacité de la couverture sur les deux sites (FO_2 > 50 g/m²/an) lorsque la nappe est située à -4 m (ou plus profondément). On note néanmoins que les stériles 1 forment une barrière à l'évaporation efficace ; les stériles 2 seraient sans doute plus efficaces, mais ils n'ont pu être simulés dans cette configuration.

Les simulations réalisées sur des couvertures tricouches installées sur les résidus Manitou indiquent que celle-ci sont très efficaces dans tous les cas testés ici (même en cas de sécheresse). Les calculs avec Vadose/W montrent des flux d'oxygène très faibles à travers les couvertures (FO_2 < 50 g/m²/an). Les simulations géochimiques indiquent également que, dans ces conditions et pour un bris capillaire formé des stériles 2, le pH dans les résidus Manitou augmente à plus de 6 et les concentrations en sulfates et autres métaux diminuent à des valeurs très faibles (ce qui est conforme à ce qui a pu être observé dans d'autres études ; e.g. Aubertin et al., 1999; Molson et al., 2008; Bussière et al., 2011). Dans le cas du site Selbaie, l'efficacité géochimique est plus faible (le pH ne remonte pas autant que dans le cas Manitou), mais reste bien meilleure que toutes les autres configurations. On confirme également que les stériles 1 ne constituent pas des matériaux adéquats pour former un bris capillaire avec la moraine.

9.2 Conclusion

Les résultats des simulations indiquent que les deux paramètres les plus importants pour évaluer l'efficacité du recouvrement sur les sites étudiés sont la profondeur de la nappe et les propriétés hydrogéologiques des matériaux de la couverture. L'approche systématique et intégrée utilisée ici permet de comparer les différentes configurations de recouvrement envisagées.

Dans le cas du site Manitou, l'installation d'une couverture monocouche semble généralement peu efficace. Avec une remontée de la nappe à -2 m ou -1 m sous la surface des résidus, les flux d'oxygène sont limités, mais ils suffisent à produire d'importantes quantités d'acide (sous l'effet des réactions d'oxydation indirecte ; des observations semblables ont été faites par Bussière et al., 2011). Les simulations en conditions plus sèches (deux mois sans précipitations) montrent une nette dégradation de la qualité de l'eau de drainage. Une couverture bicouche de 1 m d'épaisseur ne semble pas non plus être une solution adéquate, en raison de l'évaporation. L'augmentation de l'épaisseur (à 2 m et plus) de la couche de rétention semble être une solution. Mais lorsque la

couche de résidus Goldex est directement exposée, sa susceptibilité au phénomène de retrait pourrait engendrer des risques de dessiccation et fissuration en surface (Saleh-Mbemba, 2010).

L'installation d'une couverture tricouche à effets de barrière capillaire serait la meilleure solution pour limiter la génération de DMA (tant du point de vue des flux d'oxygène que de la qualité de l'eau de lixiviation). Elle pourrait être constituée d'une couche de résidus Goldex (d'environ 1 mètre d'épaisseur), placée entre deux couches de sable de gravier ou de stériles (de 50 cm à 100 cm).

Pour le site Selbaie, aucune des configurations testées avec les matériaux considérés ne semble vraiment efficace (en dehors de la CEBC tricouche avec stériles 2). La moraine utilisée sur le site ne semble pas être un matériau adéquat pour jouer le rôle de couche de rétention d'eau dans une configuration de type mono- ou bicouche ; elle pourrait être efficace dans certains cas précis pour une CEBC tricouche.

Ce projet a donc permis, par une approche expérimentale et numérique combinée, d'évaluer et de comparer un certain nombre de configurations de recouvrement pour la restauration de parcs à résidus miniers générateurs d'acide. Il ressort de cette étude que le choix de la technique de restauration nécessite la détermination précise des caractéristiques hydrogéologiques et géochimiques des résidus et des matériaux de couverture, ainsi que de la position de la nappe.

Les essais, au laboratoire et sur le terrain, ainsi que les simulations hydrogéologiques et hydrogéochimiques ont permis de répondre aux objectifs de ce projet. Il a ainsi été possible d'évaluer l'efficacité de recouvrements monocouches et de recouvrements alternatifs pour prévenir la génération de drainage minier acide de résidus partiellement oxydés, selon la position de la nappe et les autres caractéristiques du système, en se basant sur l'étude de deux anciens parcs à résidus miniers. Certaines des hypothèses ont également pu être validées, à savoir que :

- il existe quelques méthodes de recouvrement efficaces pouvant être mises en œuvre pour contrôler la formation du drainage minier acide sur d'anciens sites miniers réactifs ;
- l'utilisation de certaines techniques de restauration pour les sites récemment fermés est efficace pour prévenir la génération de DMA sur les sites déjà partiellement oxydés, et en particulier la méthode de la CEBC (tricouche).

Certaines autres hypothèses initialement émises ont aussi pu être invalidées, comme le fait que :

- l'installation d'une couverture monocouche sur un parc à résidus miniers peut-être efficace pour contrôler la génération de DMA lorsque la position de la nappe est sous la surface des résidus, puisque même si la nappe est élevée et le flux d'oxygène limité, il semble que la génération de DMA demeure marquée (sans doute en raison du phénomène d'oxydation indirecte) ;
- la composante alcaline des matériaux du recouvrement peut aider à améliorer l'efficacité de la couverture ; les résultats indiquent plutôt que la minéralogie de la couverture n'a qu'un effet très limité sur le comportement des résidus réactifs sous-jacents ;
- la restauration au moyen d'une couverture monocouche est appropriée pour les parcs à résidus avec une nappe relativement profonde ; en réalité, il semble que, dès que la nappe est située à quelques mètres de profondeur (sous la base de la couverture), une couverture monocouche n'est pas efficace (en terme de flux et de qualité d'eau), quelque soit l'épaisseur du recouvrement.

Ces travaux auront également permis un avancement des connaissances dans plusieurs domaines, notamment en ce qui a trait à l'efficacité des recouvrements monocouches (selon plusieurs variables, telles leur épaisseur, leur granulométrie, leur minéralogie), au comportement non saturé des résidus et des couvertures (notamment sous l'effet de cycles de mouillage-séchage répétés), au mouvement de l'oxygène dans les recouvrements, à la détermination de l'influence des conditions environnementales (en particulier la profondeur de nappe et l'évaporation), à l'oxydation des résidus et à la génération de DMA, et à certains aspects liés à la pré-oxydation des sites. Il a également été possible de mettre en évidence l'importance des phénomènes d'hystérésis de la CRE dans les essais. Ces travaux devraient permettre aussi d'améliorer un certain nombre d'aspects numériques, grâce entre autre à la modification des codes afin de les rendre plus représentatifs des conditions de laboratoire et de terrain (prise en compte partielle du phénomène d'hystérésis, meilleure estimation du coefficient du taux de réaction K_r). Parmi les contributions majeures de ce projet, on peut noter l'approche globale proposée (expérimentale et numérique) avec un schéma directeur intégré à la conception des recouvrements. Cette méthodologie, qui utilise des données de terrain et de laboratoire ainsi que des simulations numériques, pourrait s'appliquer à d'autres cas, à d'autres échelles (de temps et d'espace).

En complément, ces travaux auront aussi montré les limites de certains types d'essais (par exemple : application de la succion à la base des colonnes, dimension et nombre des essais versus hétérogénéité *in situ*, durée des essais, imprécision de certaines mesures), les faiblesses de certains codes numériques (instabilités numériques surtout, lenteur des calculs, non prise en compte des phénomène d'hystérésis, des cinétiques de réactions, de l'effet des bactéries, de l'oxydation indirecte des minéraux sulfureux). Les travaux ont présenté quelques méthodes pour tenter de contourner certaines de ces limites.

Enfin, ce projet aura également permis de développer et modifier certains protocoles expérimentaux (tant sur le terrain qu'au laboratoire, comme les essais de consommation d'oxygène ou l'essai en cellule Tempe), de développer les connaissances sur les essais en grande et petite colonne (et de proposer quelques recommandations pour leur amélioration dans les projets futurs, voir plus bas), et de caractériser de façon relativement poussée les résidus des sites à l'étude ainsi que leurs matériaux de couverture (un grand nombre d'échantillons de résidus et de matériaux de couverture ont été prélevés et caractérisés, ce qui pourra être utile dans les projets ultérieurs sur ces sites).

Il est important de bien garder à l'esprit que, dans les essais et les simulations, seuls quelques résidus et matériaux types ont été considérés et qu'un certain nombre d'approximations ont dû être faites dans les simulations numériques. L'hétérogénéité des sites et la complexité des systèmes hydrogéochimiques devraient inciter à poursuivre certains travaux afin de préciser quelques points demeurés incertains.

9.3 Recommandations

Un certain nombre de cas ont été simulés afin d'évaluer les tendances générales en fonction de quelques paramètres clefs. D'autres travaux (notamment de terrain) et d'autres simulations (notamment à plus grande échelle et en 2D ou en 3D) seraient requis pour dresser un portrait plus précis du comportement des résidus et de leur couverture. Ceci est particulièrement vrai pour le site Manitou, où la profondeur de la nappe n'est pas fixée.

Il a également été possible mettre en évidence un certain nombre de limitations, propres aux codes numériques employés ou liées à la méthodologie expérimentale. Voici quelques pistes pour aider à améliorer le déroulement des projets de ce type :

- concernant les essais en colonnes, il pourrait être avantageux de placer un réservoir d'eau à la base des résidus (ou du tube en U ; avec une mèche pour permettre une remontée d'eau plus aisée). Ceci permettrait de simuler plus précisément le comportement des résidus en présence d'une nappe phréatique ;
- on a noté dans les essais que les sondes TDR gainées ne semblaient pas affectées par la génération de DMA. Les sondes ECH2O sont pour leur part plus pratiques à employer et plus robustes (plages de mesures des teneurs en eau plus larges qu'avec les TDR, enregistrement automatique des valeurs, dimensions plus réduites), et il serait intéressant de vérifier leur comportement dans les résidus réactifs. Un certain nombre de problèmes ont été rencontrés avec les tensiomètres (saturés en eau) et il est recommandé de chercher d'autres types de capteurs de pressions, moins susceptibles à la désaturation ;
- il serait intéressant pour la suite des travaux sur le site Manitou de faire des tests spécifiques concernant l'oxydation indirecte par le Fe(III). Dans le cadre de ce projet, on a intégré la composante d'oxydation indirecte dans les modèles numériques en augmentant artificiellement la réactivité de la pyrite, mais ce n'est pas totalement réaliste. Pour une étude plus détaillée des conditions à long terme, il serait intéressant de simuler spécifiquement la réaction d'oxydation indirecte. Cela nécessiterait la mesure de la cinétique de réaction, ainsi que des paramètres comme le coefficient de diffusion du Fe(III) à travers la couronne d'oxydation des grains de pyrite. Il pourrait également être intéressant d'étudier et de simuler l'effet des bactéries sur ces phénomènes (voir aussi Ouangrawa, 2007; Toussaint, 2010) ;
- le phénomène d'hystérésis de la CRE a été critique dans les essais et les simulations. Il serait important de poursuivre les analyses de ce côté, notamment pour mettre en évidence le phénomène sur le terrain. Les effets de resaturation (cryosuction notamment) pendant l'hiver et à la fonte des neiges sont aussi à évaluer. Il serait également utile de vérifier comment varie la fonction de perméabilité en mouillage (et en premier lieu la valeur de la conductivité hydraulique à la satiation maximale) ;
- certaines des mesures minéralogiques étaient incomplètes lors de la calibration des modèles hydrogéochimiques. La multiplication des mesures DRX et l'utilisation de l'imagerie (MEB, MES) est conseillée. Ces derniers résultats pourraient permettre

l'identification des précipités secondaires (e.g. Villeneuve, 2004; Dagenais, 2005; Bussière et al., 2011). Il serait également avantageux de suivre l'évolution du Eh et de replacer de façon plus systématique les concentrations en métaux dans des diagrammes de spéciation (type Eh-pH) ;

- les simulations avec Vadose/W fonctionnent bien, mais au moins deux aspects pourraient encore être améliorés. D'abord, il faudrait séparer la définition de la porosité et de θ_{sat} afin de mieux simuler les phénomènes de satiation en mouillage ($S_{r,max} < 1$). Dans le même ordre d'idée, il serait intéressant de modifier le code pour prendre en compte le phénomène de l'hystérésis de la CRE (par exemple par le biais d'un coefficient β comme dans le modèle MK; voir Maqsoud et al., 2006 et équation 2.49). Deuxièmement, il faudrait que le logiciel permette d'obtenir des données à des pas de temps inférieurs à la journée lorsqu'on emploie des conditions climatiques. Il serait utile aussi de pouvoir extraire les valeurs de flux en tout point des modèles numériques et pas seulement aux frontières ;
- dans les simulations avec Min3P, il a pu être mis en évidence un certain nombre de limitations propres au code. Celui-ci présente par ailleurs une grande sensibilité à certains paramètres. Il faudrait également résoudre le problème des précipités secondaires, que l'on ne peut pas toujours inclure dans les simulations, ainsi que celui lié à la simulation de deux couches (ou plus) dont les teneurs en sulfures sont très différentes. Enfin, il pourrait être intéressant d'utiliser le code PEST (USEPA, 2003) afin de faciliter la calibration des simulations qui impliquent un grand nombre de paramètres.

LISTE DE RÉFÉRENCES

Aachib, M. (1997). Etude en laboratoire de la performance des barrières de recouvrement constituées de rejets miniers pour limiter le DMA. Doctoral Thesis, Département de Génie Civil Géologique et des Mines, Ecole Polytechnique de Montréal, QC, 298p.

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), Niagara Falls, ON.

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.

Adam, K., Kourtis, A., Gazea, B., & Kontopoulos, A. (1997). Evaluation of static tests used to predict the potential for acid drainage generation at sulphide mine sites. Trans. Inst. Mining Metall., A106, 1-8.

Adu-Wusu, C., & Yanful, E.K. (2007). Post-closure investigation of engineered test covers on acid-generating waste rock at Whistle Mine, Ontario. Can. Geotech. J., 44(4), 496-506.

Adu-Wusu, C., Yanful, E.K., Lanteigne, L., & O'Kane, M. (2007). Prediction of the water balance of two soil cover systems. Geotechnical and Geological Engineering, 25(2), 215-237.

Ahonen, L., & Tuovinen, O.H. (1994). Solid-phase alteration and iron transformation in column bioleaching of a complex sulfide ore. *In* Environmental Geochemistry of Sulfide Oxidation. Am. Chem. Soc. Symp. Series, 550, 79-89.

Alakangas, L. (2006). Sulphide oxidation, oxygen diffusion and metal bearing in sulphide-bearing mine tailings in Northern Sweden. Ph.D. Thesis, Lulea University of Technology, Suède.

Alakangas, L., Lundberg, A., & Ohlander, B. (2008). Pilot-scale studies of different covers on unoxidised sulphide-rich tailings in Northern Sweden , oxygen diffusion. *In* Proceedings of 10th International Mine Water Association Congress , Mine Water and the Environment, April 2-5, (2008), Karlovy Vary, République Tchèque.

Albright, W.H., Benson, C.H., Gee, G.W., Abichou, T., McDonald, E.V., Tyler, S.W., & Rock, S.A. (2006a). Field performance of a compacted clay landfill final cover at a humid site. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 132(11), 1393-1403.

Albright, W.H., Benson, C.H., Gee, G.W., Abichou, T., Tyler, S.W., & Rock, S.A. (2006b). Field performance of three compacted clay landfill covers. Vadose Zone Journal, 5, 1157-1171.

Alfnes, E., Kinzelbach, W., & Aagaard, P. (2004). Investigation of hydrogeologic processes in a dipping layer structure , 1. The flow barrier effect. Journal of Contaminant Hydrology, 69, 157-172.

Allen, R.G., Pereira, L.S., Raes, D., & Smith, M. (1998). Crop Evapotranspiration- Guidelines for computing crop water requirements. FAO Irrigation and Drainage Paper 56. Food and Agriculture Organization. Rome, Italie.

Allison, J.D., Brown, D.S., & Novo-Gradac, K.J. (1991). MINTEQA2/PRODEFA2, a geochemical assessment model for environmental systems , version 3.0 User's manual. USEPA, Athens, GO, 115p.

Amyot, G. and Vézina, S. (1997). Flooding as a reclamation solution to an acidic tailings pond – the Solbec case. *In* Proceedings of the 4th International Conference on Acid Rock Drainage, Vancouver, BC, 2, 451-464.

Appelo, C.A.J., & Postma, D. (1994). *Geochemistry, groundwater and pollution*. Balkema Publishers, Rotterdam, NL.

Arya, L.M., & Paris, J.F. (1981). A physico-empirical model to predict the soil moisture – characteristic from particle size distribution and bulk density data. Soil Science Society of America Journal, 45, 1023–1030.

Arya, L.M., Leij, F.J., van Genuchten, M.T., & Shouse, P.J. (1999). Scaling parameter to predict the soil water characteristic from particle-size distribution data. Soil Science Society of America Journal, 63, 510–519.

Assouline, A., Tessier, D., & Bruand, A. (1998). A conceptual model of the soil water retention curve. Water Resour. Res., 34, 223–231.

ASTM D422 (2000). Standard test method for particle-size analysis of soils. ASTM International.

ASTM D854 (2000). Standard test methods for specific gravity of soil solids by water pycnometer. ASTM International.

ASTM D1556 (2007). Standard test method for density and unit weight of soil in place by the sand-cone method. ASTM International.

ASTM D1557 (2000). Standard test methods for laboratory compaction characteristics of soil using modified effort. ASTM International.

ASTM D2434-68. (2000). Standard test method for permeability of granular soils (constant head). ASTM International.

ASTM D3152-72. (2000). Standard test method for capillary-moisture relationships for fine-textured soils by pressure-membrane apparatus (Withdrawn (2007)). ASTM International.

ASTM D5084-90. (1997). Standard test method for measurement of hydraulic conductivity of saturated porous materials using a flexible wall permeameter. ASTM International.

ASTM D5744-96. (1998). Standard test method for accelerated weathering of solid materials using a modified humidity cell. ASTM International.

ASTM D5856-95. (2000). Standard test method for measurement of hydraulic conductivity of porous material using a rigid-wall, compaction-mold permeameter. ASTM International.

ASTM D5887 (2000). Standard test method for measurement of index flux through saturated geosynthetic clay liner specimens using a flexible wall permeameter. ASTM International.

ASTM D6836-02. (2002). Standard test methods for determination of the soil water chararcteristic curve for desorption using a hanging column, pressure extractor, chilled mirror hygrometer, &/or centrifuge. ASTM International.

Atkins, R.J., Hay, D., & Robertson, J. (1997). Shallow water cover design methodology and field verification. *In* Proceedings of the 4th International Conference on Acid Rock Drainage, Vancouver, 1, 211-228.

Aubertin, M., & Chapuis, R.P. (1990). Rapport – Parc à résidus miniers Manitou-Barvue, Projet CDT P1537.

Aubertin, M., Bussière, B. (1991). Rapport final – Etude préliminaire – Evaluation des barrières sèches construites à partir des résidus miniers alcalins. Projet CDT P1610

Aubertin, M., & Chapuis, R.P. (1991). Considérations hydro-géotechniques pour l'entreposage des résidus miniers dans le nord-ouest du Québec. *In* Proceedings of 2ème Conférence Internationale sur la Réduction des Eaux de Drainage Acides, Montréal, QC, Tome III, 1-22.

Aubertin, M., Chapuis, R.P., Aachib, M., Ricard, J.F., Tremblay, L. & Bussière, B. (1994). Cover technology for acidic tailings: Hydrogeological properties of milling wastes used as capillary barrier. 1st Int. Cong. Environmental Geotechnics, Edmonton, 427-432.

Aubertin, M., Chapuis, R.P., Aachib, M., Bussière, B., Ricard, J.F., & Tremblay, L. (1995). Evaluation en laboratoire de barrières sèches construites à partir de résidus miniers. Ecole Polytechnique de Montréal, NEDEM/MEND Projet 2.22.2a.

Aubertin, M., Bussière, B., Aachib, M., Chapuis, R.P, & Crespo, J.R. (1996). Une modélisation numérique des écoulements non saturés dans des couvertures multicouches en sols. Hydrogéologie, 1, 3-13.

Aubertin, M., Aachib, M., Monzon, M., Joanes, A.M., Bussière, B., & Chapuis, R.P. (1997). Etude de laboratoire sur l'efficacité des barrières de recouvrement construites à partir de résidus miniers. Canadian Mine Environment Neutral Drainage, MEND Report 2.22.2b

Aubertin, M., Ricard, J.F., Chapuis, R.P. (1998). A predictive model for water retention curve: Application to tailings from hard-rock mines. Revue canadienne de géotechnique, 35: 55-69.

Aubertin, M., Bussière, B., Monzon, M., Joanes, A.M., Gagnon, D. Barbera, J.M., Aachib, M., Bédard, C., Chapuis, R.P., & Bernier, L. (1999). Etude sur les barrières sèches construites à partir des résidus miniers. Phase II , Essais en place. Rapport de Recherche, Projet CDT P1899. NEDEM/MEND 2.22.2c.

Aubertin, M., Aachib, M., & Authier, K. (2000). Evaluation of diffusive gas through covers with a GCL. Geotextiles and Geomembranes, 18, 1-19.

Aubertin, M., Bussière, B., & Bernier, L. (2002). *Environnement et Gestion des Rejets Miniers*. *Published by* Presses Polytechnique Int.

Aubertin, M., Mbonimpa, M., Bussière, B., & Chapuis, R.P. (2003a). Development of a model to predict the water retention curve using basic geotechnical properties. Rapport EPM-RT-(2003)-01, Ecole Polytechnique de Montréal.

Aubertin, M., Mbonimpa, M., Bussière, B., & Chapuis, R.P. (2003b). A model to predict the unsaturated hydraulic conductivity from basic geotechnical properties. Canadian Geotechnical Journal, 40(6), 1104-1122.

Aubertin, M., Molson, J., Bussière, B., & Dagenais, A.M. (2006). Investigations of layered cover systems acting as oxygen barriers to limit acid mine drainage. 5th ICEG Environmental Geotechnics: Opportunities, Challenges and Responsibilities for Environmental Geotechnics, Thomas H.R. (ed.), 26-30 June 2006, Cardiff UK. Thomas Telford, Vol. 2, 827-835.

Averjanov, S.F. (1950). About permeability of subsurface soils in case of incomplete saturation. English Collection 7, 19–21.

Bain, J.G., Mayer, K.U., Bloes, D.W., Frind, E.O., Molson, J.W., Kahnt, R., & Jenk, U. (2001). Modelling the closure-related geochemical evolution of groundwater at a former uranium mine. J. Contam. Hydrol., 52, 109-135.

Banfield, J.F., & Welch, S.A. (2000). Microbial controls on mineralogy of the environment. *In* Environmental Mineralogy, *Edited by* D.J. Vaughan et R.A. Wogelius, Budapest University Press, Budapest, 2, 173-196.

Banks, D., Younger, P.L., Arnesen, R.T., Iversen, E.R., & Banks, S.B. (1997). Mine-water chemistry , the good, the bad and the ugly. Environ. Geol., 32, 157-173.

Barton, P. (1978). The acid mine drainage. *In* Sulfur in the Environment , Part II , Ecological Impacts. John Wiley and Sons, NY, 313-358.

Batterman, S., Padmanabham, I., & Milne, P. (1996). Effective gas-phase diffusion coefficients in soils at varying water content using a one-flow solvent-based technique. Environ. Sci. Technol., 30(3), 770-778.

Bear, J. (1972). *Dynamics of Fluids in Porous Media*. Dover Publications Inc., NY.

Belzile, N., Maki, S., Chen, Y.W., & Goldsack, D. (1997). Inhibition of pyrite oxidation by surface treatment. Sci. Tot. Environ., 196, 177-186.

Belzile, N., Chen, Y.W., & Li, Y. (2004). A review on pyrrhotite oxidation. Journal of Geochemical Exploration, 84, 65-76.

Bennet, J.W., Harries, J.R., & Ritchie, A.I.M. (1989). Limitations on pyrite oxidation rates set by air transport mechanims. *In* Proceedings of Biohydrometallurgy International Symposium, August 13-18, 1989, Jackson Hole, Australia.

Benson, C.H., Khire, M.V., & Bosscher, P.J. (1993). Final cover hydrologic evaluation , Phase II. Environmental Geotechnics Report, University of Wisconsin at Madison, WI.

Benson, C.H., Bohnhoff, G.L., Ogozalek, A.S., Shackelford, C.D., Apiwantragoon, P., & Albright, W.H. (2005). Field data and model predictions for a monolithic alternative cover. *In* Proceedings of of sessions of the Geo-Frontier (2005) Congress, January (2005), Geotechnical special publication 142.

Benson, C.H., Sawangsuryia, A., Trzebiatowski, B., & Albright, W.H. (2007). Postconstruction changes in the hydraulic properties of water balance cover soils. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 133(4), 349-359.

Benzaazoua, M., Bussière, B., Nicholson, R., Bernier, L. (1998). Geochemical behavior of multilayered cover made of desulphurized mine tailings. In Proc. of Tailings and Mine Waste 98, Balkema, Colorado, 389–398.

Benzaazoua, M., Bussière, B., & Dagenais, A.M. (2001). Comparison of kinetics tests for sulphide mine tailings. *In* Proceedings of Tailings and Mine Waste '01, Balkema, Rotterdam.

Benzaazoua, M., Bernier, L., Bussière, B., Plante, B., & Villeneuve, M. (2002). Rapport d'avancement du projet 2.3.1 , Prédiction du DMA pour la sélection des modes de restauration. Essais de prédiction du DMA , revue de la littérature sur les essais statiques et cinétiques. Chaire CRSNG Polytechnique-UQAT en Environnement et gestion des rejets miniers, Rouyn-Noranda, QC, 51p.

Benzaazoua, M., Bussière, B., Dagenais, A.M., & Archambault, M. (2004). Kinetics tests comparison and interpretation for prediction of the Joutel tailings acid generation potential. Environmental Geology, 46(8), 1086-1101.

Bernier, L.R. (1997). Caractérisation minéralogique et potential d'acidité du résidu minier Manitou, Val d'Or. Rapport Géoberex recherché.

Bierens De Haan, S. (1991). A review of the rate of pyrite oxidation in aqueous systems at low temperature. Earth Sci. Rev., 31, 1-10.

Bird, R.B., Stewart, W.E., & Lightfoot, E.N. (1960). *Transport Phenomena*. *Published by* John Wiley and Sons, New York.

Blight, G.E.. (1997). Interactions between the atmosphere and the Earth. Geotechnique, 47(4), 715-767.

Blight. G.E. (2002). Measuring evaporation from soil surfaces for environmental and geotechnical purposes. Water S.A., 28(4), 381-394.

Blowes, D.W., & Ptacek, C.J. (1994). Chapter 10: Acid-neutralization mechanisms in inactive mine tailings. *In* Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Wastes. *Edited by* D.W. Blowes and J.L. Jambor, 22, 271-292.

Blowes, D.W., Ptacek, C.J., Jambor, J.L. Weisener, C.G. (2003). The geochemistry of acid mine drainage. *In* Environmental Geochemistry - Treatise on Geochemistry, *Edited by* Holland, H.D. et Turekian, K.K., Oxford, 9, 149-204.

BNQ 2560-040 (2002). Travaux de génie civil – Granulats. Bureau de normalisation du Québec.

Boon, M., & Heijnen, J.J. (1998). Chemical oxidation kinetics of pyrite in bioleaching processes. Hydrometallurgy, 48, 27-41.

Borgesen, C.D., Iversen, B.V., Jacobsen, O.H., & Schaap, M.G. (2008). Pedotransfer functions estimating soil hydraulic properties using different soil parameters. Hydrological Processes, 22, 1630-1639.

Bradham, W., & Caruccio, F. (1991). A comparative study of tailings analysis using acid/base accounting, cells, columns and soxhlets. *In* Proceedings of the 2nd Int. Conf. on the Abatement of Acidic Drainage, Montréal, QC, 1, 157-173.

Brion, D. (1980). Etudes par spectroscopie de photoelectrons de la dégradation superficielle de FeS2, CuFeS2, ZnS et PbS à l'air et dans l'eau. Applic. Surf. Sci., 5, 133-152.

Brooks, R.H., & Corey, A.T. (1964). Hydraulic properties of porous media. Colorado State University, Fort Collins, Colo. Hydrology Paper No. 3.

Brooks, P.D., Schmidt, S.K., & Willams, M.W. (1997). Winter production of CO_2 and N_2O from alpine tundra, environmental controls and relationship to inter-system C and N fluxes. Oecologia, 110, 403–413.

Brown, A.D., & Jurinak, J.J. (1989). Mechanism of pyrite oxidation in aqueous mixtures. J. Environ. Qual., 18, 545-550.

Bruckler, L., Bale, B.C., & Renault, P. (1989). Laboratory estimation of gas diffusion coefficient and effective porosity in soils. Soil Sci., 147(1), 1-10.

Buckingham, E. (1904). Contributions to our knowledge of the aeration of soils. USDA Bur. Soil Bull. 25. U.S. Gov. Print. Office, Washington, DC.

Bump, A.C., Murphy, C.L., & Everett, L.G. (1992). A comparison of three functional forms for representing soil moisture characteristics. Ground Water, 30, 177–185.

Burdine, N.T. (1953). Relative permeability calculations from pore size distribution data. Trans. AIME, 198, 71–77.

Burns, R.G., & Fisher, D.S. (1990). Iron-sulfur mineralogy of Mars, magmatic evolution and chemical weathering products. J. Geophys. Research, 95, 14415-14421.

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., Nicholson, R., Aubertin, M., & Servant, S. (1997a). Effectiveness of covers built with desulphurized tailings, Column tests investigation. *In* Proceedings, the 4th International Conference on Acid Rock Drainage, 2, 763-778.

Bussière, B., Nicholson, R., Aubertin, M., & Benzaazoua M. (1997b). Evaluation of the effectiveness of covers built with desulphurized tailings for preventing acid mine drainage. In Proceedings, the 50th Canadian Geotechnical Conference. Canadian Geotechnical Society, Ottawa, ON, 1, 17-25.

Bussière, B., Benzaazoua, M., Aubertin, M., Lelièvre, J, Bois, D., & Servant, S. (1998). Valorisation des résidus miniers. Une approche intégrée. Phase II. Rapport final URSTM-UQAT. Ministère des Ressources Naturelles du Québec, 194p.

Bussière, B., Aubertin, M., & Julien, M. (2001). Couvertures avec effets de barrière capillaire pour limiter le drainage minier acide , aspect théoriques et pratiques. Vecteur Environnement, 34(3), 37-50.

Bussière, B., Benzaazoua, M., Kongolo, M., & Aubertin, M. (2002a). Intégration de la désulfuration dans la restauration des sites miniers générateurs de DMA. In Proceedings of the 1st Symposium sur l'Environnement et les Mines, (2005), Rouyn Noranda, QC.

Bussière, B., Dagenais, A.M., Mbonimpa, M., & Aubertin, M. (2002b). Modification of oxygen-consumption testing for the evaluation of oxygen barrier performance. *In* Proceedings of the 55th Canadian Geotechnical Conference and 3rd joint IAH-CNC/CGS Conferences, (2002), Niagara Falls, ON.

Bussière, B., Aubertin, M. & Chapuis, R.P. (2003). The behavior of inclined covers used as oxygen barriers. Canadian Geotechnical Journal, 40(3), 512-535.

Bussière, B., Benzaazoua, M., Aubertin, M., & Mbonimpa, M. (2004). A laboratory study of covers made of low-sulphide tailings to prevent acid mine drainage. Environmental Geology, 45(5), 609-622.

Bussière, B., Maqsoud, A., Aubertin, M., Martschuk, J., McMullen, J., & Julien, M. (2006). Performance of the oxygen limiting cover at the LTA site, Malartic, Quebec. CIM Bulletin, 1(6), 1-11.

Bussière, B., Aubertin, M., Mbonimpa, M., Molson, J., & Chapuis, R.P. (2007). Field experimental cells to evaluate the hydrogeological behaviour of oxygen barriers made of silty materials. Canadian Geotechnical Journal, 44(3), 1-22.

Bussière, B., Maqsoud, A., Demers, I., Aubertin, M. and Chapuis, R.P. (2011). Modélisation physique de divers scénarios de recouvrement et étude du comportement hydrogéologique: Site Manitou, Rapport Final présenté au MRNF, 144p. (en préparation).

Cabral, A., Lefèbvre, G., Proulx, M.F., Audet, C., Labbe, M., & Michaud, C. (1997). Use of deinking residues as cover material in the prevention of AMD generation at an abandoned mine site. *In* Proceedings of Tailings and Mine Waste 97, Balkema, 257-266.

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.

Carman, P.C. (1956). *Flow of Gas Through Porous Media*. Academic Press, Inc., New York.

Caron, D., Poirier, P., & Maurice, R. (2005). Les Mines Selbaie : Restauration progressive d'un site générateur de drainage minier acide. In Proceedings of 2e Symposium sur l'Environnement et les Mines, March 15-18, 2005, Rouyn Noranda, QC.

Catalan, L.J.J., Buset, K.C., & Yin, C. (2002). Reactivity of oxidized sulfidic mine tailings during lime treatment. Environ. Sci. Technol., 36, 2766-2771.

Cathles, L.M., Schlitt, W.J. (1980). A model of the dump leaching process that incorporates oxygen balance, heat balance, & two dimensional air convection. *In* Proceedings of the Leaching and Recovering Copper from As-Mined Materials Symposium, 26 Fev, 1980, Las Vegas, NV, 9–27.

Chapuis, R.P., & Aubertin, M. (2003). On the use of the Kozeny-Carman equation to predict the hydraulic conductivity of soils. Canadian Geotechnical Journal, 40(3), 616-628.

Chapuis, R.P., & Légaré, P.P. (1992). A simple method for determining the surface area of fine aggregates and fillers in bituminous mixtures. *In* Effects of aggregates and mineral filler on asphalt mixture performance. American Society for Testing and Materials (ASTM), Special Technical Publication (STP), 1147, 177–186.

Chapuis, R.P., Crespo, J.R., Chenaf, D. et Aubertin, M. (1993). Evaluation of a groundwater F.E.M. software for steady and unsteady state conditions. *In* Proceedings of the 46th Canadian Geotechnical Conference, Saskatoon, SK, 61-70.

Chapuis, R.P., Chenaf, D., Bussière, B., Aubertin, M., & Crespo, R.J. (2001). A user's approach to assess numerical codes for saturated and unsaturated seepage conditions. Canadian Geotechnical Journal, 38(5), 1113-1126.

Childs, E.C., Collis-George, G.N. (1950). The permeability of porous materials. *In* Proceedings of the Royal Society of London, Series A, 201, 392-405.

Choo, L.P., & Yanful, E.K. (2000). Water flow through cover soils using modeling and experimental methods. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 126(4), 324-334.

Christensen, D., Barbour, S.L., O'Kane, M., & Meiers, G. (2002). Long-term performance of dry cover systems for reactive mine waste. *In* Proceedings of the 1st Symposium sur l'Environnement et les Mines, (2005), Rouyn Noranda, QC.

Cissokho, F. (2007). Études numériques des effets de la configuration des couvertures à effets de barrières capillaires inclinées sur la diffusion de l'oxygène. Mémoire de Maîtrise, École Polytechnique de Montréal-UQAT.

CRI - Coastech Research Inc. (1991). Acid rock drainage prediction manual. Canadian Mine Environment Neutral Drainage, MEND Report 1.61.1b

Collin, M. (1987). Mathematical modeling of water and oxygen ransport in layered soil covers for deposits of pyritic mine tailings. Licenciate Treatise. Royal Institute of Technology, Department of Chemical Engineering, Stockholm, Suède.

Collin, M., & Rasmuson, A. (1988). A comparison of gas diffusivity models for unsaturated porous media. Soil Sci. Soc. Am. J., 52, 1559–1565.

Collin, M., & Rasmuson, A. (1990). Mathematical modeling of water and oxygen transport in layered soil covers for depositfs of pyritic mine tailings. Acid mine drainage , Designing for closure. GAC-MAC Annual Meeting, 311-333.

Corey, A.T. (1957). Measurement of water and air permeability in unsaturated soil. Soil Sci. Soc. Am. Proc., 21, 7-10.

Cosset, G. (2009). Comportement hydrogéologique d'une couverture monocouche sur des résidus miniers sulfureux : essais en colonne et simulations numériques. Mémoire de Maîtrise, Département CGM, Ecole Polytechnique de Montréal, 217p.

Cosset, G., & Aubertin, M. (2010). Physical and numerical modelling of a monolayer cover placed on reactive tailings. Proceedings of 63rd Canadian Geotechnical Conference & 1st Joint CGS/CNC-IPA Permafrost Specialty Conference, 12-16 September 2010, Calgary, AB, pp. 1197-1204.

Crank, J. (1975). *The Mathematics of Diffusion*. Oxford University Press, NY.

Crawford, J.W. (1994). The relationship between structure and the hydraulic conductivity of soil. Eur. J. Soil Sci., 45, 495-501.

Crespo, J.R. (1994). Modélisation des écoulements à travers les ouvrages de retenue et de confinement de résidus miniers par un logiciel d'éléments finis. Mémoire de maîtrise, Département Génie minéral, École Polytechnique de Montréal.

Crundwell, F.K. (2003). How do bacteria interact with minerals. Hydrometallurgy, 71, 75-81.

Cui, Y.J., & Zornberg, J.G. (2008). Water balance and evapotranspiration monitoring in geotechnical and geoenvironmental engineering. Geotech. Geol. Eng.

Dagenais, A.M. (2005). Techniques de contrôle du drainage minier acide basées sur les effets capillaires. Thèse de Doctorat, Département CGM, Ecole Polytechnique de Montréal.

Dagenais, A.M., Aubertin, M., Bussière, B., CYR, J., & Fontaine, R. (2002). Auscultation et suivi du recouvrement multicouche construit au site minier Lorraine, Latulipe, Québec. *In* Proceedings of Symposium (2002) sur l'Environnement et les Mines, November 3-5, (2002), Rouyn Noranda, QC.

Dagenais, A.M., Aubertin, M. & Bussière, B. (2006). Parametric study on the water content profiles and oxidation rates in nearly saturated tailings above the water table. In Proceedings of the 7th ICARD, St-Louis.

Dahwood, I. & Aubertin, M. (2009). A numerical investigation of the influence of internal structure on the unsaturated flow in a large waste rock pile. In Proceedings of the 62st Canadian Geotechnical Conference & 10th Joint CGS/IAH-CNC Groundwater Conference, Halifax, NS.

Daniel, D.E., Koener, R.M. (1993). Cover systems. *Geotechnical Practice for Waste Disposal* Daniel, D.E. (ed.). Chapman & Hall.

Davies, G.B., Ritchie, A.I.M.. (1986). A model of oxidation in pyritic mine wastes , I. Equations and approximated solutions. Appl. Math. Model., 10, 314–322.

Day, S.D., T. Higgs, & M. Paine. (1996). Guide for Predicting Water Chemistry from Waste Rock Piles. Canadian MEND Report 1.27.1a.

Delage, P., & Cui, Y.J. (2000). L'eau dans les sols non saturés. Techniques de l'Ingénieur, 1, C301.1-C301.20.

Delleur, J.W. (1999). The Handbook of Groundwater Engineering. CRC Press.

Demers, I. (2008). Performance d'une barrière à l'oxygène constituée de résidus miniers faiblement sulfureux pour contrôler la production de drainage minier acide. Doctoral Thesis, UQAT, Rouyn-Noranda, QC.

Demers, I., Bussière, B., Benzaazoua, M., Mbonimpa, M., & Blier, A. (2008a). Column test investigation on the performance of monolayer covers made of desulphurized tailings to prevent acid mine drainage. Mineral Engineering, 21, 317-329.

Demers, I., & Bussière, B. (2008b). Repeatibility evaluation of instrumented column tests in acid mine drainage prediction and cover efficiency evaluation. *In* Proceedings of GeoEdmonton ’08, 61th Canadian Geotechnical and 9th Joint IAH-CNC and CGS Groundwater Specialty Conferences, September 21-24, (2008), Edmonton, AB.

Demers, I., Bussière, B., Mbonimpa, M., & Benzaazoua, M. (2009). Oxygen diffusion and consumption in low sulphide tailings covers. Can. Geotech. J., 46, 454–469.

Demers, I., Bussière, B., Aachib, M., & Aubertin, M. (2010a). Repeatability evaluation of instrumented column tests in cover efficiency evaluation for the prevention of acid mine drainage, Water Air Soil Pollut., Nov. 2010, pp. 1-16.

Demers, I., Molson, J., & Bussière, B. (2010b). Numerical modelling of contaminated neutral drainage from a waste rock field test plot. Proceedings of 63rd Canadian Geotechnical Conference & 1st Joint CGS/CNC-IPA Permafrost Specialty Conference, 12-16 September 2010, Calgary, AB, pp. 1137-1144.

Doughty, C. (2007). Modeling geologic storage of carbon dioxide, Comparison of non-hysteretic and hysteretic characteristic curves. Energy Convers. Manage., 48, 1768–1781.

Doye, I. (2005). Évaluation de la capacité de matériaux industriels alcalins à neutraliser des résidus et stériles miniers acides. Doctoral Thesis, Programme interuniversitaire en sciences de la terre, Université Laval, Québec, QC.

Dwyer, S.F. (2003). Water balance measurements and computer simulations of landfill covers. Ph.D. Thesis, University of New Mexico, NM.

Dye, R.F., & Dallavalle, J.M. (1958). Diffusion of gases in porous media. Ind. Eng. Chem., 50, 1195-1200.

Dzombak, D.A., & Morel, F.F. (1990). Surface complexation modeling – Hydrous ferric oxide. John Wiley and Sons, NY.

Edwards, K.J., Bond, P.L., Druschel, G.K., McGuire, M.M., Hamers, R.J., & Banfield, J.F. (2000). Geochemical and biological aspects of sulfide mineral dissolution , lessons from Iron Mountain, California. Chem. Geol., 169, 383-397.

Elberling, B. (2005). Temperature and oxygen control on pyrite oxydation in frozen mine tailings. Cold Regions Science and Technology, 41, 121-133.

Elberling, B., & Damgaard, L.R. (2001). Microscale measurements of oxygen diffusion and consumption in subaqueous sulfide tailings. Geochimica and Cosmochimica Acta, 65(12), 1897-1905.

Elberling, B., & Nicholson, R.V. (1996). Field determination of sulphide oxydation rates in mine tailings. Water Resources Research, 32(6), 1773-1784.

Elberling, B., Nicholson, R.V., & David, D.J. (1993). Field evaluation of sulphide oxidation rates. Nordic Hydrology, 24(5), 323-338.

Elberling, B., Nicholson, R.V., Reardon, E.J., & Tibble, P. (1994). Evaluation of sulphide oxidation rates , a laboratory study comparing oxygen fluxes and rates of oxidation product release. Can. Geotech. J., 31, 375-383.

Elsenbeer, H. (2001). Editorial, Pedotransfer fuctions in hydrology. Journal of Hydrology (Special Issue), 251(3–4), 121–122.

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), 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, Ecole Polytechnique de Montréal, QC.

Fayer, M.J. (2000). UNSAT-H version 3.0 , Unsaturated soil water and heat flow model, Pacific Northwest Laboratory, Richland, USA.

Fayer, M.J.Rockhold, M., & Campbell, M. (1992). Hydrologic modeling of protective barriers , comparison of field data and simulation results. Soil Sci. Soc. Am. J., 56(3), 690-700.

Fayer, M.J., & Gee, G.W. (1997). Hydrologic models tests for landfill covers unsing field data. *In* Proceedings of Landfill Capping in the Semi-Arid West , Problems, Perspectives and Solutions Conference, Idaho Falls, May 21-22, (1997), 53-68.

Ferguson, K.D., & Morin, K.A. (1991). The prediction of acid rock drainage , Lessons from the data base. *In* Proceedings of the 2nd Int. Conf. on the Abatement of Acidic Drainage, Montréal, QC, 3, 83-106.

Filipilek, L.H., van Wyngarden, T.J., Papp, C.S.E., & Curry, J. (1999). A multi-phased approach to predict acid production from porphyry copper-gold waste rock in an arid montane environment. *In* The Environmental Geochemistry of Mineral Deposits , Part B , Case Studies and Research Topics. Rev. Econ. Geol., 6B, 433-445.

Finsterle, S., Doughty, C., Kowalsky, M.B., Moridis, G.J., Pan, L., Xu, T., Zhang, Y., & PRUESS, K. (2008). Advanced vadose zone simulations using Tough. Vadose Zone Journal, 7(2), 601-609.

Fisher, D.S., & Burns, R.G. (1990). Pyrrhotite oxidation , mechanism of acid weathering. Geol. Soc. Am. Ann. Meeting Program Abstract, 22, 207.

Flann, R.C., & Lucaszewski, G.M. (1970). The oxydation of pyrrhotite in ores and concentrates. Presentation at Austral. Inst. Mining Mettal., Tennant Creek, Austalie.

Flegg, P.B. (1953). The effect of aggregation on diffusion of gases and vapors through soils. J. Sci. Food Agric., 4, 104-108.

Fowler, T.A., Holmes, P.R., & Crundwell, F.K. (2001). On the kinetics and mechanics of the dissolution of pyrite in the presence of thiobacillus ferrooxidans. Hydrometallurgy, 59, 257-270.

Fredlund, D.G., & Rahardjo, R. (1993). *Soil Mechanics for Unsaturated Soils*. Wiley, New York.

Fredlund, D.G., Xing, A., & Huang, S. (1994). Predicting the permeability function for unsaturated soils using the soil–water characteristic curve. Canadian Geotechnical Journal, 31, 533–546.

Frind, E.O., & Molson, J.W. (1994). Chapter 2 , Modelling multicomponent reactive transport in groundwater. In Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Wastes. Edited by D.W. Blowes and J.L. Jambor.

Fuentes, C., Vauclin, M., Parlange, J.I., & Haverkamp, R. (1996). A note on the soil-water conductivity of a fractal soil. Transp. Porous Media, 23, 31-36.

Furman, A. (2008). Modeling coupled sufrace-subsurface flow processes , a review. Vadose Zone Journal, 7(2), 741-756.

Gandola, F., Debionne, S., Varado, N., Haverkamp, R., Ross, P.J., Sander, G., & Parlange, J.Y. (2004). Simple soil water hysteresis prediction model based on theory and geometric scaling. Proc. of EGU Conference, 6.

Gardner, W.R. (1958). Some steady state solutions of unsaturated moisture flow equations with application to evaporation from a water table. Soil Sci., 85, 228–232.

Garrels, R.M., & Thompson, M.E. (1960). Oxidation of pyrite by iron sulfate solutions. American Journal of Soil Science, 258-A, 57-67.

Gee, G.W., Benson, C.H., & Albright, W.H. (2006). Comments on « Evaluation of evapotranspirative covers for waste containment in arid and semiarid regions in the Southwestern USA ». Vadose Zone Journal, 5(2), 809-812.

GeoSlope Int. (2008). Vadose/W User's Manual, Third Edition. Copyright 1991-2005. Geo-Slope Ltd. Calgary, Alberta, Canada.

Gerke, H.H., Frind, E.O., & Molson, J.W. (1998). Modelling the effect of chemical heterogeneity on the acidificationand solute leaching in overburden mine spoils. J. Hydrol., 209, 166-185.

Gimenez, D., Allmaras, R.P., Huggins, D.R., & Nater, E.A. (1997a). Prediction of the saturated hydraulic conductivity-porosity dependence using fractals. Soil Sci. Soc. J. Am., 61, 1285-1292.

Gimenez, D., Perfect, E., Rawls, W.J., & Pachepsky, Y. (1997b). Fractal models for predicting soil hydraulic properties , a review. Engineering Geology, 48, 161-183.

Glauz, R.D., & Rolston, D.E. (1989). Optimal design of two-chamber gas diffusion cell. Soil Sci. Soc. Am. J., 53,1619-1624.

Gleisner, M., Herbert, R.B., & Frogner Kockum, P.C. (2006). Pyrite oxidation by A. ferrooxidans at various concentrations of dissolved oxygen. Chemical Geology, 225, 16-29.

Goldhaber, M.B. (1983). Experimental study of metastable sulfur oxyanion formation during pyrite oxidation at pH 6-9 and 30°C. Am. J. Sci., 283, 193-217.

Goodman, A.E., Babij, T., & Ritchie, A.I.M. (1983). Leaching of a sulphide ore by Thiobacillus ferrooxidans under anaerobic conditions. In Rossi, G., Torma, A.E. (Eds.), Progress in Biohydrome-tallurgy. Associazionen Mineraria Sarde, Iglesias, pp. 361– 376.

Gosselin, M. (2007). Etude de l'influence des caractéristiques hydrogéochimiques des résidus miniers réactifs sur la diffusion et la consommation de l'oxygène. Mémoire de maîtrise, Département des Génies Civil, Géologique et des Mines, École Polytechnique de Montréal, 216p.

Gosselin, M., Mbonimpa, M., Aubertin, M., & Martin, V. (2007). An investigation of the effect of the degree of saturation on the oxygen reaction rate of sulphidic tailings. *In* Proceedings of ERTEP (2007) - First International Conference on Environmental Research, Technology and Policy Building Tools and Capacity for Sustainable Production, July 17-19, (2007), Accra, GHANA..

Gould, W.D., Béchard, G., & Lortie, L. (1994). Chapter 7 , The nature and role of microorganisms in the tailings environment. *In* Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Wastes. *Edited by* D.W. Blowes and J.L. Jambor.

Gray, J.E., Meier, A.L., O'Leary, R.M., Outwater, C., & Theodorakos, P.M. (1996). Environmental geochemistry of mercury deposits in southwestern Alsaka – mercury contents in fish, stream-sediment, & stream-water samples. *In* U.S. Geological Survey Bulletin, 2152, 17-29.

Green, W.H., & Ampt, G.A. (1911). Studies on soil physics , I. Flow of air and water through soils. J. Agric. Sci., 4, 1-24.

Green R.E., Corey J.C. (1971). Calculation of hydraulic conductivity , a further evaluation of some predictive methods. Soil Science Society of America Proceedings, 35, 3-8.

Groenevelt, P.H., & Grant, C.D. (2004). A new model for the soil water retention curve that solves the problem of residual water contents. Eur. J. Soil Sci., 55, 479–485.

Gunsinger, M.R., Ptacek, C.J., Blowes, D.W., & Jambor, J.L. (2006). Evaluation of long-term sulfide oxidation processes within pyrrhotite-rich tailings, Lynn Lake, Manitoba. Journal of Contaminant Hydrology, 83, 149-170.

Hakkou, R., Benzaazoua, M., & Bussière, B. (2008). Acid mine drainage potential in the Kettara abandoned mine (Morocco) , Part 1, Environmental characterization. Mine water and Environment, 27(3), 145-159.

Hakkou, R., Benzaazoua, M., & Bussière, B. (2008). Acid mine drainage potential in the Kettara abandoned mine (Morocco), Part 2, Mine waste geochemical behavior. Mine Water and Environment, 27(3), 160-170.

Hargreaves, G.H., & Samani, Z.A. (1985). Reference crop evapotranspiration from temperature. Transaction of ASAE, 1(2), 96-99.

Haverkamp, R., & Parlange, J.-Y. (1986). Predicting the water retention curve from particle size distribution: 1. Sandy soils without organic matter. Soil Science, 142, 325–339.

Haverkamp, R., Kutilek, M., Parlange, J.Y., Rendon, L., & Krejca, M. (1988). Infiltration under ponded conditions , 2. Infiltration equations tested for parameter time-dependence and predictive use. Soil Sci., 145, 317-329.

Haverkamp, R., Parlange, J.Y., Starr, J.L., Schmitz, G., & Fuentes, C. (1990). Infiltration under ponded conditions. 3. A predictive equation based on physical parameters. Soil Sci., 149, 292-300.

Haverkamp, R., Bouraoui, F., Zammit, C., & Angulo-Jaramillo, R. (1999). Soil properties and moisture movement in the unsaturated zone. In The handbook of groundwater engineering. Edited by J.W. Delleur, CRC Press, New York. 5.1–5.47.

Haverkamp, R., Reggiani, P., Ross, P.J., & Parlange, J.Y. (2002). Soil water hysteresis perdiction model based on theory and geometric scaling. Environmental Mechanics. Water, Mass and Energy Transfer in the Biosphere, Geophysical Monograph Series, 129.

Hazen, A. (1911). Discussion of dams on sand foundations, Transactions, American Society of Civil Engineers, 73, 199–203.

Hecht, H., & Kolling, M. (2002). Investigation of pyrite-weathering processes in the vadose zone using optical oxygen sensors. Environmental Geology, 42, 800-809.

Heidel, C., & Tichomirowa, M. (2010). The role of dissolved molecular oxygen in abiotic pyrite oxidation under acid pH conditions. Applied Geochemistry, 25, 1664-1675.

Heidel, C., & Tichomirowa, M. (2011). The isotopic composition of sulfate from anaerobic and low oxygen pyrite oxidation experiments with ferric iron. Chemical Geology, 281, 305-316.

Henry, E.J. (2007). Analytical and numerical modeling assessment of capillary barrier performance degradation due to contaminant-induced surface tension reduction. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 133(2), 231-236.

Hers, I., Zapf-Gilje, R., Li, L;, & Atwater, J. (2000). Measurement of in situ gas-phase diffusion coefficients. Environ. Technol., 21, 631-640.

Hillel, D. (1998). Environmental Soil Physics. Academic Press.

Hogarth, W., Hopmans, J. and Parlange, J-Y. (1988). Application of a simple soil water hysteresis model. J. Hydrol., 98, 21-29.

Holtan, H.N. (1961). Concept for infiltration estimates in watershed engineering. USDA Res. Ser. Publ., 41-51.

Horton, R.E. (1940). An approach towards a physical interpretation of infiltration capacity. Soil Sci. Soc. Am. Proc., 5, 399-417.

Hutchison, I.P.G., & Ellison, R.D. (1992). *Mine Waste Management, A Resource for Mining Industry Professionals, Regulators and Consulting Engineers*. Lewis Publishers.

Irmay, S. (1954). On the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Trans. Amer. Geophys. Union, 35, 463–467.

Jambor, J.L. (1994). Chapter 3 , Mineralogy of sulfide-rich tailings and their oxidation products. *In* Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Wastes. *Edited by* D.W. Blowes and J.L. Jambor.

Jambor, J.L., & Blowes, (1998). Theory and applications of mineralogy in environmental studies of sulfide-bearing mine tailings. In Modern Approaches to Ore and Environmental Mineralogy, Edited by L.J. Cabri et D.J. Vaughan, 27, 376-401.

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 Apects of Mine Wastes. *Edited by* J.L. Jambor, D.W. Blowes, & A.I.M. Ritchie.

Janzen, M.P., Nicholson, R.V., Scharer, J.M. (2000). Pyrrhotite reaction kinetics , reaction rates for oxidation by oxygen, ferric iron, & for nonoxidative dissolution. Geochim. Cosmochim. Acta, 64, 1511–1522.

Jaynes, D.B. (1983). Atmosphere and temperature within a reclaimed coal-stripmine and a numerical simulation of acid mine drainage from stripmides lands. PhD Thesis, Penn. St., 198p.

Jellick, G.J., & Schanbel, R.R. (1986). Evaluation of a field method for determining the gas diffusion coefficient in soils. Soil Sci. Soc. Am. J., 50, 18-23.

Jensen, M.E, Burman, R.D., & Allen, R.G. (1990). Evapotranspiration and irrigation water requirements. ASCE Manuals and Reports of Engineering Practice, No. 70. New York, ASCE.

Joanes, A.M. (1999). Une analyse hydrogéochimique de l'efficacité de recouvrement multicouches pour le drainage minier acide Mémoire de maîtrise (M.Sc.A), Département de Génie Civil Géologique et des Mines, Ecole Polytechnique de Montréal, QC, 208p.

Journeaux, Bédard et assoc. inc. (2004). Rapport S-04-1518 – Etude de préfaisabilité, plan de remplissage du site Norebec-Manitou – Projet Goldex.

Journeaux, Bédard et assoc. inc. (2005). Rapport S-04-1619 – Evaluation comparative, niveau de préfaisabilité, méthodes de restauration alternatives – Site minier Norebec-Manitou.

Journeaux, Bédard et assoc. inc. (2007). Rapport S-04-1851 – Rapport de conception – Parc minier Manitou – Projet Goldex-Manitou, Val d'Or, Québec.

Jurjovec, J., Ptacek, C.J., & Blowes, D.W. (2002). Acid neutralization mechanisms and metal release in mine tailings, A laboratory column experiment. Geochemica and Cosmochimica Acta, 66(9), 1511-1523.

Jurjovec, J., Blowes, D.W., Ptacek, C.J., & Mayer, K.U. (2004). Multicomponent reactive transport modeling of acid neutralization reactions in mine tailings. Water Resour. Res., 40, 11p.

Kakovsky, I.A., & Kosikov, Y.M. (1975). Study of the kinetics of oxidation of some sulfide minerals. Obogashch. Rud., 20, 18-21.

Katayama, Y., & Kuraishi, H. (1978). Characteristics of Thiobacillus thioparus and its thiocyanate assimilation. Can. J. Microbiol., 24, 804-810.

Kawamoto, K., Moldrup, P., Schjonning, P., Iversen, B.V., Rolston, D.E., & Komatsu, T. (2006b). Gas transport parameters in the vadose zone , gas diffusivity in field and lysimeters soil profiles. Vadose Zone Journal, 5, 1194-1204.

Keith, C.N., & Vaughan, D.J. (2000). Mechanisms and rates of sulphide oxidation in relation to the problmes of acid rock (mine) drainage. *In* Environmental Mineralogy , Microbial Interactions, Anthropogenic Influences, Contaminated Land and Waste Management. The Mineralogical Society Series, 9, 117-140.

Kellns, C., Barbour, L, & Qualizza, C. (2007). Preferential flow in a reclamation cover, hydrological and geochemical response. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 133(10), 1277-1289.

Kelly, D.P., & Harrison, A.P. (1989). Genus Thiobacillus Beijerinck. *In* Bergey.s Manual of Systematic Bacteriology, 3, 1842-1858.

Kelly, D.P., & Wood, A.P. (2000). Reclassification of some species of Thiobacillus to the newly designated genera Acidithiobacillus gen. nov., Halothiobacillus gen. nov., & Thermithiobacillus gen. nov. Int. J. Syst. Evol. Microbiol. 50, 511–516.

Khire, M.V., Benson, C.H., & Bosscher, P.J. (2000). Capillary barriers , design variables and water balance. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, 126(8), 695-708.

Kim, H., & Benson, C.H. (2004). Contributions of advective and diffusive oxygen transport through multilayer composite caps over mine waste. J. Contam. Hydrol., 71, 193–218.

Klein, C., & Hurlbut, C.S. (1999). *Manual of Mineralogy*, 21st Edition. John Wiley & Sons.

Kleinmann, R.L.P, Crera, D., & Pacelli, R.R. (1981). Biogeochemistry of acid mine drainage and a method to control acid formation. Mining Eng., 33, 300-306.

Klute, A. (1986). Water retention , laboratory methods. *In* Methods of soil analysis, part I. Physical and mineralogical methods. 2nd ed. *Edited by* A. Klute. Agronomy Monograph No. 9, American Society of Agronomy. Soil Science Society of America, Madison Wis. 635–662.

Kohn, J.M., Mohanty, B.P., & Simunek, J. (2006). Inverse dual-permeability modeling of preferential water flow in a soil column and implications for field-scale solute transport. Vadose Zone Journal, 5, 59-76.

Kostiakov, A.N. (1932). On the dynamics of the coefficient of water-percolation in soils and on the necessity of studying it from a dynamic point of view for purposes of amelioration. *In* Proceedings of Trans. 6th Comm. Intl. Soc. Soil Sci., A, 17-21.

Kosugi, K. (1994). Three-parameter lognormal distribution model for soil water retention. Water Resour. Res., 30, 891–901.

Kosugi, K. (1996). Lognormal distribution model for unsaturated soil hydraulic properties. Water Resour. Res., 32, 2697–2703.

Kosugi, K. (1997). A new model to analyze water retention characteristics of forest soils based on soil pore radius distribution. J. For. Res., 2, 1–8.

Kosugi, K. (1999). General model for unsaturated hydraulic conductivity for soils with log-normal pore-size distribution. Soil Sci. Soc. Am. J., 63, 270–277.

Kovacs, G. (1981). *Seepage hydraulics*. Elsevier Science Publishers, Amsterdam.

Kozeny, J. (1953). *Hydraulics*. Elsevier Scientific Publication, Amsterdam.

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.

Lal, R. & Shukla, M.K. (2004). *Principles of Soil Physics*. Marcel Dekker, New York. 716 pp.

Lappako, K. (1994). Evaluation of neutralization potential determination for metal mine wastes and a proposed alternative. In Proceedings of International Land Reclamation and Mine Drainage Conference and the Third International Conference on the Abatement of Acidic Drainage, SP 06A-94, 129-137.

Lawrence, R.W., Poling, G.P., & Marchant, P.B. (1989). Investigation of predictive techniques for acid mine drainage. Report on DSS Contract, Energy Mines and Resources, Canada, MEND Report 1.61.1a.

Lawrence, R.W., & Wang, Y. (1997). Determination of neutralization potential in the prediction of acid rock drainage. *In* Proceedings of the 4th Int. Conf. On Acid Rock Drainage. MEND, NRC, Ottawa, ON, 1, 451-464.

Leduc, L.G., & Ferroni, G.D. (1994). The chemolithotrophic bacterium Thiobacillus ferrooxidans. FEMS Microbil. Rev., 14, 103-120.

Lefèbvre, R. (1994). Caractérisation et modélisation numérique du drainage minier acide dans les haldes à stériles. Thèse de Doctorat, Université Laval, Québec.

Lefèbvre, S., Hockley, D., Smolensky, J., & Gelinas, P. (2001a). Multiphase transfer processes in waste rock piles producing acid mine drainage – 1 , Conceptual model and system characterization. Journal of Contaminant Hydrology, 52, 137-164.

Lefèbvre, S., Hockley, D., Smolensky, J., & Gelinas, P. (2001b). Multiphase transfer processes in waste rock piles producing acid mine drainage – 2 , Applications of numerical simulation. Journal of Contaminant Hydrology, 52, 165-186.

Lehner, S., Savage, K., Ciobanu, M., & Cliffel, D.E. (2007). The effect of As, Co, and Ni impurities on pyrite oxidation kinetics. Geochimica and Cosmochimica Acta, 71, 2491-2509.

Leong, E.C., & Rahardjo, H. (1997a). Permeability functions for unsaturated soils. Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, ASCE, 123(12), 1118–1126.

Leong, E.C., & Rahardjo, H. (1997b). Review of soil-water characteristic curve functions, Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, ASCE, 123(12), 1106–1117.

Li, M.G. (1997). Neutralization potential versus observed mineral dissolution in humidity cell tests for Louvicourt Tailings. *In* Proceedings of the 4th International Conference on Acid Rock Drainage, Vancouver, BC.

Lin, Z., & Herbert, R.B. (1997). Heavy metal retention in secondary precipitates from a mine rock dump and underlying soil. Environ. Geol., 33, 1-12.

Liu, H.H., & Illangasekare, T.H. (2008). Preface , Recent advances in modeling multiphase flow and transport with the Tough family of codes. Vadose Zone Journal, 7(1), 284-286.

Lottermoser, B.G. (2010). Mine Wastes : Characterization, Treatment and Environmental Impacts. Third Edition. Springer Heidelberg Dordrecht London New York.

Lowson, R.T. (1982). Aqueous oxidation of pyrite by molecular oxygen. Chemical Reviews, 82(5), 461-497.

Lu, N., & Likos, W.J. (2004). *Unsaturated Soil Mechanics*. John Wiley and Sons, New York, 556p.

Lundgren, T. (2001). The dynamics of oxygen transport into soil covered mining waste deposits in Sweden. Journal of Geochemical Exploration, 74, 163-173.

Luther, G. W. (1987). Pyrite oxidation and reduction: Molecular orbital theory considerations. Geochim. Cosmochim. Acta 51, 3193–3199.

Lyric, R.M., & Suzuki, I. (1970a). Enzymes involved in the metabolism of thiosulfate by Thiobacillus thioparus. II. Properties of adenosine-5'-phosphosulfate reductase. Can. J. Biochem., 48, 344-354.

Lyric, R.M., & Suzuki, I. (1970b). Enzymes involved in the metabolism of thiosulfate by Thiobacillus thioparus. I. Survey of enzymes and properties of sulfite , cytochrome C oxideructase. Can. J. Biochem., 48, 334-343.

MacKay, P.L., Yanful, E.K., Rowe, R.K., & Badv, K. (1998). A new apparatus for measuring oxygen diffusion and water retention in soils. Geotechnical Testing Journal, 21(4), 289-296.

Maest, A.S., Kuipers, J.R., Travers, C.L., & Atkins, D.A. (2005). Predicting water quality at hard rock mine , Methods and models, uncertainties and state-of-the-art. *Edited by* Kuipers and Associates and Buka Environmental, *Published by* Earthworks, Washington, DC.

Mahrt, L., EK, M. (1984). The influence of atmospheric stability on potential evaporation. Journal of Climate and Applied Meteorology, 23, 222-234.

Makkink, G.F. (1957). Testing the Penman formula by means of lysimeters. Journal of the Institution of Water Engineering, 11(3), 277-288.

Maqsoud, A., Bussière, B., & Aubertin, M. (2002). L'hystérésis de sols non saturés utilisés dans les couvertures avec effets de barrière capillaire. In Proceedings of the 55th Canadian Geotechnical Conference and 3rd joint IAH-CNC/CGS Conferences, (2002), Niagara Falls, ON.

Maqsoud, A., Bussière, B., Aubertin, M., & Mbonimpa, M. (2006). Modification of the predictive MK model to integrate hysteresis of the water retention curve. In Proceedings of the 4th International Conference on Unsaturated Soils, 2465-2476, April (2006), Carefree, AZ.

Maqsoud, A., Bussière, B., Plante, B., & Gelinas, J.B. (2008). Column test investigation on the use of calcium carbonate by product as moisture-retaining layer to prevent acid mine drainage. *In* Proceedings of GeoEdmonton'08, 61st Canadian Geotechnical and 9th Joint IAH-CNC and CGS Groundwater Specialty Conferences, Septembre 21-24, (2008), Edmonton, AB.

Manaka, M. (2007). Comparison of rate laws for the oxidation of five pyrites by dissiolved oxygen in acidic solution. Journal of Mineralogical and Petrological Sciences, 102, 24-38.

Marshall, T.J. (1959). The diffusion of gases through porous media., J. Soil Sci.; 10, 79–82.

Marshall, T.J., Holmes, J.W., & Rose, C.W. (1996). Soil physics. 3rd ed. Cambridge University Press, Cambridge, U.K.

Martin, V., Aubertin, M., Bussière, B., Mbonimpa, M., Dagenais, A.M., & Gosselin, M. (2006). Measurement of oxygen consumption and diffusion in exposed and covered reactive mine tailings. *In* Proceedings of the 7th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD), 1156-1169, March (2006), St Louis, MI.

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.

Mazumdar, A., Goldberg, T., & Strauss, H. (2008). Abiotic oxidation of pyrite by Fe(III) in acidic media and its implications for sulfur isotope measurements of lattice-bound sulfate in sediments. Chemical Geology, 253, 30-37.

Mbonimpa, M., & Aubertin, M. (2002). Mouvement des gaz en milieu poreux partiellement saturés. Rapport EPM-RT-03-04, Ecole Polytechnique de Montréal.

Mbonimpa, M., Aubertin, M., Bussière, B, & Julien, M. (2000). Procédures et interprétation des essais de diffusion et de consommation d'oxygène en laboratoire et in situ. Colloque sur le programme de Neutralisation des Eaux de Drainage dans l'Environnement minier (NEDEM), Session 6, 7-17.

Mbonimpa, M., Aubertin, M., Chapuis, R.P., & Bussière, B. (2002). Pratical 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.

Mbonimpa, M., Aubertin, M., & Bussière, B. (2006). Predicting the unsaturated hydraulic conductivity of granular soils from basic geotechnical properties using the modified Kovacs (MK) model and statistical models Canadian Geotechnical Journal, 43(8), 773-787.

Mbonimpa, M., Cissokho, F., Bussière, B., Maqsoud, A., & Aubertin, M. (2008) A numerical study of oxygen flux though inclined covers with capillary barrier effects. *In* Proceedings of GeoEdmonton '08, 61th Canadian Geotechnical and 9th Joint IAH-CNC and CGS Groundwater Specialty Conferences, September 21-24, (2008), Edmonton, AB.

McGuire, M.M., Banfield, J.F., & Hammers, R.J. (2001a). Quantitative determination of elemental sulfur at the arsenopyrite surface after oxidation by ferric iron , mechanistic implications. Geochemical Transactions, 4, 5p.

McGuire, M.M., Edwards, K.J., Banfield, J.F., & Hamers, R.J. (2001b). Kinetics, surface chemistry, & structural evolution of microbially mediated sulfide mineral dissolution. Geochim. Cosmochim. Acta, 65, 1243-1258.

McIntosh, J.M., Silver, M., & Groat, L.A. (1997). Bacteria and the breakdown of sulfide minerals. In Short Course Handbook on Biological – Mineralogical Interactions, Edited by McIntosh, J.M., Groat, L.A.,. Mineralogical Association of Canada. Special Vol. 25, 63-92.

MacKay, P.L., Ynful, E.K., Rowe, R.K., & Badv, K. (1998). A new apparatus for measuring oxygen diffusion and water retention in soils. Geotechnical Testing Journal, 21(4), 289-296.

McKibben, M.A., & Barnes, H.L. (1986). Oxidation of pyrite in low temperature acidic solutions, rate laxs and surface textures. Geochim. Cosmochim. Acta, 50, 1509-1520.

McMullen, J., Firlotte, R., Knapp, R., & Aubertin, M. (1997). Les Terrains Aurifères property site closure and rehabilitation – conceptual to construction. *In* Proceedings of the 29th Annual Meeting of the Canadian Mineral Processors, Ottawa, Ont., 21–23 January (1997). Canadian Institute of Mining, Metallurgy, & Petroleum, 274–292.

Meldrum, J.L., Jamieson, H.E., & Dyke, L.D. (2001). Oxidation of mine tailings from Rankin Inlet, Nunavut, at subzero temperatures. Can. Geotech. J., 38, 957-966.

Meslin, P.Y., Adler, P.M., & Sabroux, J.C. (2010). Diffusive transport of gases in wet porous media. Application to radon. Soil Science Society of America Journal, 74(6), 1871-1885.

Mihelcic, J.R. (1998). *Fundamentals of Environmental Engineering*. J. Wiley and Sons, NY.

Miller, S.D., Jeffery, J.J., & WONG, J.W.C. (1991). Use and misuse of the acid-base account for AMD prediction. *In* Proceedings of the 2nd Int. Conf. of the Abatement of Acidic Drainage, Montréal, QC, 3, 489-506.

Miller, S.D., Robertson, A., & Donohue, T. (1997). Advances in acid drainage prediction using the net acid generation (NAG) test. *In* Proceedings of the 4th International Conference on Acid Rock Drainage, Ottawa, ON, 533-547.

Millington, R.J. (1959). Gas diffusion in porous media. Science, 130, 100–102.

Millington, R.J., & Quirk, J.M. (1960). Transport in porous media. *In* Proceeding of 7th Trans. Int. Congr. Soil Sci., 14–21 Aug., Madison, WI, 1960. 1, 97–106.

Millington, R.J., & Quirk, J.P. (1961). Permeability of porous solids. Trans. Faraday Soc.; 57, 1200–1207.

Mills, A.L. (1999). The rôle of bacteria in environmental geochemistry. *In* The Environmental Geochemistry of Mineral Deposits , Part A , Processes, Techniques and Health Issues. Rev. Econ. Geol., 6A, 125-132.

Miyazaki, T. (2006). *Water Flox in Soils*. Published by CRC Press.

Moldrup, P., Olesen, T., Gamst, J., Schjonning, P., Yamaguchi, T., & Rolston, D.E. (2000a). Predicting the gas diffusion coefficient in repacked soil , Water-induced linear reduction model. Soil Sci. Soc. Am. J., 64(5) , 1588-1594.

Moldrup, P., Olesen, T., Schjonning, P., Yamaguchi, T., & Rolston, D.E. (2000b). Predicting the gas diffusion coefficient in undisturbed soil from soil water characteritics. Soil Sci. Soc. Am. J., 64(1) , 94-100.

Moldrup, P., Olesen, T., Komatsu, T., Schjonning, P., & Rolston, D.E. (2001). Tortuosity diffusivity and permeability in the soil liquid and gazeous phase. Soil Sci. Soc. Am. J., 65(3) , 613-623.

Molson, J.W., Aubertin, M., Bussière, B., & Joanes, A.-M. (2004). Simulating acid mine drainage through mine wastes constructed with capillary barriers. *In* Proceedings of Quebec (2004), 5th Joint IAH-CGS Conference, Québec, QC.

Molson, J.W., Frind, E.O., Aubertin, M., & Blowes, D. (2005). POLYMIN v3.0 , 2d reactive mass transport model with oxygen diffusion, sulfide oxidation and geochemical speciation. User guide. Polymin (2005).

Molson, J., Aubertin, M., Bussière, B., & Benzaazoua, M. (2008). Geochemical transport modeling of drainage from experimental mine tailings cells covered by capillary barriers. Applied Geochemistry, 23, 1-24.

Monterroso, C. and Macias, F. (1998). Drainage waters affected by pyrite oxidation in a coal mine in Galicia (NW Spain) , composition and mineral stability. Sci. Total Environ., 216, 121–132.

Morin, K.A., & Cherry, J.A. (1988). Variations in natural-decay-series disequilibrium along groundwater flowpaths. *In* Proceedings of the International Groundwater Symposium of the International Association of Hydrogeologists, Halifax, NS, May 1-4, 1988, 189-200.

Morin, K.A., & Hutt, N.M. (1994). Observed preferential depletion of neutralization potential over sulfide minerals in kinetic tests , site-specific criteria for safe NP/NA ratios. *In* Proceedings of the Int. Land Reclamation and Mine Drainage Conf. and the 3rd Int. Conf. of the Abatement of Acidic Drainage, Pittsburg, 148-156.

Morin, K.A., Hutt, N.M. (1997). *Environmental Geochemistry of Mine site Drainage, Practical Theory and Case Studies*. MDAG Publishing, 333p.

Morin, K.A., Gerencher, E., Jones, C.E., & Konasewich, D.E. (1991). Critical literature review of acid drainage from waste rock. MEND Project 1.11.1.

Morris, C.E., & Stormont, J.C. (2000). Incorporating near-surface processes in modeling moisture movement in soils. *In* Proceedings of Advances in Unsaturated Geotechnic Sessions, August 5-8, (2000), Denver, CO.

Moses, C.O., Nordstrom, D.K., Herman, J.S., & Mills, A.L. (1987). Aqueous pyrite oxidation by dissolved oxygen and ferric iron. Geochim. Cosmochim. Acta, 51, 1561-1571.

Moses, C.O., & Herman, J.S. (1991). Pyrite oxidation at circumneutral pH. Geochim. Cosmochim. Acta, 55, 471-482.

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 unsaturad 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.

Myerson, A.S. (1981). Oxygen mass transfer requirements during the growth of Thiobacillus ferrooxidans on iron pyrite. Biotechnol. Bioeng. 23, 1413–1416.

NAVFAC DM7. (1974). Design manual – soil mechanics, foundations, & earth structures. US. Government Printing Office, Washington, D.C.

Neel, L. (1942-1943). Théories des lois d'aimantation de Lord Raileigh. Cah. Phys., 12, 1-20, 13, 19-30.

Nelson, J.D., Overton, D.D., & Durkee, D.B. (2001). Depth of wetting and the active zone. In Expansive Clay Soils and Vegetative Influence on Shallow Foundations, Geotechnical Special Publication No. 115,, pp. 95-109.

Neuman, S. P. (1973). Saturated-unsaturated seepage by finite elements. J. Hydraul. Div. Am. Soc. Civ. Eng., 99, 2233-2250.

Nichol, C.F., Rowlett, D.K., & Barbour, S.L. (2008). A new standpipe lysimeter desiign for the measurement of soil matric suction. Vadose Zone Journal, 7, 919-929.

Nicholson, R.V. (1984). Pyrite oxidation in carbonate-buffered systems , Experimental kinteics and control by oxygen diffusionin the porous medium. Ph.D. Thesis, University of Waterloo, Waterloo, ON.

Nicholson, R.V. (1994). Chapter 6 , Iron-sulfide oxidation mechanisms , Laboratory studies. *In* Short Course Handbook on Environmental Geochemistry of Sulfide Mine-Wastes. *Edited by* D.W. Blowes and J.L. Jambor, 164-183.

Nicholson, R.V., Gillham, R.W., Reardon, E.J. (1988). Pyrite oxidation in carbonate-buffered solution, 1. Experimental kinetics. Geochim. Cosmochim. Acta, 52, 1077–1085.

Nicholson, R.V., Gillham, R.W., Cherry, J.A., & Reardon, E.J. (1989). Reduction of acid generation in mine tailings through the use of moisture-retaining layers as oxygen barriers. Canadian Geotechnical Journal, 26, 1-8.

Nicholson, R.N., Gillham, R.W., & Reardon, E.J. (1990). Pyrite oxidation in carbonate-buffered solutions. 2. Rate control by oxide coatings. Geochim. Cosmochim. Acta, 54, 395-402.

Nicholson, R.V., & Scharer, J.M. (1994). Pyrrhotite oxidation kynetics. *In* The Environmental Geochemistry of Sulfide Oxidation. Am. Chem. Soc. Symp. Ser., 550, 14-30.

Nordstrom, D.K. (2000). Advances in the hydrogeochemistry and microbiology of acid mine waters. Internat. Geol. Rev., 42, 499-515.

Nordstrom, D.K., McNutt, R.H., Puigdomenech, I., Smellie, J.A.T., & Wolf, M. (1992). Ground water chemistry and geochemical modeling of water-reock interactions at the Osamu Utsumi mine and Morro do Ferro analogue study sites, Poços de Caldas, Minas Gerais, Brazil. Journal of Geochemical Exploration, 45, 249-287.

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., & Southam, G. (1997). Geomicrobiology of sulfide mineral oxidation. *In* Geomicrobiology , Interactions between microbes and minerals. Rev. Mineral., 35, 361-385.

Nyhan, J.W., Hakonson, T.E., & Drennon, B.J. (1990). A water balance study of two landfill cover designs for semiarid regions. J. Environ. Qual., 19, 281-288.

Olsen, T., Moldrup, P., Henriksen, K., & Petersen, W. (1996). Modeling diffusion and reaction i soils , IV , New models for predicting ion diffusivity. Soil Sci., 161, 633-645.

Olson, G.J., Clark, T.R., Mudder, T.I., & Logson, M. (2006). Toward source control of acid rock drainage. . *In* Proceedings of the 7th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD), 1435-1452, March 26-30, (2006), St. Louis, MI.

Orlova, T.A., Stupnikov, V.M., & Krestan, A.L. (1989). Mechanism of oxidative dissolution of sulphides. Zhurnal Prikladnoi Khimii, 61, 2172– 2177.

Orova, D.A., & Swinder, R.C. ((1996)). Inhibiting acid mine drainage throughout the mine life cycle. CIM Bulletin, 98(999),52-56.

Ouangrawa, M. (2007). Etude expérimentale et analyse numérique des facteurs qui influencent le comportement hydro-géochimique de résidus miniers sulfureux partiellement submergés. Thèse de doctorat, Département des Génies Civil, Géologique et des Mines, École Polytechnique de Montréal. 428p.

Ouangrawa, M., Aubertin, M., Molson, J., Zagury, G.J., & Bussière, B. (2005). An evaluation of the elevated water table concept using laboratory columns with sulphidic tailings. *In* Proceedings of Geosask(2005), 58th Canadian Geotechnical conference and 6th Joint IAH-CNC, (2005), Saskatoon, SK.

Ouangrawa, M., Molson, J., Aubertin, Zagury, G., & Bussière, B. (2006). The effect of water table elevation on acid mine drainage from reactive tailings , a laboratory and numerical modelling study. *In* Proceedings of the 7th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD), 1473-1482, March 26-30, (2006), St. Louis, MI.

Ouangrawa, M., Molson, J., Aubertin, M., & Bussière, B. (2007). Prediciting the performance of an elevated water table for preventing acid mine drainage. *In* Proceedings of the 60th Canadian Geotechnical Conference and the 8th joint CGS/IAH-CNC Groundwater Conference, 1470-1477, (2007), Ottawa, ON.

Ouangrawa, M., Aubertin, M., Molson, J., Bussière, B., & Zagury, G.J. (2010). Preventing acid mine drainage with an elevated water table: Long-term column experiments and parameter analysis. Water, Air and Soil Pollution 213, 437–458.

Paktunc, A.D. (1999a). Characterization of mine wastes for prediction of acid mine drainage. In Environmental Impacts of Mining Activity, Springer, Berlin, Germany, 19–40.

Paktunc, A.D. (1999b). Mineralogical constraints on the determination of neutralization potential and prediction of acid mine drainage. Environ. Geol., 39, 103–112.

Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J. (1999). User's guide to PHREEQC (Version2) - A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, & inverse geochemical calculations. U.S.Geological Survey , Water-Resource sInvestigations Report, 99-4259, 310p.

Parlange, J.-Y. (1976). Capillary hysteresis and the relationship between drying and wetting curves. Water Resources Research, 12(2) , 224-228.

Parlange, J.Y., Lisle, I., Braddock, R.D., & Smith, R.E. (1982). The three parameter infiltration equation. Soil Sci., 133, 337-341.

Parlange, J.Y., Haverkamp, R., & Touma, J. (1985). Infiltration under ponded conditions , I. Optimal analytical solution and comparison with experimental observations. Soil Sci., 139, 305-311

Pease, R.E., & Stormont, J.C. (2003). Increasing the diversion length of capillary barriers. *In* Proceedings of the HSRC/WERC Joint Conference on the Environment, May (1996). *Edited by* the Great Plains/Rocky Mountain Hazardous Substance Research Center.

Pedroni, L. (2011). Etude expérimentale et numérique des propriétés de sédimentation et de consolidation des boues de traitement des eaux acides. Doctoral Thesis, Département de Génie Civil Géologique et des Mines, Ecole Polytechnique de Montréal, QC.

Penman, H.L. (1940). Gas and vapor movements in the soil , II, The diffusion of carbone dioxide through porous solids. J. Agric. Sci., 30, 570-581.

Penman, H.L. (1948). Natural evaporation from open water, bare soil and grass. Proc. R. Soc. London Ser., A 193, 120-146.

Perkins, E.H., Nesbitt, H.W., Gunter, W.D., St-Arnaud, L.C., & Mycroft, J.R. (1995). Critical review of geochemical processes and geochemical models adaptable for prediction of acidic drainage from waste rock. Report 1.42.1, Mine Environment Neutral Drainage (MEND).

Philip, J.R. (1957). The history of infiltration , 1. The infiltration equation and its solution. Soil Sci., 83, 345-357.

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). Prédiction du drainage neutre contaminé en nickel : cas de la mine Tio. Ph.D. Thesis, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, Rouyn-Noranda, QC.

Plumlee, G.S. (1999) The environmental geology of mineral deposits. *In* The Environmental Geochemistry of Mineral Deposits , Part A , Processes, Techniques and Health Issues. Rev. Econ. Geol., 6A, 71-116.

Poirier, C. (2008). Etude paramétrique de l'écoulement de l'eau dans un drain de pierre calcaire par analyses numériques selon des variables granulométriques, géométriques et hydrauliques. Mémoire de maîtrise, Département CGM, Ecole Polytechnique de Montréal.

Poulsen, T.G., Moldrup, P., & Jacobsen, O.H. (1998). One-parameter model for unsaturated hydraulic conductivity. Soil Sci., 163, 425-435.

Pratt, A.R., Nesbitt, H.W., & Muir, I.J. (1994). Generation of acids from mine waste , oxidative leaching of pyrrhotite in dilute H2SO4 solutions at pH 3,0. Geochim. Cosmochim. Acta, 58, 5147-5159.

Price, W.A. (1997). Draft Guidelines and Recommended Methods for the Prediction of Metal Leaching and Acid Rock Drainage at Minesites in British Columbia. BC Ministry of Employment and Investment, Victoria, BC.

Priestley, C.H.B, & Taylor, R.J. (1972). On the assessment of surface heat flux and evaporation using large-scale parameters. Monthly Weather Review, 100(2), 81-92.

Pruess, K. (1991). *TOUGH2 , A general-purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat transfer*. Lawrence Berkeley Laboratory, 102p.

Pruess, K. (2004). The TOUGH codes , A family of simulation tools for multiphase flow and transport processes in permeable media. Vadose Zone J., 3, 738–746

Pruess, K., Oldenburg, C., & Moridis, G. (1999). TOUGH2 user's guide. Version 2.0. LBNL-43134. Lawrence Berkeley Natl. Lab., Berkeley, CA.

Ptacek, C.J., & Blowes, D.W. (1994). Influence of siderite on the pore-water chemistry of inactive mine-tailings impoundments. In Environmental Geochemistry of Sulfide Oxidation, Edited by C.N. Alpers et D.W. Blowes, 550, 172-189.

Renault, P., & Sierra, J. (1994). Modeling oxygen diffusion in aggregated soils , II. Anaerobiosis in topsoil layers. Soil Sci. Soc. Am. J., 58, 1023-1030.

Renault, P., & Stengel, P. (1994). Modeling oxygen diffusion in aggregated soils , I. Anaerobiosis inside the aggregates. Soil Sci. Soc. Am. J., 58, 1017–1023.

Reynolds, K.A., & Petrik, L. (2008). The use of fly ash for the control and treatment of acid mine drainage. *In* Proceedings of 10th International Mine Water Association Congress , Mine Water and the Environment, April 2-5, (2008), Karlovy Vary, République Tchèque.

Ricard, J.F. (1994). Étude en laboratoire de la relation capillaire et de la conductivité hydraulique de résidus miniers. M.Sc. thesis, Department of Mineral Engineering, École Polytechnique de Montréal, Montréal, QC.

Ricard, J.F., Aubertin, M., Firlotte, F.W., Knapp, R., & McMullen, J. (1997). Design and construction of a dry cover made of tailings for the closure of Les Terrains Aurifères site, Malalrtic, Qc. *In* Proceedings of the 4th International Conference on Acid Rock Drainage, Vancouver, B.C., 31 May – 6 June (1997), 4, 1515–1530.

Richards, L.A. 1931. Capillary conduction of liquids in porous mediums. Physics, 1, 318–333.

Rieu, M., Sposito, G. (1991a). Fractal fragmentation, soil porosity and soil water properties , I. Theory. Soil Sci. Soc. Am. J., 55, 1231–1238.

Rieu, M., Sposito, G. (1991b). Fractal fragmentation, soil porosity and soil water properties , II. Applications. Soil Sci. Soc. Am. J., 55, 1239– 1244

Rimstidt, J.D., Chermak, J.A., & Gagen, P.M. (1994). Rates of reaction of galena, sphalerite, chalcopyrite and arsenopyrite with Fe(III) in acidic solutions. *In* Environmental Geochemistry of Sulfide Oxidation. Am. Chem. Soc. Symp. Ser., 550, 2-13.

Ritcey, G.M. (1989). *Tailings Management*. Elsevier Science, New York.

Ritchie, A.I.M. (1994a). Chapter 5 , The waste-rock environnement. *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.

Rijtema, P.E. (1965). An analysis of actual evapotranspiration. Rep. 659, Cent. for Agri. Publ. and Doc., Wageningen, Netherlands.

Rolston, D.E., Glauz, R.D., Grundmann, G.L., & LOUIE, D.T. (1991). Evaluation of an in situ method for measurement of gas diffusivity in surface soils. Soil Sci. Soc. Am. J., 55, 1536-1542.

Romano, C.G., Mayer, K.U., Jones, D.R., Ellerbroek, D.A., & Blowes, D.W. (2003). Effectiveness of various cover scenarios on the rate of sulfide oxidation of mine tailings. Journal of Hydrology, 271, 171-187.

Ross, P.J., Williams, J., & Bristow, K.L. (1991). Equation for extending water-retention curves to dryness. Soil Sci. Soc. Am. J., 55, 923-927.

RossI, C., & Nimmo, J.R. (1994). Modeling of soil water retention from saturation to oven dryness. Water Resour. Res., 30, 701-708.

Rowe, R.K., Brooker, J.R., & Fraser, M.J. (1998). POLLUTE v6 and POLLUTE-GUI user's guide. GAEA Environnemental Engineering Ltd. London, ON.

Russo, D. 1988. Determining soil hydraulic properties by parameter estimation , On the selection of a model for the hydraulic properties. Water Resour. Res., 24, 453-459.

Rust, R.H., Klute, A., & Gieseking, J.E. (1957). Diffusion porosity measurements using a non-steady state system. Soil Sci. 84, 453-463.

Rykaart, M., Hockley, D., Noel, M., & Paul, M. (2006). Findings of international review of soil cover design and construction practices for mine waste closure. *In* Proceedings of the 7th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD), 1473-1482, March 26-30, 2006, St. Louis, MI.

Saavedra, L.F. (2008). Caractérisation et modélisation physique du comportement hydrogéologique de résidus réactifs avec recouvrement monocouche. Mémoire de maîtrise, Département CGM, Ecole Polytechnique de Montréal.

Saleh-Mbemba, F. (2010). Evaluation de la dessiccation, du retrait et de la fissuration de matériaux silteux peu plastiques. Mémoire de maîtrise, Département CGM, Ecole Polytechnique de Montréal.

Sallam, A., Jury, W.A., & Letey, J. (1984). Measurement of a gas diffusion coefficient under relatively low air filled porosity. Soil Sci. Soc. Am. J., 48, 3-6.

Solomons, W. (1995). Environmental impact of metals derived from mining activities , processes, predictions, prevention. J. Geochem. Expl., 52, 5-23.

Scanlon, B.R., Christman, M., Reedy, R.C., Poro, I., Simunek, J., & Flerchinger, G.N. (2002). Intercode comparisons for simulating water balance of surficial sediments in semi arid regions. Water Resources Research, 38, 1323-1339.

Scanlon, B.R., Reedy, R.C., Keese, K.E., & Dwyer, S.F. (2005). Evaluation of evapotranspirative covers for waste containment in arid and semiarid regions in the Southwestern USA. Vadose Zone Journal, 4(1), 55-71.

Scanlon, B.R., Reedy, R.C., Keese, K.E., & Dwyer, S.F. (2006). Response to « Comments on « Evaluation of evapotranspirative covers for waste containment in arid and semiarid regions in the Southwestern USA » ». Vadose Zone Journal, 5(2), 813-814.

Schaap, M.G., Leij, F.J., van Genuchten, M.Th. (1998). Neural network analysis for hierarchical prediction of soil water retention and saturated hydraulic conductivity. Soil Science Society of America Journal, 64, 843–855.

Schaap, M.G., & van Genuchten, M.T. (2005). A modified Mualem–van Genuchten formulation for improved description of the hydraulic conductivity near saturation. Vadose Zone Journal, 5, 27-34.

Scharer, J.M., Annable, W.K., & Nicholson, R.V. (1993). WATAIL 1.0 User's manual. Institute fir Groundwater Research, University of Waterloo, ON.

Schuh, W. M., Cline, R. L. (1990). Effect of soil properties on unsaturated hydraulic conductivity pore-interaction factors. Soil Sci. Soc. Am. J., 54, 1509-1519.

Sengupta, M. (1992). *Environmental Impacts of Mining , Monitoring, Restoration and Control*. Lewis Publishers, Boca Raton, FL.

Shackelford, C.D. (1991). Laboratory diffusion testing for waste disposal. A review. J. Contam. Hydrol., 7, 177-217.

Shackelford, C.D., & Benson, C.H. (2006). Selected factors affecting water-balance predictions for alternative covers using unsaturated flow models. *In* Proceedings of GeoCongress (2006) , Geotechnical Engineering in the Information Technology Age, (2006).

Shelp, M.L., Yanful, E.K. (2000). Oxygen diffusion coefficient of soils at high degrees of saturation. Geotechnical Testing Journal, 23(1), 36-44.

Shepard, S.J. (1993). Using a fractal model to compute the hydraulic conductivity function. Soil Sci. Soc. Am. J., 57, 300-306.

Shuniark, R.E. (2003). Predictive modeling of moisture movement with soil cover systems for saline/sodic overburden piles. Master Thesis, University of Saskatchewan, Saskatoon, SK.

Si, B. C. and Kachanoski, R. C. (2000). Unified solution for infiltration and drainage with hysteresis , Thery and field test. Soil Sci. Soc. Am. J., 64, 30-36.

Simunek, J., van Genuchten, M.Th., Sejna, M., Toride, N., & Leij, F.J. (1999). The STANMOD computer software for evaluating solute transport in porous media using analytical solutions of

convection–dispersion equation. Versions 1.0 and 2.0. IGWMC-TPS-71. Int. Ground Water Modeling Ctr., Colorado School of Mines, Golden.

Simunek J., Jarvis, N.J., van Genuchten, M.T., & Gardenas, A. (2003). Review and comparison of models for describing non-equilibrium and preferential fl ow and transport in the vadose zone. J. Hydrol., 272, 14–35.

Simunek, J., van Genuchten, M.Th., & Sejna, M. (2005). The HYDRUS-1D software package for simulating the one-dimensional movement of water, heat, & multiple solutes in variably-saturated media. Version 3.0. HYDRUS Software Ser. 1. Dep. of Environmental Sciences, Univ. of California, Riverside.

Simunek, J., van Genuchten, M.T., & Sejna, M. (2008a). Development and applications of the Hydrus and Stanmod software packages and related codes. Vadose Zone Journal, 7(2), 587-600.

Simunek, J., & van Genuchten, M.T. (2008b). Modeling nonequilibrium flow and transport processes using Hydrus. Vadose Zone Journal, 7(2), 782-797.

Singer, P.C., & Stumm, W. (1970). Acidic mine drainage , the rate determining step. Science, 167, 1121-1123.

Sjoberg, B., Wilson, G.W., & Aubertin, M. (2001). Field and laboratory characterization of desulphurized tailings cover system. *In* Proceedings of the 54_{th} Canadian Geotechnical Conference, September 16-19, (2001), Calgary, AB.

Sjoberg Dobchuck, B., Wilson, G.W., & Aubertin, M. (2003). Evaluation of a single-layer desulphurized tailings cover. In Proceedings of the International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD) (2003), July 14-17, (2003), Cairns, Australia.

Smith, E.E., Svanks, K., & Shumate, K. (1968). Sulfide to sulfate reaction studies. In Proceedings Second Symp. on Coal Mine Drainage Research., Monroebille, PN, 1-11.

Smith, L., & Beckie, R. (2003). Chapter 3 , Hydrologic and geochemical transport in piles of sulfidic material. *In* Environmental Apects of Mine Wastes. *Edited by* J.L. Jambor, D.W. Blowes, & A.I.M. Ritchie.

Sobeck, A.A., Schuller, W.A., Freeman, J.R., & Smith, R.M. (1978). Field and laboratory methods applicable to overburdens and minesoils. U.S. Environ. Protect. Agency, EPA-600/2-78-054.

Song, Q., & Yanful, E.K. (2008). Monitoring and modeling of sand-bentonite cover for ARD mitigation. Water Air and Soil Pollution, 190, 65-85.

Song, Q., & Yanful, E.K. (2010). Effect of water addition frequency on oxygen consumption in acid generating waste rock. Journal of Environmental Engineering, 136(7), 691-700.

SRK. (1989). Draft acid rock drainage. Technical Guide Vol. 1, British Columbia Acid Mine Drainage Task Force Report, Prepared by Steffen, Robertson, Kirsten in Association with Norecol Environmental Consultants and Gormely Process Engineering.

SRK. (1991). Guide technique préliminaire sur le drainage rocheux acide. (une traduction de "Draft Acid Rock Drainage Technical Guide", 1989, BCAMD Task Force). Vol. I et II, Centre de Recherches Minérales, Québec, QC.

Stewart, W.A., Miller, S.D., & Smart, R. (2006). Advances in acid rock drainage (ARD) characterisation of mine wastes. *In* Proceedings of the 7th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD), 2098-2119, March 26-30, (2006), St. Louis, MI.

Stumm, W., & Morgan, J.J. (1996). *Aquatic Chemistry. Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters. 3rd Edition*. J. Wiley and Sons, NY.

Sverdrup, H.U. (1990). *The Kinetics of Base Cation Release Due to Chemical Weathering*. Lund University Press, Lund, Suède.

Swanson, D.A., Barbour, S.L., Wilson, G.W., & O'Kane, M. (2003). Soil-atmosphere modelling of an engineered soil cover for acid generating mine waste in a humid, alpine climate. Can. Geotech. J., 40, 276-292.

Swartzendruber, D. (1987). A quasi-solution of Richards' equation for the downward infiltration of water into soil. Water Resour. Res., 23, 809-817.

Tardy, Y., & Nahon, D. (1985). Geochemistry of laterites, stability of Al-goethite, Al-hematite, & Fe3+-kaolinite in bauxites and ferricretes. American Journal of Science, 285, 865-903.

Tassé, N., Germain, D., Dufour, C., & Tremblay, R. (1996). Le recouvrement de résidus organiques au parc East Sullivan, au-delà de la barrière d'oxygène. *In* Colloque sur le Programme de Neutralisation des Eaux de Drainage dans l'Environnement Minier (NEDEM), Rouyn-Noranda, 1, 106-128.

Tassé, N., & Germain, D. (1999). Le parc à résidus miniers Manitou et ses épandages – Caractérisation et options de restauration. Rapport INRS-Géoressources.

Tassé, N., & Germain, D. (2003). Site minier Manitou - Caractérisation du milieu et des procéssus en vue d'une restauration. Rappot INRS-Eau, Terre et Environnement.

Taylor, D.W. (1948). *Fundamentals of Soil Mechanics*. Wiley, New York.

Teknika HAB (2005). Rapport d'étape 3 – Plan directeur de restauration du site minier Manitou, Abitibi-Témiscamingue – Elaboration des scenarios de restauration du site Manitou.

Therrien, R., McLaren, R.G., Sudicky, E.A., & Panday, S.M. (2007). HydroSphere: A three-dimensional numerical model describing fully-integrated subsurface and surface flow and solute transport: user manual. Université Laval and University of Waterloo, Canada, 379 p.

Todd, D.K., & Mays, L.W. (2005). Groundwater Hydrology. Wiley, New York.

Toledo, P.G., Novy, R.A., Davis, H.T., & Scriven, L.E. (1990). Hydraulic conductivity of porous media at low water content. Soil Sci. Soc. Am. J., 54, 673-679.

Topp, G.C. and Miller, E.E. (1966). Hysteresis moisture characteristics and hydraulic conductivities for glassbead media. Soil. Sci. Amer. Proc., 30, 156-162.

Topp G.C., Davis, J.L., & Annan, A.P. (1980). Electromagnetic determination of soil water content: measurements in coaxial transmission lines. Water Resources Research 16, 574–582.

Torrent, J., & Guzman, R. (1982). Crystallization of Fe(III)-oxides from ferrihydrite in salt solutions – Osmotic and specific ion effects. Clays and Clay Minerals, 17, 463-469.

Toussaint, R. (2010). Détermination de l'importance du rôle des bactéries lors d'essais de consommation d'oxygène par des résidus miniers provenant du site Manitou, Val d'or, Québec. Rapport de Stage pour Master Sciences de la Terre, Option Géosciences et Environnement, USTL Lille1.

Troeh, F.R., Jabro, J.D., & Kirkham, D.. (1982). Gaseous diffusion equations for porous materials. Geoderma, 27, 239–253.

Tsutsumi, D., Sidle, R.C., & Kosugi, K. (2005). Development of a simple lateral preferential flow model with steady state application in hillslope soils. Water ressources Research, 41, 1-15.

Turc, L. (1961). Evaluation des besoins en eau d'irrigation, évapotranspiration potentielle, formule climatique simplifée et mise a jour. Annales Agronomiques, 12(1), 13-49.

Twarakavi, N.K.C., Simunek, J., & SEO, S. (2008). Evaluating interactions between groundwater and vadose zone using the Hydrus-based flow package for Modflow. Vadose Zone Journal, 7(2), 757-768.

Tyler, S.W., & Wheatcraft, S.W. (1990). Fractal processes in soil water retention. Water Resources Research, 26(5), 1047–1054.

U.S. EPA. (1993a). Subsurface characterization and monitoring techniques, A desk reference guide, Vol. 1, Solids and Ground Water, U.S. Government Printing Office.

U.S. EPA. (1993b). Subsurface characterisation and monitoring techniques, A desk reference guide, Vol. 2, The Vadose Zone, Field Screening and Analytical Methods, U.S. Government Printing Office.

U.S. EPA (2003). PEST Model – Independent parameter estimation. Version 6.05

van Bavel, C.H.M. (1952). Gaseous diffusion and porosity in porous media. Soil Science, 73, 91–104.

van Genuchten, M.Th. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil Science Society of America Journal, 44, 892–898.

van Genuchten, M.Th., & Nielsen, D.R. (1985). On describing and predicting the hydraulic properties of unsaturated soils. Annals of Geophysics, 3, 615-628.

van Genuchten, M.Th., Leij, F.J., & Yates, S.R. (1991). The RETC code for quantifying the hydraulic functions of unsaturated soils.

Vaughan, D.J., & Craig, J.R. (1978). *Mineral Chemistry of Metal Sulfides*. Cambridge Univ. Press, Cambridge, UK.

Vereecken, H., J. Maes, J., Feyen, & P. Darius. (1989). Estimating the soil moisture retention characteristics from texture, bulk density, & carbon content. Soil Sci. Soc. Am. J., 1484, 389–403.

Vereecken, H., Diels, J., van Orshoven, J., Feyen, J., & Bouma, J. (1992). Functional evaluation of pedotransfer functions for the estimation of soil hydraulic properties. Soil Science Society of America Journal, 56, 1371–1378.

Vereecken, H. (1995). Estimating the unsaturated hydraulic conductivity from theorical models using simple soil properties. Geoderma, 65, 81-92.

Vick, S.G. (1983). *Planning, Design and Analysis of Tailings Dams*. John Wiley & Sons.

Villeneuve, M. (2004). Evaluation du comportement géochimiuque à long terme de rejets miniers à faible potentiel de génération d'acide à l'aide d'essais cinétiques. Mémoire de maîtrise, Département des Génies Civil, Géologique et des Mines, École Polytechnique de Montréal, 287p.

Wagner, B., Tanarwski, V.R., Hennings, V., Muller, U., Wessolek, G., & Plagge, R. (2001). Evaluation of pedo-transfer functions for unsaturated soil hydraulic conductivity using an independent data set. Geoderma 102, 275–297.

Walter, A.L., Frind, E.O., Blowes, D.W., Ptacek, C.J., & Molson, J.W. (1994a). Modeling of multicomponent reactive transport in groundwater. 1. Model development and evaluation. Water Resources Research, 30(11), 3137-3148.

Walter, A.L., Frind, E.O., Blowes, D.W., Ptacek, C.J., & Molson, J.W. (1994b). Modeling of multicomponent reactive transport in groundwater. 2. Metal mobility in aquifers impacted by acidic mine tailings discharge. Water Resources Research, 30(11), 3149-3158.

Weeks, B., & Wilson, G.W. (2004). The impact of slope and aspect on evaporating from soils in three dimensions. *In* Proceedings of 57th Canadian Geotechnical Conference, Session 2D, 21-27, (2004), Québec, Québec.

Weeks, B., & Wilson, G.W. (2005). Variations in moisture content for a soil cover over a 10 year period. Can. Geotech. J., 42, 1615-1630.

Weerts, A.H., Freijer, J.I. & Bouten, W. (2000). Modeling the gas diffusion coefficient in analogy to electrical conductivity using a capillary model. Soil Sci. Soc. Am. J., 64, 527–532.

Werner, K., Carlsson, E. & Berglund, B. (2001). Oxygen and water fluxes into a soil-cover remediated mill tailings deposit : evaluation of field data from the Kristineberg mine site, Northern Sweden. International Conference on Mining and the Environment, Securing the Future, Skelleftea, Suède, 896-905.

Werner, D., Grathwohl, P., & Hohener, P. (2004). Review of field methods for the determination of the tortuosity and effective gasphase diffusivity in the vadose zone. Vadose Zone J., 3, 1240–1248.

Wesseling, J. (1962). Some solutions of the steady state diffusion of carbon dioxide through soils, Neth. J. Agric. Sci., 10, 109–117.

White, W.W.III., Lapakko, K.A., & Cox, R.L. (1999). Static-test methods most commonly used to predict acid-mine drainage , Practical guidelines for use and interpretation. *In* The Environmental Geochemistry of Mineral Deposits. Part A , Processes, Techniques, & Health Issues, 6A, 325-338.

White, W.W.III., & Lapakko, K.A. (2000). Preliminary indications of repeatability and reproducibility of the ASTM 5744-96 kinetic test for drainage pH and sulfate release rate. *In* Proceedings of the 5th Internation Conference on Acid Rock Drainage, Littleton, CO, 621-630

2000 et pas 2003.

Wiersma, C.L., & Rimstidt, J.D. (1984). Rates of reaction of pyrite and marcasite with ferric iron at pH 2. Geochem. Cosmochim. Acta, 48, 85–92.

Williams, J., Prebble, R.E., Williams, W.T., & Hignett, C.T. (1983). The influence of texture, structure and clay mineralogy on the soil moisture characteristics. Australian Journal of Soil Research, 21, 15-32.

Williamson, M.A., & Rimstidt, J.D. (1994). The kinetics and electrochemical rate-determining step of aqueous pyrite oxidation. Geochim. Cosmochim. Acta, 58, 5443-5454.

Wilson, G.W. (1990). Soil evaporative fluxes for geotechnical engineering problems. Doctoral Thesis, Department of Civil Engineering, University of Saskatchewan, Saskatoon, SK.

Wilson, G.W., Fredlund, D.G., & Barbour, S.L. (1994). Coupled soil-atmosphere modeling for soil evaporation. Canadian Geotechnical Journal, 31, 151-161.

Wilson, G.W., Fredlund, D.G., & Barbour, S.L. (1997). The effect of soil suction on evaporative fluxes from soil surfaces. Canadian Geotechnical Journal, 34, 145-155.

Wilson, G.W., Albright, W.H., Gee, G.W., Fayer, M.J., Ogan, B.D. (1999). Alternative cover assessment project , Phase 1 report final technical report. US Environmental Protection Agency, Washington, USA, 202p.

Wilson, G.W. (2003). Chapter 17 , The design and performance of mine-waste cover systems.*In* Environmental Apects of Mine Wastes. *Edited by* J.L. Jambor, D.W. Blowes, & A.I.M. Ritchie.

Wosten, J.H.M., Pachepsky, Y.A., & Rawls, W.J. (2001). Pedotransfer functions, bridging the gap between available basic soil data and missing soil hydraulic characteristics. Journal of Hydrology, 251, 123–150.

Wu, Y.S., & Forsyth, P.A., (2008). Efficient schemes for reducing numerical dispersion in modeling multiphase transport through heterogeneous geological media. Vadose Zone Journal, 7(1), 340-349.

Wunderly, M.D., Blowes, D.W., Frind, E.O. and Ptacek, C.J. (1996). Sulfide mineral oxidation and subsequent reactive transport of oxidation products in mine tailings impoundments, A numerical model. Water Resources Research, 32(10), 3173-3187.

Yanful, E.K. and Catalan, L.J.J. (2002). Predicted and field-measured resuspension of flooded mine tailings. ASCE Journal of Environmental Engineering, 128, 341-351.

Yanful, E.K., Riley, M.D, Woyshner, M.R., & Duncan, J. (1993). Construction and monitoring of a composite soil cover on an experimental waste-rock pile near Newcastle, New Brunswick, Canada. Canadian Geotechnical Journal, 300, 588-599.

Yanful, E.K., Simms, P.H., Rowe, R.K., & Stratford, G. (1999a). Monitoring an experimental soil waste cover near London, Ontario, Canada. Geotechnical and Geological Engineering, 17, 65-84.

Yanful, E.K., Simms, P.H., & Payant, S.C. (1999b). Soil covers for controlling acid generation in mine tailing , a laboratory evaluation of the physics and geochemistry. Water, Air, & Soil Pollution, 114, 347-375.

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.

Yuster, S.T. (1951). Theoretical considerations of multiphase flow in idealized capillary systems. World Petroleum Cong. Proc., 2, 437–445.

Zaradny, H. (1993). Groundwater flow in saturated and unsaturated soil. *Edited by* R.B. Zeidler. Balkema, Rotterdam.

Zhan, G., Schafer, W., Milczarek, M., Myers, K., Giraudo, J., & Espell, R. (2006). The evolution of evapotranspiration cover systems at barrick goldstrike mines. *In* Proceedings of 7th ICARD Conference, March 26-30, (2006), St. Louis, MO. *Published* by ASMR, Lexington, KY.

Zheng, C.Q., Allen, C.C., & Bautiste, R.G. (1986). Kinetic study of the oxidation of pyrite in aqueous ferric sulfate. Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 25, 308–317.

Zhuang, J., Nakayama, K., YU, G.R., & Miyazaki, T. (2001). Predicting unsaturated hydraulic conductivityof soil base on some basic soil properties. Soil and Tillage Research, 59, 143-154.

LISTE DES ANNEXES ET SECTIONS CORRESPONDANTES

ANNEXE 3.1 – PROTOCOLE DES ESSAIS EN CELLULE TEMPE 3.2.6/464

ANNEXE 3.2 – CARACTÉRISTIQUES DES MATÉRIAUX AU MONTAGE DES GRANDES COLONNES 3.3.2/476

ANNEXE 3.3 – CALIBRATION DES TENSIOMÈTRES 3.3.3/478

ANNEXE 4.1 – ANALYSES MINÉRALOGIQUES (DRX) INITIALES (OBTENUES DE L'UQAT-URSTM) 4.1.6/480

ANNEXE 4.2 – ANALYSES ICP-AES DE L'EAU INTERSTITIELLE INITIALEMENT PRÉSENTE DANS LES GRANDES COLONNES (OBTENUES DE L'UQAT-URSTM) 4.1.6/481

ANNEXE 4.3 – CARACTÉRISTIQUES GRANULOMÉTRIQUES DES RÉSIDUS MANITOU ET GOLDEX PRÉLEVÉS IN SITU 4.2.1/482

ANNEXE 4.4 – DENSITÉS RELATIVES DES GRAINS (MANITOU ET GOLDEX) MESURÉES SUR DES ÉCHANTILLONS PRÉLEVÉS IN SITU 4.2.1/483

ANNEXE 4.5 – ANALYSES MINÉRALOGIQUES (DRX) EFFECTUÉES SUR CERTAINS DES ÉCHANTILLONS PRÉLEVÉS IN SITU (MANITOU ET GOLDEX)(ANALYSES RÉALISÉES À L'URSTM) 4.2.1/484

ANNEXE 4.6 – ANALYSES LECO EFFECTUÉES SUR CERTAINS DES ÉCHANTILLONS PRÉLEVÉS IN SITU (MANITOU) 4.2.1/485

ANNEXE 4.7 – INDICES DES VIDES EN PLACE DANS LES RÉSIDUS MANITOU ET GOLDEX (MESURE PAR ANNEAU)..... 4.2.1/485

ANNEXE 4.8 – CARACTÉRISTIQUES GRANULOMÉTRIQUES DES ÉCHANTILLONS DE MORAINE PRÉLEVÉS IN SITU (SELBAIE)..... 4.2.2/486

ANNEXE 4.9 – CARACTÉRISTIQUES GRANULOMÉTRIQUES DES ÉCHANTILLONS DE RÉSIDUS SELBAIE PRÉLEVÉS IN SITU 4.2.2/486

ANNEXE 4.10 – COMPTE RENDU DES OBSERVATIONS LORS DE L'INSTALLATION DES STATIONS DE MESURES SUR LE SITE SELBAIE 4.2.2/487

ANNEXE 5.1 – INDICES DES VIDES DANS LES GRANDES COLONNES 5.1.1/488

ANNEXE 5.2 – MESURE DE L'ÉVAPORATION AU LABORATOIRE 5.1.3/489

ANNEXE 5.3 – VARIATIONS DU DEGRÉ DE SATURATION DANS LES GRANDES COLONNES À DIFFÉRENTES ÉLÉVATIONS 5.2/490

ANNEXE 5.4 – EXEMPLE DE CALCUL D'ÉPUISEMENT ..... 5.5 & 6.4/492

ANNEXE 6.1 – VARIATIONS DU DEGRÉ DE SATURATION AU SOMMET DES PETITES COLONNES 6.2/493

ANNEXE 7.1 – SCHÉMA DES CÉRAMIQUES UTILISÉES À LA BASE DES GRANDES COLONNES (AVEC ANNEAU MÉTALLIQUE) 7.1.1/494

ANNEXE 7.2 – COURBES PRÉLIMINAIRES DE RÉTENTION D'EAU EN MOUILLAGE ET EN DRAINAGE 7.1.3/495

ANNEXE 7.3 – CODAGE DE LA FONCTION ADD-IN POUR SIMULER LA CONDITION FRONTIÈRE INFÉRIEURE DES COLONNES DANS VADOSE/W 7.1.7/496

ANNEXE 7.4 – CALIBRATION DES SIMULATIONS DES ESSAIS EN GRANDE COLONNE AVEC VADOSE/W – COMPARAISON DES DEGRÉS DE SATURATION, DES PRESSIONS ET DES DÉBITS SIMULÉS ET MESURÉS 7.2.1/498

ANNEXE 7.5 – COMPARAISON DES SIMULATIONS DES PETITES COLONNES AVEC VADOSE/W ET DES RÉSULTATS DE LABORATOIRE 7.2.2/502

ANNEXE 7.6 – ANALYSE DE SENSIBILITÉ DANS LES SIMULATIONS AVEC VADOSE/W 7.3/504

ANNEXE 7.7 – ETUDE PARAMÉTRIQUE 7.3/522

ANNEXE 7.8 – LISTE DES SIMULATIONS HYDROGÉOLOGIQUES ET HYDROGÉOCHIMIQUES AVEC SECTIONS CORRESPONDANTES .... 7.5 & 8.5/533

ANNEXE 7.9 – SIMULATIONS DES CONDITIONS DE TERRAIN : EFFETS DE L'ÉPAISSEUR DE LA COUCHE DE STÉRILES DANS UN RECOUVREMENT BICOUCHE À EFFET DE BARRIÈRE CAPILLAIRE 7.5.3/534

ANNEXE 8.1 – CODAGE DES MODIFICATIONS AU CODE MIN3P 8.1.1/541

ANNEXE 8.2 – EXEMPLE DE MODÈLE SOUS MIN3P 8.1.2/545

ANNEXE 8.3 – OXYDATION INDIRECTE DANS MIN3P 8.1.4/550

ANNEXE 8.4 – COMPARAISON DES RÉSULTATS DES SIMULATIONS DES ESSAIS EN PETITE COLONNE AVEC MIN3P ET LES RÉSULTATS OBTENUS AU LABORATOIRE ET AVEC VADOSE/W 8.2.2/557

ANNEXE 8.5 – SIMULATION DES ESSAIS DANS LA PETITE COLONNE MOP AVEC LE CODE MIN3P 8.2.4/558

ANNEXE 8.6 – SIMULATION DES ESSAIS DANS LA PETITE COLONNE SOP AVEC LE CODE MIN3P 8.2.6/562

ANNEXE 8.7 – COMPARAISON DES RÉSULTATS DES SIMULATIONS DES ESSAIS EN GRANDE COLONNE AVEC MIN3P ET LES RÉSULTATS OBTENUS AU LABORATOIRE ET AVEC VADOSE/W 8.3.1/566

ANNEXE 8.8 – SIMULATION DES ESSAIS DANS LA COLONNE MOG AVEC LE CODE MIN3P 8.3.3/570

ANNEXE 8.9 – SIMULATION DES ESSAIS DANS LA COLONNE SOG AVEC LE CODE MIN3P 8.3.4/573

ANNEXE 8.10 – ANALYSE DE SENSIBILITÉ ET ÉTUDE PARAMÉTRIQUE DES SIMULATIONS AVEC MIN3P 8.4/575

ANNEXE 8.11 – RÉPONSES HYDROGÉOLOGIQUES DES SIMULATIONS DES CONDITIONS DE TERRAIN AVEC MIN3P 8.5.1/582

ANNEXE 3.1 – Protocole des essais en cellule Tempe

Par : Darcy Jolette, Été 2000.

Modifications : Thomas PABST, Automne 2009.

OBJECTIFS

Le but de cette expérience de laboratoire est de déterminer la courbe de rétention capillaire d'un sol ou d'un rejet minier (ou courbe de rétention d'eau (CRE)) en drainage, pour une plage de succion allant de 0 à 1500 kPa. De façon générale, l'essai consiste à appliquer une succion croissante sur un échantillon de volume connu et initialement saturé en eau, et à suivre l'évolution de sa teneur en eau.

En pratique, on place l'échantillon dans une cellule hermétiquement close. Plutôt que d'imposer une succion à la base de la cellule (ce qui pourrait s'avérer problématique lorsque celle-ci dépasse quelques mètres), on applique une pression dans la cellule en installant sous l'échantillon une céramique saturée dont la pression d'entrée d'air est supérieure (en valeur absolue) à la pression maximale appliquée. La céramique est directement en contact avec l'échantillon et sa base est maintenue à pression atmosphérique. Ainsi, le gradient de pression dans l'échantillon est le même que si on l'avait placé directement en succion.

Pour éviter d'altérer l'échantillon, on maintient la cellule fermée durant tout l'essai. On la pèse pour chaque palier de pression. Hypothèse est faite que les seules variations de volumes constatées sont dues à l'expulsion d'eau par l'échantillon. On peut de cette manière estimer la variation de sa teneur en eau en fonction de la pression (ou succion) appliquée (on suppose que le volume de l'échantillon reste constant au cours de l'essai). Il est donc primordial de peser à chaque étape la cellule exactement dans les mêmes conditions (connexions saturées, parois propres et sèches…). On fait une correction en fin d'essai pour la masse d'air emprisonné dans la cellule.

MATÉRIEL

- Cellule Tempe (chambre, anneau métallique, stabilisateurs, ressort, o-rings)

- Plaque de céramique (1, 5, 15 bar selon la pression maximale exercée) sertie d'un anneau métallique (diamètre fonction de la base de la cellule)

- Plaque de céramique (1, 5, 15 bar selon la pression maximale exercée)

- Plaque de verre ou de plastique (légèrement plus grande que la surface de l'échantillon)

- Alimentation en air comprimé (azote si le matériel est réactif) et régulateur de pression (manodétendeur)

- Balance 15 kg ± 0,1 g

- Graisse à vide

- Étuve (110°C ± 5°C)

- Pompe à vide

- Perméamètre

- Tares

- Couteau, spatule

MÉTHODOLOGIE

1 Préparation de l'équipement pour l'essai

1.1 Démantèlement de la cellule Tempe

Dévisser les 5 écrous situés sur le dessus de la cellule. Retirer les 5 rondelles, les couvercles de laiton et d'acrylique ainsi que le cylindre de laiton. Dévisser les 5 tiges filetées. Dans l'ordre, enlever les 2 stabilisateurs en plastique, le ressort, la pierre céramique supérieure et l'anneau métallique, le joint d'étanchéité (o-ring) et la plaque de céramique inférieure.

1.2 Saturation des plaques de céramique

Choisir les plaques de céramique requises (1, 5 ou 15 bar) et les placer dans un perméamètre (ou toute autre cellule étanche) en appliquant un vide d'au moins 27" de mercure pendant 16 heures. Mesurer leur masse saturée. Vérifier éventuellement leur degré de saturation (selon caractéristiques fournisseur).

2. Montage de l'essai

2.1 Dimensions et masses des instruments

Mesurer le diamètre et la hauteur de l'anneau métallique (pour déterminer son volume), ainsi que sa masse. Prendre la masse de la plaque de verre/plastique + anneau (la masse de l'échantillon sera mesurée par différence).

Note : le volume de l'anneau métallique peut également être mesuré par méthode hydro-volumétrique.

2.2 Préparation de l'échantillon

L'échantillon aura été préalablement saturé, par exemple au moyen d'un essai triaxial (perméamètre à paroi souple (ASTM 5856-95)).

Insérer progressivement l'anneau métallique (par l'extrémité biseautée) dans l'échantillon. Au fur et à mesure que l'anneau entre dans l'échantillon, retirer le surplus de matériel en périphérie avec un couteau ou une spatule (afin d'éviter que le sol ne se détache et entraine la formation de vide entre l'échantillon et la paroi de l'anneau métallique). Continuer à glisser l'anneau dans l'échantillon jusqu'à ce qu'il dépasse d'environ 1 cm au-dessus de l'extrémité plane de l'anneau. Raboter minutieusement la surface de l'échantillon (couteau, exacto) afin qu'il soit égalisé avec le rebord de l'anneau et y déposer la plaque de plastique ou de verre (elle servira à déplacer l'échantillon). Couper grossièrement l'échantillon quelques centimètres en dessous du bout biseauté de l'anneau. Retourner la plaque avec l'échantillon dessus et finir d'égaliser le sommet de l'échantillon avec le haut de l'anneau.

Mesure la masse de l'anneau + échantillon + plaque de verre/plastique.

Couvrir les deux extrémités de l'échantillon afin de minimiser l'évaporation. Déposer le matériel excédentaire dans un plat préalablement taré et mesurer sa teneur en eau afin de calculer le degré de saturation initial.

2.3 Assemblage de la cellule Tempe

Saturer le colimaçon dans la base d'acrylique. Placer un papier filtre sur le colimaçon (pour améliorer le contact entre la céramique et les rainures). Placer le joint d'étanchéité préalablement graissé dans le fond de base d'acrylique. Noter la masse de la plaque de céramique (saturée) sertie d'un anneau d'acier, et la déposer au fond la base, l'arrête en biseau vers le haut. Placer le second joint d'étanchéité (graissé) au-dessus de la pierre céramique, dans le creux formé entre le biseau et la paroi de la base d'acrylique. Déposer un papier filtre humide au centre de la céramique (afin de prévenir le colmatage de la céramique par la migration de particules fines, les réactions d'oxydation ou les précipitations secondaires…).

Installer l'échantillon dans l'anneau métallique au centre de la céramique, la partie en biseau de l'anneau vers le haut.

Noter la masse humide initiale de la plaque de céramique supérieure et la déposer sur le dessus de l'échantillon. Son diamètre doit être légèrement inférieur à celui de l'échantillon, et de l'air doit pouvoir passer sur les côtés.

Visser les 5 tiges dans la base de laiton à travers la base d'acrylique. Placer le cylindre de laiton, le biseau vers le bas et graissé, afin qu'il vienne pincer le o-ring. Relier les deux plaques stabilisatrices par le ressort. Placer le tout directement sur la céramique supérieure, la plaque de plus grand diamètre en bas. Monter le couvercle d'acrylique sur le cylindre de laiton (rainure supérieure graissée). S'assurer que la plaque stabilisatrice supérieure entre dans le creux du couvercle. Placer le couvercle de laiton sur le couvercle d'acrylique. Ne pas oublier de graisser le petit o-ring placé autour de la connexion « quick » et de laisser cette dernière ouverte à l'atmosphère pour ne pas appliquer de pression en venant fermer la cellule.

Placer les rondelles et visser les cinq écrous. Resaturer éventuellement le colimaçon dans la base d'acrylique avec de l'eau désaérée et replacer le bouchon et le tube en U. Noter la masse de la cellule et laisser reposer au moins 24 heures à pression atmosphérique (partie supérieure ouverte à l'air si l'échantillon n'est pas réactif, sinon, purger la cellule à l'azote avant de la refermer sans appliquer de pression).

3 Essai de rétention capillaire

3.1 Initiation de l'essai

Après les 24 heures de repos, saturer le colimaçon et les connexions dans la base d'acrylique avec de l'eau désaérée et replacer les deux bouchons. L'un d'eux doit être munis d'une sortie et d'un petit tube en U (afin d'éviter la remonter d'air en cas de désaturation partielle du colimaçon). Noter la masse de la cellule et la date de départ de l'essai.

3.2 Application de la pression

Au moyen du régulateur de pression, régler la pression à la valeur désirée et la brancher sur la connexion « quick » située sur le couvercle de la cellule. Attendre 24 heures au moins. Noter la pression exercée. Débrancher l'air comprimé de la cellule. Noter la masse de la cellule et la date. Répéter l'opération à la même pression tant que la cellule ne conserve pas la même masse pendant 3 lectures consécutives (+- 0.2 g entre 3 lectures). En général, 24 ou 48 heures sont nécessaires pour atteindre l'équilibre dans l'échantillon (parfois plus pour les sols plus fins, et plus également en fin d'essai quand la perméabilité devient très faible dans le sol).

Note : on ne purge pas la pression dans la cellule à chaque pallier. L'erreur induite dans la mesure de masse sera corrigée à la fin de l'essai.

Pour un sol non réactif, il est possible d'appliquer une succion directement à la base afin d'avoir des valeurs plus précises pour les faibles pressions (les manodétendeurs ont tendance à varier beaucoup selon les modèles pour des pressions inférieures à 15 kPa). Pour ce faire, il suffit de remplacer le tube en U par un tube plus long (saturé) que l'on viendra placer sous la cellule. Le haut de la cellule doit être ouvert à l'être libre. La succion est directement égale à la distance entre la céramique (approximée par la base d'acrylique) et la sortie du tube. On prendra garde de bien replacer le tube en U dans sa configuration initiale pour mesurer la masse de la cellule à chaque pallier ainsi appliqué.

3.3 Augmentation de la pression

Après stabilisation, prendre la masse finale de la cellule pour ce palier de pression. Augmenter la pression à la prochaine valeur voulue et répéter l'étape 3.2.

La courbe de rétention d'eau est généralement présentée dans un graphique avec une échelle logarithmique pour l'axe des abscisses (succions). Pour un sol de type silt, on conseille les paliers suivants :

0 – 15 – 30 – 45 – 60 – 90 – 120 – 175 – 250 – 400 – 600 – 900 – 1450 kPa

Il peut être intéressant, selon le sol testé, de choisir des paliers plus courts autour des points d'inflexion (pression d'entrée d'eau, pression d'entrée d'air…).

3.4 Détermination de la fin de l'essai

L'essai est considéré terminé lorsque l'écoulement cesse ou lorsque la pression exercée approche la capacité de rétention capillaire des pierres céramiques.

3.5 Estimation de la masse d'air ou d'azote emprisonné dans la cellule

Au vu des pressions exercées, la masse d'air ou d'azote dans la cellule peut-être non négligeable. On déconseille cependant de ramener celle-ci à la pression atmosphérique à chaque pallier en raison des problèmes d'équilibre et de déstabilisation de l'échantillon. Par contre, il est possible de corriger les valeurs de masses. Une calibration peut être réalisée sur une cellule test, ou alors, il suffit de prendre la masse finale de la cellule sous pression et une fois purgée. En considérant que la relation pression – masse d'air/azote est linéaire, il reste à corriger les résultats par une simple règle de trois.

Note : S'assurer que le colimaçon dans la base d'acrylique sous la pierre céramique demeure saturé tout au long de l'essai. Une désaturation peut signifier une perte d'étanchéité au niveau de la plaque de céramique inférieure ou un phénomène de cavitation dès que la pression exercée dans la cellule dépasse les 100 kPa. Dans ce cas, il convient de le resaturer en utilisant les deux sorties dans la base d'acrylique avec de très faibles débits pour éviter de faire remonter l'eau dans

l'échantillon. Réappliquer la pression pour quelques minutes pour expulser l'excédent d'eau et prendre la masse de la cellule à la fin de l'opération.

4. Démontage à la fin de l'essai de rétention capillaire

4.1 Démontage de la cellule Tempe

Relâcher la pression exercée à l'intérieur de la cellule et reprendre sa masse purgée (avec la base toujours saturée). Rouvrir la cellule. Noter la masse humide finale de la plaque de céramique supérieure (époussetée des éventuelles grains de sol collés à sa surface). Elle ne devrait pas avoir changé. Si c'est le cas, il est possible que l'essai ne soit pas valide.

Retirer l'échantillon avec la plaque de plexiglas ou de verre employée pour le montage. Noter la masse humide finale de l'échantillon + anneau + plaque. Inscrire tous changements (taille, texture, couleur, etc.) et observations sur la feuille de laboratoire. Mesurer la teneur en eau finale de l'échantillon.

Noter la masse humide finale de la pierre céramique inférieure (elle ne devrait pas avoir changée non plus, sans quoi l'essai n'est peut-être pas valide).

5. Calculs et rapport

5.1 Rapport des informations

Inscrire :

La provenance de l'échantillon ;

Date du début et de fin d'essai ;

Nom du manipulateur ;

Capacité de rétention des pierres céramiques ;

Nom du fichier où sont conservées les données

5.2 Données pour calculs

Inscrire :

Densité des grains solides ;

Volume de l'anneau (Étape 2.1) ;

Masse de l'anneau + plaque de verre (Étape 2.1) ;

Masse initiale de l'anneau + plaque + sol humide (Étape 2.3) ;

Masse finale de l'anneau + plaque + sol humide (Étape 4.1) ;

Teneurs en eau (Étape 4.1) ;

Pressions effectives dans la cellule ;

Masses de la cellule à chaque palier.

5.3 Calculs

Calcul de l'indice des vides

$$e = \left(\frac{Dr_s \cdot V_t}{M_s} \right) - 1 = \frac{V_v}{V_s}$$

où : e : Indice des vides [-]

Dr_s : Densité relative du sol [$M.L^{-3}$]

V_t : Volume total de l'anneau [L^3]

M_s : Masse de sol sec [M]

V_v : Volume des vides [L^3]

V_s : Volume de sol / des solides [L^3]

Calcul de la porosité

$$n = \frac{e}{(1+e)} = \frac{V_v}{V_t}$$

où : n : Porosité [-]

e : Indice des vides [-]

V_v : Volume des vides [L^3]

V_t : Volume total [L^3]

5.3.3 Calculs de la teneur en eau volumique et du degré de saturation au début et à la fin de l'essai

5.3.3.1 La teneur en eau volumique initiale et le degré de saturation initial sont calculés à partir de la masse humide initiale mesurée à l'étape 2.3. Ainsi,

$$\theta_{w,i} = \left(\frac{\left(M_{hi} - M_s\right)}{Dr_{Liq}} \right) \cdot \frac{100}{V_t}$$

où : $\theta_{w,i}$: Teneur en eau volumique initiale en liquide [-]

M_{hi} : Masse initiale de sol humide [M]

M_s : Masse de sol sec [M]

Dr_{Liq} : Masse volumique de l'eau [$M.L^{-3}$]

V_t : Volume totale de l'anneau (échantillon) [L^3]

$$S_{r,i} = \frac{\theta_{w,i}}{n}$$

où : $S_{r,i}$: Degré de saturation initial [-]

θ_i : Teneur en eau volumique initiale [-]

n : porosité du sol [-]

5.3.3.2 La teneur en eau volumique et le degré de saturation finaux sont estimés à partir de la masse humide finale mesurée à l'étape 4.1. Ainsi,

$$\theta_{w,f} = \left(\frac{M_{hf} - M_s}{Dr_{Liq}} \right) \cdot \frac{100}{V_t}$$

où : $\theta_{w,f}$: Teneur en eau volumique finale [-]

M_{hf} : Masse finale de sol humide [M]

M_s : Masse de sol sec [M]

Dr_{Liq} : Masse volumique de l'eau [$M.L^{-3}$]

V_t : Volume totale de l'anneau [L^3]

$$S_{r,f} = \frac{\theta_{w,f}}{n}$$

où : $S_{r,f}$: Degré de saturation final [-]

θ_f : Teneur en eau volumique finale [-]

n : porosité du sol [-]

5.4 Calculs de la teneur en eau volumique et du degré de saturation pendant l'essai

La teneur en eau volumique et le degré de saturation de chaque palier de pression sont calculés à partir de la masse humide finale du sol (étape 4.1) et en y additionnant la masse de liquide écoulée de la cellule. C'est-à-dire en y additionnant la différence de masse entre la masse de la cellule à ce palier et la masse de la cellule au dernier palier. Ainsi,

$$\theta_{w,15} = \left(\frac{M_{hf} - M_s + M_{cel15} - M_{celf}}{Dr_{Liq}} \right) \cdot \frac{100}{V_t}$$

où : $\theta_{w,15}$: Teneur en eau volumique à 15 psi [-]

M_{hf} : Masse finale de sol humide [M]

M_s : Masse de sol sec [M]

M_{cel15} : Masse de la cellule à 15 psi [M]

M_{celf} : Masse de la cellule à la fin de l'essai [M]

Dr_{Liq} : Masse volumique de l'eau [$M.L^{-3}$]

V_t : Volume total de l'anneau [L^3]

$$S_{r,15} = \frac{\theta_{w,15}}{n}$$

où : $S_{r,15}$: Degré de saturation à 15 psi [-]

θ_{15} : Teneur en eau volumique à 15 psi [-]

n : porosité du sol [-]

Et de même pour chacun des paliers de pressions.

Noter que le calcul peut également être fait à partir de la masse humide initiale de l'échantillon (ce qui permet de réaliser un suivi au cours de l'essai).

Ne pas oublier de retirer la masse d'air ou d'azote emprisonné à la masse de la cellule mesurée à chaque pallier.

5.5 Courbe de rétention d'eau

Le graphique de la teneur en eau volumique et du degré de saturation en fonction de la pression (en hauteur d'eau ou en Pa) est tracé à partir des données calculées à l'étape 5.4. L'échelle de pression est généralement présentée sous forme logarithmique.

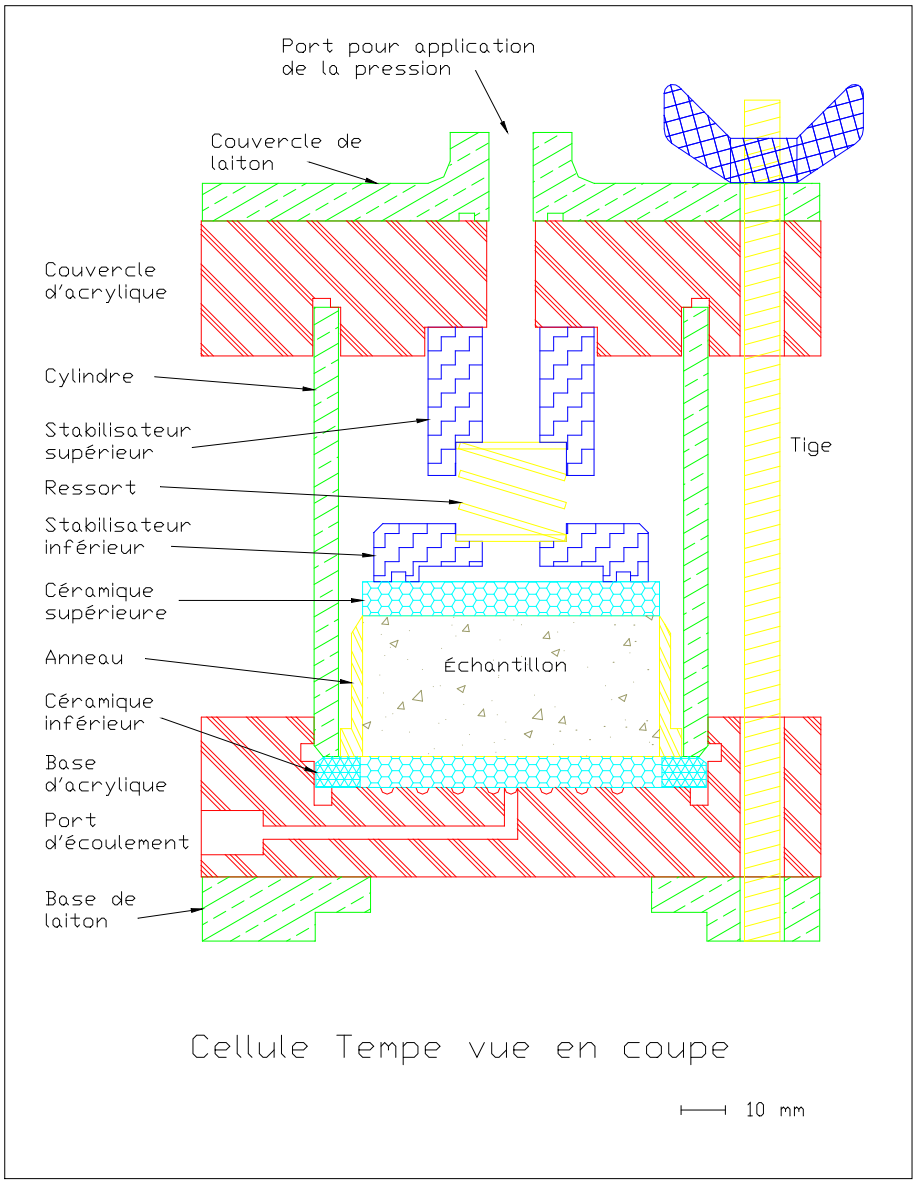


Figure A3.1: Schéma d'une cellule Tempe vue en coupe

ANNEXE 3.2 – Caractéristiques des matériaux au montage des grandes colonnes

Tableau A3.2.1: Caractéristiques des matériaux au montage de la colonne MNOG

Colonne MNOG							
Couche	Matériau	Epaisseur (cm)	Masse totale (kg)	Masse sèche (kg)	e (-)	θ_w (-)	S_r (-)
1	MNO	13,6	5,33	4,20	0,86	0,45	0,98
2	MNO	12,4	4,83	3,93	0,81	0,40	0,90
3	MNO	12,3	4,85	3,91	0,81	0,42	0,94
4	MNO	12,3	5,00	3,99	0,77	0,45	1,02
5	MNO	14,4	5,04	4,07	0,78	0,42	0,94
6	MNO	14,0	4,95	3,98	0,78	0,43	0,97
7	MNO	14,3	4,95	3,99	0,82	0,42	0,92
8	MNO	13,3	4,78	3,92	0,73	0,40	0,95
9	MNO	12,4	4,64	3,88	0,63	0,38	0,99
10	MNO	13,4	4,84	3,87	0,77	0,44	1,02
11	MNO	13,8	4,82	3,78	0,86	0,46	1,00
12	MNO	14,1	5,03	4,02	0,80	0,44	0,98
13	MNO	17,1	6,11	4,94	0,77	0,42	0,97
14	Goldex	21,3	7,00	5,56	0,73	0,42	0,99
15	Goldex	18,0	5,81	4,62	0,76	0,41	0,95

Tableau A3.2.2: Caractéristiques des matériaux au montage de la colonne MOG

Colonne MOG							
Couche	Matériau	Epaisseur (cm)	Masse totale (kg)	Masse sèche (kg)	e (-)	θ_w (-)	S_r (-)
1	MO	12,2	4,76	3,81	0,63	0,42	1,10
2	MO	13,7	4,81	3,88	0,78	0,37	0,84
3	MO	12,2	4,79	3,96	0,56	0,37	1,03
4	MO	12,9	4,80	3,88	0,66	0,39	0,99
5	MO	13,2	4,92	4,01	0,65	0,38	0,97
6	MO	13,4	4,82	3,92	0,71	0,37	0,88
7	MO	13,2	4,90	4,00	0,65	0,37	0,95
8	MO	18,1	6,20	4,80	0,70	0,48	1,16
9	MO	16,5	6,36	5,17	0,44	0,44	1,45
10	MO	15,8	5,23	4,25	0,68	0,38	0,95
11	MO	15,3	5,12	4,20	0,64	0,37	0,94
12	MO	22,8	7,28	5,91	0,74	0,37	0,87
13	Goldex	33,1	11,40	9,33	0,60	0,38	1,02

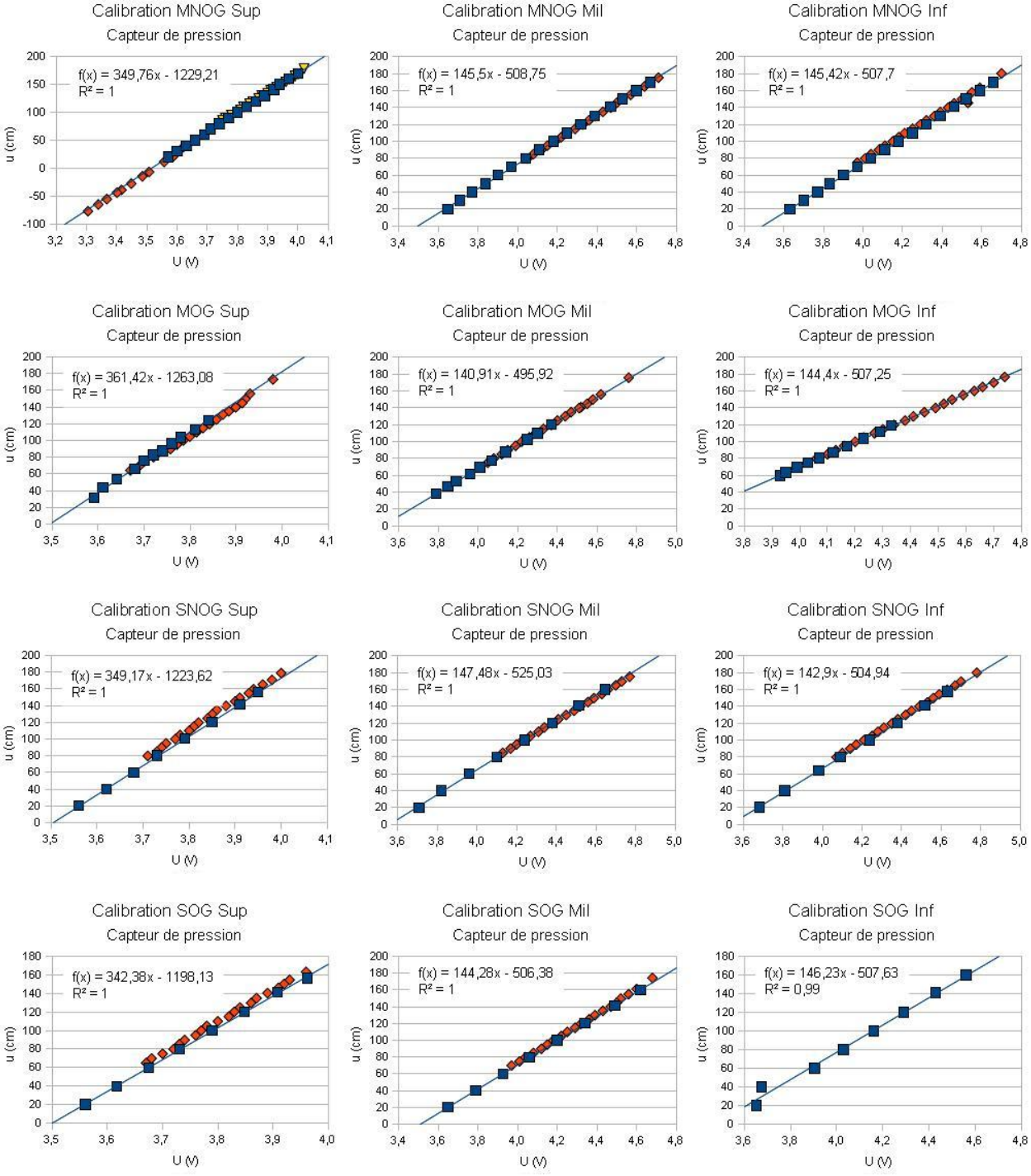
Tableau A3.2.3: Caractéristiques des matériaux au montage de la colonne SNOG

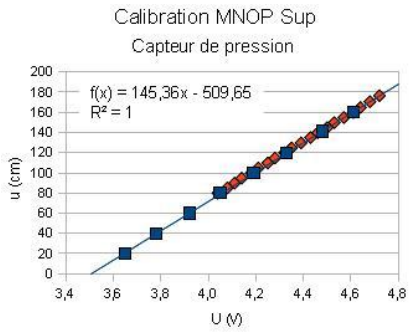
Colonne SNOG							
Couche	Matériau	Epaisseur (cm)	Masse totale (kg)	Masse sèche (kg)	e (-)	θ_w (-)	S_r (-)
1	SNO	14,0	5,40	4,48	0,55	0,37	1,03
2	SNO	10,7	4,40	3,69	0,44	0,37	1,20
3	SNO	11,7	4,78	4,03	0,44	0,35	1,14
4	SNO	12,2	4,70	4,07	0,49	0,28	0,87
5	SNO	12,5	4,77	4,09	0,53	0,30	0,87
6	SNO	11,9	4,75	4,06	0,47	0,31	0,98
7	SNO	12,4	5,02	4,39	0,42	0,27	0,92
8	SNO	12,4	5,05	4,13	0,51	0,40	1,19
9	SNO	15,3	6,20	5,15	0,49	0,38	1,14
10	SNO	14,5	5,19	4,37	0,47	0,35	1,08
11	SNO	13,4	4,80	4,11	0,45	0,32	1,03
12	SNO	12,4	4,82	4,36	0,26	0,23	1,10
13	SNO	24,8	8,94	7,60	0,46	0,33	1,06
14	Moraine	30,0	11,05	9,18	0,42	0,38	1,30

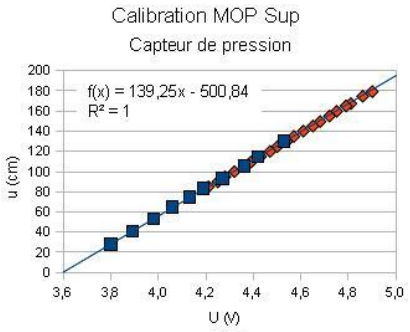
Tableau A3.2.4: Caractéristiques des matériaux au montage de la colonne SOG

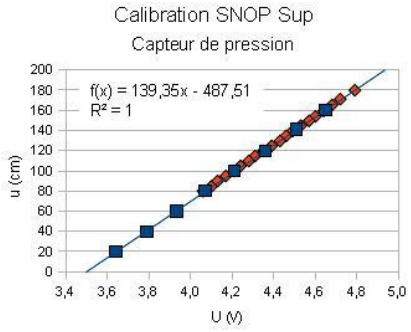
Colonne SOG							
Couche	Matériau	Epaisseur (cm)	Masse totale (kg)	Masse sèche (kg)	e (-)	θ_w (-)	S_r (-)
1	SO	12,9	5,11	4,19	0,62	0,39	1,02
2	SO	11,4	4,80	3,97	0,50	0,40	1,21
3	SO	14,4	5,38	4,47	0,68	0,35	0,85
4	SO	13,1	5,17	4,24	0,62	0,39	1,02
5	SO	15,0	5,02	4,17	0,68	0,35	0,85
6	SO	12,2	4,60	4,09	0,40	0,25	0,88
7	SO	14,1	4,78	3,93	0,68	0,37	0,91
8	SO	24,5	8,64	6,99	0,64	0,41	1,06
9	SO	15,1	5,43	4,50	0,57	0,38	1,04
10	SO	12,7	4,72	4,15	0,43	0,28	0,92
11	SO	14,4	5,21	4,28	0,58	0,39	1,08
12	SO	16,4	5,93	4,83	0,59	0,41	1,10
13	Moraine	34,3	11,95	10,41	0,42	0,28	0,93

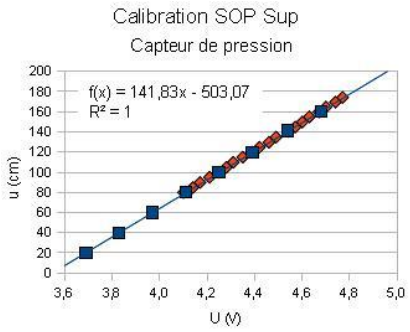
ANNEXE 3.3 – Calibration des tensiomètres




Calibration MNOP Sup
Capteur de pression
f(x) = 145,36x - 509,65
R² = 1
u (cm)
U (V)


Calibration MOP Sup
Capteur de pression
f(x) = 139,25x - 500,84
R² = 1
u (cm)
U (V)


Calibration SNOP Sup
Capteur de pression
f(x) = 139,35x - 487,51
R² = 1
u (cm)
U (V)


Calibration SOP Sup
Capteur de pression
f(x) = 141,83x - 503,07
R² = 1
u (cm)
U (V)

ANNEXE 4.1 – Analyses minéralogiques (DRX) initiales (obtenues de l'UQAT-URSTM)

Minéral	MNO	MO	Goldex	SNO	SO	Moraine
Pyrite	15,92	0,01	0,16	2,20	5,84	-
Chalcopyrite	0,05	-	1,60	-	-	-
Sphalérite	-	0,01	-	-	-	-
Quartz	48,41	67,08	19,08	78,43	65,90	39,62
Calcite	-	-	-	-	-	-
Dolomite	-	-	-	0,06	0,04	3,43
Chlorite	2,76	19,77	6,20	11,59	6,19	1,87
Hématite	-	0,33	-	-	-	-
Orthoclase	1,94	-	0,81	3,63	5,93	2,39
Muscovite	7,34	12,65	2,54	0,32	8,22	1,71
Corundum	1,66	-	2,36	-	-	-
Albite	1,42	-	48,14	-	-	18,75
Phlogopite	-	-	-	-	-	1,34
Microcline	-	-	-	-	-	5,45
Anorthite	15,05	-	7,43	-	-	21,60
Actinolite	3,11	-	5,04	-	-	3,14
Paragonite	-	-	-	0,28	4,14	-
Epidote	-	-	5,05	2,47	3,74	-
Zoïsite	-	-	-	1,02	-	-
Gypse	0,17	0,06	0,13	-	-	-
Jarosite	2,17	0,09	1,46	-	-	0,70

ANNEXE 4.2 – Analyses ICP-AES de l'eau interstitielle initialement présente dans les grandes colonnes (obtenues de l'UQAT-URSTM)

Elément	Lim. de détec. (ppm)	MNOG (ppm)	Goldex (ppm)	SNOG (ppm)	SOG (ppm)	Moraine (ppm)
Al	0,010	933	0,018	<0,01	0,028	0,013
As	0,060	<0,06	<0,06	<0,06	<0,06	<0,06
Ba	0,001	0,084	0,037	0,029	0,032	0,072
Be	0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001
Bi	0,020	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02
Ca	0,030	444	514	233	667	325
Cd	0,003	1,57	<0,003	0,007	0,010	<0,003
Co	0,004	2,54	<0,004	0,009	<0,004	<0,004
Cr	0,003	0,590	0,004	0,007	0,006	0,005
Cu	0,003	150	<0,003	0,036	0,008	0,036
Fe	0,006	2170	0,022	0,007	0,117	0,204
Mg	0,001	328	24,1	145	110	43,9
Mn	0,002	19,1	0,006	2,69	1,69	0,060
Mo	0,009	<0,009	0,057	0,042	<0,009	<0,009
Ni	0,004	1,44	<0,004	0,018	0,008	0,007
Pb	0,020	0,365	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02
S_{total}	0,090	3740	511	350	632	286
Sb	0,090	0,119	<0,09	<0,09	<0,09	<0,09
Se	0,100	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1
Si	0,020	73,4	3,91	3,82	5,98	4,08
Ti	0,002	0,014	<0,002	<0,002	<0,002	<0,002
Zn	0,005	358	0,012	0,433	0,249	0,077

ANNEXE 4.3 – Caractéristiques granulométriques des résidus Manitou et Goldex prélevés *in situ*

Ech.	D_{60} (mm)	D_{10} (mm)	C_U (-)	<75 µm
M-C1S	0,111	0,037	3,0	40%
M-C1P	0,114	0,052	2,2	41%
M-C2S	0,109	0,044	2,5	41%
M-C2P	0,090	0,030	3,0	47%
M-C3S	0,127	0,020	6,4	40%
M-C3P	0,154	0,021	7,3	39%
M-C4	0,063	0,004	14,0	76%
M-C5	0,114	0,026	4,4	44%
M-E1	0,033	0,003	12,7	83%
M-E2	0,166	0,042	4,0	30%
M-E3	0,136	0,013	10,6	36%
M-E4	0,129	0,034	3,8	38%
M-B1	0,072	0,008	9,0	66%
M-B2	0,034	0,003	11,4	94%

Ech.	D_{60} (mm)	D_{10} (mm)	C_U (-)	<75 µm
M-B3	0,008	0,001	8,3	100%
M-B4	0,011	0,002	6,2	98%
M-B5a	0,019	0,002	9,5	97%
M-B5b	0,070	0,011	6,3	72%
G-C1	0,077	0,007	11,2	59%
G-C2	0,120	0,009	13,1	45%
G-C3	0,135	0,010	13,9	41%
G-C4	0,134	0,010	12,8	42%
G-C5	0,065	0,006	11,2	65%
h10cm	0,115	0,012	9,6	45%
h20cm	0,170	0,018	9,5	31%
h30cm	0,171	0,014	12,5	32%
h40cm	0,155	0,016	9,9	34%
h50cm	0,077	0,005	15,0	56%

ANNEXE 4.4 – Densités relatives des grains (Manitou et Goldex) mesurées sur des échantillons prélevés *in situ*

Echantillon	D_r (-)
M-C1S	2,824
M-C1P	2,993
M-C2S	3,021
M-C2P	2,986
M-C3S	2,752
M-C3P	2,798
M-C4S	2,841
M-C5S	3,202

Echantillon	D_r (-)
M-E1	3,055
M-E2	3,065
M-E3	2,807
M-E4	2,994
G-C1	2,693
G-C2	2,710
G-C3	2,703
G-C4	2,701

Echantillon	D_r (-)
M-B1	3,209
M-B2	3,087
M-B3	2,901
M-B4	2,985
M-B5a	3,033
M-B5b	3,267

ANNEXE 4.5 – Analyses minéralogiques (DRX) effectuées sur certains des échantillons prélevés *in situ* (Manitou et Goldex)(analyses réalisées à l'URSTM)

	M-C1S	M-C1P	M-C2S	M-C2P	M-C3S	M-C3P	M-C4S	M-C5S
Pyrite	3,6	12,2	13,9	11,8	1,5	2,3	0,1	17,5
Quartz	63,9	54,0	52,5	55,3	65,0	65,2	52,9	50,7
Chlorite	1,5	2,5	0,3	1,3	1,4	2,9	0,9	4,8
Muscovite	16,6	12,3	14,2	13,5	21,4	15,8	31,0	11,9
Albite	11,0	13,8	14,8	13,9	6,2	5,8	6,1	8,3
Calcite	0,1	0,2	0,1	0,2	0,1	0,1	0,0	0,1
Dolomite	0,0	0,0	0,0	0,2	0,2	0,0	0,1	0,0
Autres	3,3	5,0	4,2	3,8	4,2	7,9	8,9	6,7

	M-E1	M-E2	M-E3	M-E4	M-B1	M-B2	M-B3
Pyrite	10,7	11,5	0,1	15,1	18,5	12,9	7,9
Quartz	48,0	61,1	66,3	68,8	42,1	42,9	29,6
Chlorite	7,4	5,9	6,0	1,6	2,4	3,8	3,3
Muscovite	20,8	12,0	17,0	4,0	16,7	23,3	41,5
Albite	4,3	2,9	5,0	4,8	3,2	1,9	3,1
Calcite	0,0	0,4	0,1	0,2	6,0	4,8	4,0
Dolomite	0,2	0,3	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
Autres	8,6	5,9	5,5	5,5	11,1	10,4	10,6

	G-C1	G-C2	G-C3	G-C4	G-C5
Pyrite	0,0	0,0	0,1	0,0	0,0
Chalcopyrite	0,0	0,0	0,0	1,5	0,0
Quartz	25,7	23,9	26,4	23,6	23,3
Chlorite	4,8	5,1	3,2	5,2	5,8
Muscovite	6,5	7,0	6,7	7,0	6,4
Albite	53,6	54,6	55,7	55,6	54,7
Calcite	3,0	2,7	2,2	2,0	2,6
Dolomite	0,6	0,6	1,3	0,5	1,0
Autres	5,8	6,0	4,4	4,6	6,2

ANNEXE 4.6 – Analyses LECO effectuées sur certains des échantillons prélevés *in situ* (Manitou)

Echantillon	%C	%S	Echantillon	%C	%S
M-C1S	<0,1	3,1	M-E1	<0,1	10,2
M-C1P	<0,1	10,1	M-E2	<0,1	2,4
M-C2S	<0,1	8,0	M-E3	<0,1	0,6
M-C2P	<0,1	6,0	M-E4	<0,1	7,1
M-C3S	<0,1	9,0	M-B1	0,05	16,9
M-C3P	<0,1	5,7	M-B2	0,04	10,7
M-C4S	0,1	1,3	M-B3	0,07	6,2
M-C5S	<0,1	19,7			

ANNEXE 4.7 – Indices des vides en place dans les résidus Manitou et Goldex (mesure par anneau)

Manitou	e (-)
Essai 1	1,06
Essai 2	1,20
Essai 3	1,08
Essai 4	1,46
Essai 5	1,07

Goldex (surface)	e (-)
Essai 1	0,900
Essai 3	0,907
Essai 5	0,726
Essai 7	0,846

Goldex (z=-30cm)	e (-)
Essai 2	0,738
Essai 4	0,780
Essai 6	0,704
Essai 8	0,829

ANNEXE 4.8 – Caractéristiques granulométriques des échantillons de Moraine prélevés *in situ* (Selbaie)

Ech.	D_{60} (mm)	D_{10} (mm)	C_U (-)	<75 µm
86	0,110	0,004	25,5	52%
87	0,241	0,008	32,0	32%
91	0,305	0,020	15,2	22%
100	0,191	0,004	47,8	38%
101	0,248	0,008	31,9	31%
103	0,311	0,009	35,1	26%
104	0,215	0,007	29,6	34%
106	0,337	0,016	21,7	23%
107	0,310	0,012	25,8	22%
108	0,255	0,014	18,2	27%
116	0,290	0,009	32,2	25%

Ech.	D_{60} (mm)	D_{10} (mm)	C_U (-)	<75 µm
119	0,290	0,009	32,2	25%
123	0,064	0,001	64,4	65%
124	0,235	0,007	34,9	34%
130	0,245	0,010	25,6	27%
133	0,305	0,012	26,5	24%
Cône 1	0,200	0,005	36,4	32%
Cône 3	0,180	0,005	39,9	35%
Cône 5	0,204	0,005	39,8	32%
Cône 7	0,203	0,004	53,3	33%
Cône 9	0,238	0,005	52,2	30%
Cône 13	0,214	0,020	10,9	21%

ANNEXE 4.9 – Caractéristiques granulométriques des échantillons de résidus Selbaie prélevés *in situ*

Ech.	D_{60} (mm)	D_{10} (mm)	C_U (-)	<75 µm
Cône 11	0,027	0,003	9,7	75%
T1	0,060	0,004	14,2	72%
T2NO	0,078	0,007	10,7	56%
T2OB	0,075	0,008	9,5	61%

Ech.	D_{60} (mm)	D_{10} (mm)	C_U (-)	<75 µm
T2OH	0,075	0,007	10,8	59%
TNONS	0,072	0,005	14,4	65%
TNONS2	0,070	0,006	11,1	69%

ANNEXE 4.10 – Compte rendu des observations lors de l'installation des stations de mesures sur le site Selbaie

Tranchée N°	Coordonnées GPS	Piézo à proximité immédiate	Epaisseur moraine	Observations
1	0647459 5518158	PO-03-04	125 cm	Pas d'oxydation - Saturation
2	0647208 5518172	PO-02-04	125 cm	Couche oxydée de 80 cm d'épaisseur
3	0646831 5518143	PO-04-04	110 cm	Pas d'oxydation - Saturation
4	0646564 5518333	PO-05-04	110 cm	Fine couche oxydée
5	0646338 5518672	PO-07-04	160 cm	Non revégétée Moraine brune plus sombre Pas de couche oxydée
6	0646471 5518960	PO-10-04	100 cm	Non revégétée Moraine brune plus sombre
7	0646628 5518721	-	100 cm	Très fine couche oxydée
8	0647062 5518646	Piézo 21	120 cm	Couche oxydée très épaisse
9	0647290 5518580	Piézo 19	170 cm	Résidus oxydés bariolés
10	0647483 5518427	-	120 cm	Fine couche oxydée

ANNEXE 5.1 – Indices des vides dans les grandes colonnes

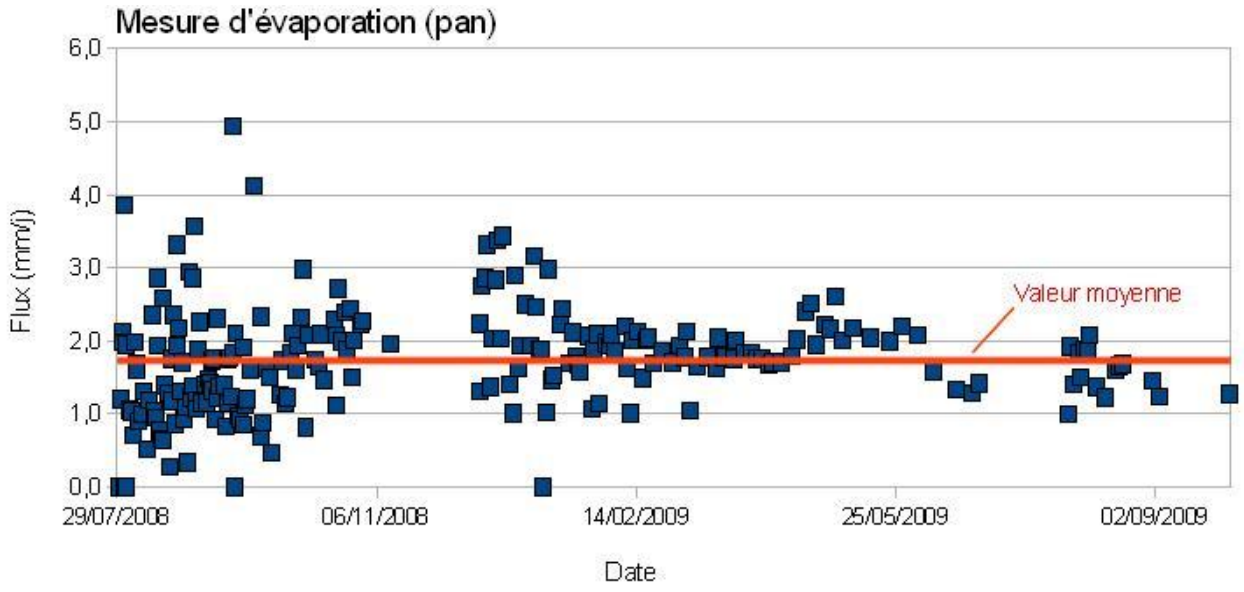
Montage (estimation par couche)

MNOG		MOG		SNOG		SOG	
z (cm)	e (-)	z (cm)	e (-)	z (cm)	e (-)	z (cm)	e (-)
6,8	0,86	6,1	0,63	14,0	7,0	6,5	0,62
19,8	0,81	19,1	0,78	24,6	19,3	18,6	0,50
32,1	0,81	32,0	0,56	36,4	30,5	31,5	0,68
44,4	0,77	44,6	0,66	48,5	42,5	45,2	0,62
57,8	0,80	57,6	0,65	61,0	54,8	59,3	0,68
72,0	0,78	71,0	0,71	72,9	67,0	72,9	0,40
86,1	0,82	84,3	0,65	85,4	79,1	86,0	0,68
99,9	0,73	100,0	0,70	97,8	91,6	105,3	0,64
112,8	0,63	117,3	0,44	113,1	105,5	125,1	0,57
125,6	0,77	133,4	0,68	127,6	120,3	139,0	0,43
139,2	0,86	149,0	0,64	141,0	134,3	152,5	0,58
153,2	0,80	168,0	0,74	153,3	147,1	167,9	0,59
168,8	0,77	196,0	0,60	178,1	165,7	193,2	0,42
188,0	0,73			208,2	193,2		
207,7	0,76						

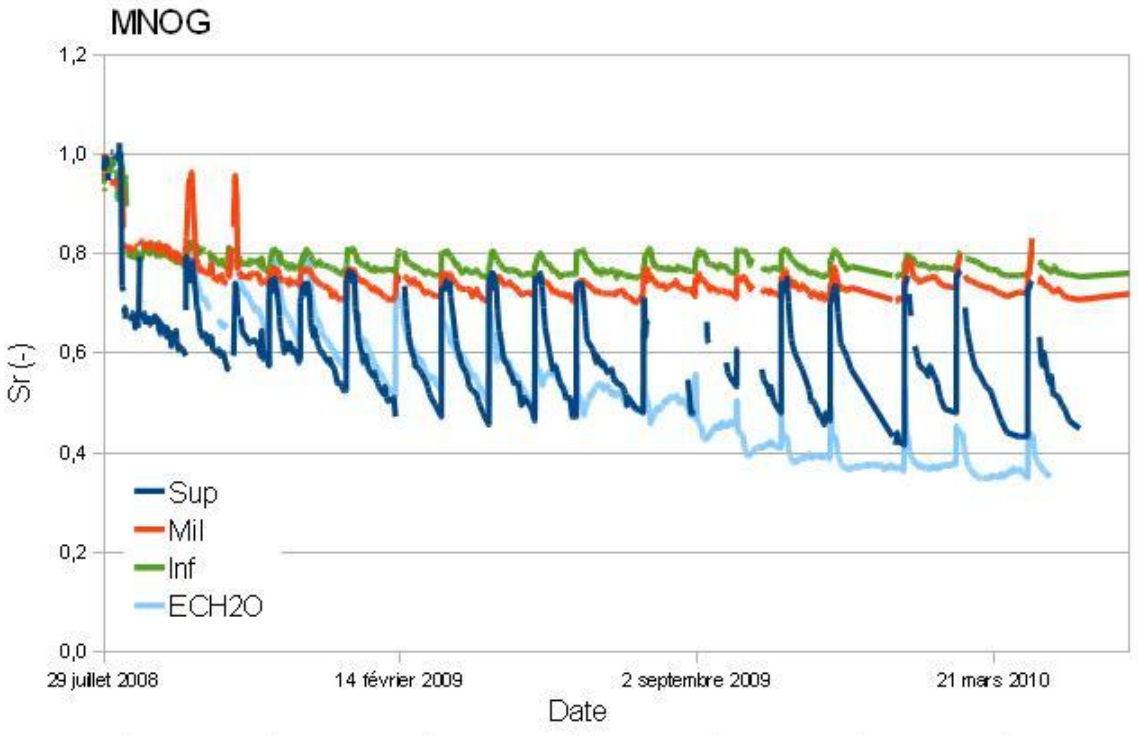
Démontage (mesure par anneau)

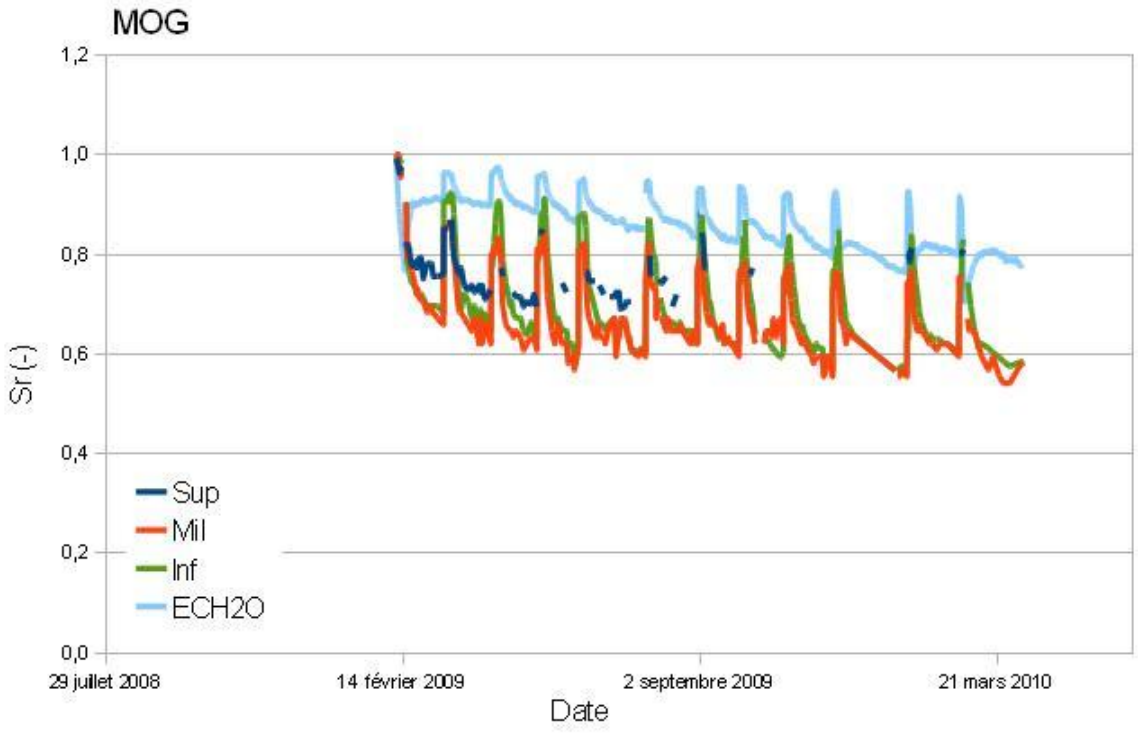
MNOG			MOG			SNOG			SOG		
z(cm)	e_1 (-)	e_2 (-)	z(cm)	e_1 (-)	e_2 (-)	z(cm)	e_1 (-)	e_2 (-)	z(cm)	e_1 (-)	e_2 (-)
6,4	0,79	0,78	5,4	0,67	0,70	2,7			4,1	0,55	0,56
18,6	0,81	0,81	14,8	0,67	0,70	8,9	0,50	0,50	11,6	0,54	0,56
30,2	0,78	0,77	22,8	0,70	0,73	17,8	0,49	0,50	18,4	0,53	0,55
39,6	0,76	0,77	31,6	0,62	0,70	26,9	0,50	0,51	25,3		0,54
46,8	0,77	0,77	39,6	0,66	0,67	34,8	0,51	0,50	32,4	0,53	0,56
53,4	0,78	0,79	46,1	0,60	0,63	44,6	0,57	0,47	39,4	0,56	0,58
59,9	0,74	0,76	53,3	0,68	0,57	54,3	0,52	0,49	46,4	0,58	0,56
67,0	0,78	0,76	61,1	0,59	0,65	62,4	0,49	0,50	53,9	0,58	0,61
74,2	0,81	0,79	68,8	0,68	0,57	70,5	0,48	0,48	61,9	0,60	0,64
82,3	0,77	0,82	76,3	0,65	0,64	78,7	0,50	0,48	69,4	0,58	0,59
91,1	0,73	0,78	82,8	0,61	0,60	86,4	0,54	0,49	76,2	0,62	0,58
98,7	0,77	0,77	89,8	0,64	0,67	93,7	0,51	0,46	83,7	0,58	0,54
105,7	0,73	0,69	97,8	0,66	0,72	100,9	0,54	0,53	90,9	0,57	0,57
112,8	0,78	0,76	105,8	0,74	0,75	108,5	0,51	0,53	97,7	0,58	0,61
120,8	0,82	0,78	115,2	0,76		115,6	0,54	0,54	104,8	0,60	0,60
128,7	0,79	0,75	124,3	0,70	0,70	121,1	0,55	0,56	111,9	0,56	0,58
135,9	0,78	0,77	132,2	0,65		126,9	0,56	0,54	120,0	0,54	0,53
142,9	0,72	0,75	140,3	0,67	0,67	133,9	0,52	0,50	129,5	0,59	0,55
149,9	0,78	0,77	148,1	0,68	0,73	141,1	0,53	0,55	139,3	0,56	0,54
157,1	0,80	0,78	155,6	0,71	0,73	148,1	0,53	0,55	147,5	0,46	0,55
164,9	0,81	0,86	162,7	0,66	0,67	154,8	0,67	0,70	154,8	0,54	0,56
174,1	0,79	0,80	169,2	0,68	0,65	161,0	0,62		161,8	0,58	0,52
181,9			176,1	0,78		167,1	0,49	0,53	170,8	0,53	0,50
188,4	0,76		183,6	0,65	0,85	173,1	0,52	0,53	181,5		
196,6	0,70	0,66	190,8	0,71		180,6	0,64		190,0	0,52	
207,4	0,85	0,79	197,8	0,66		189,6	0,61	0,57	198,5	0,46	0,47
			205,7	0,63		198,6	0,68	0,65	206,0		

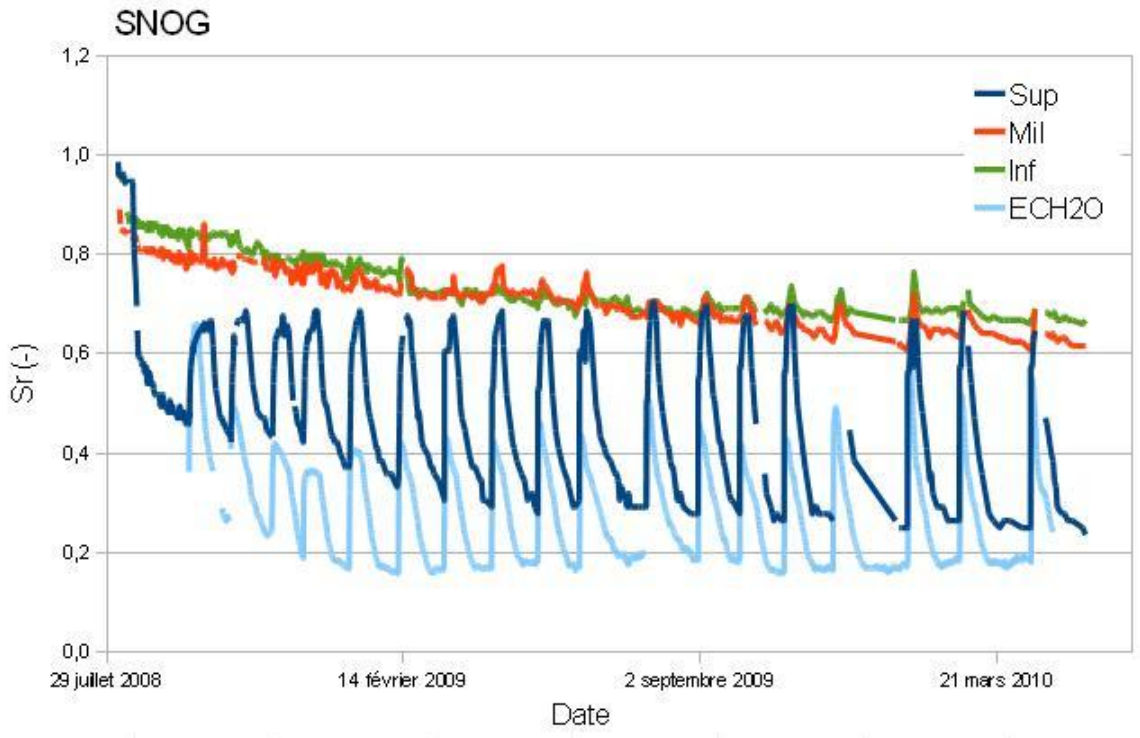
ANNEXE 5.2 – Mesure de l'évaporation au laboratoire

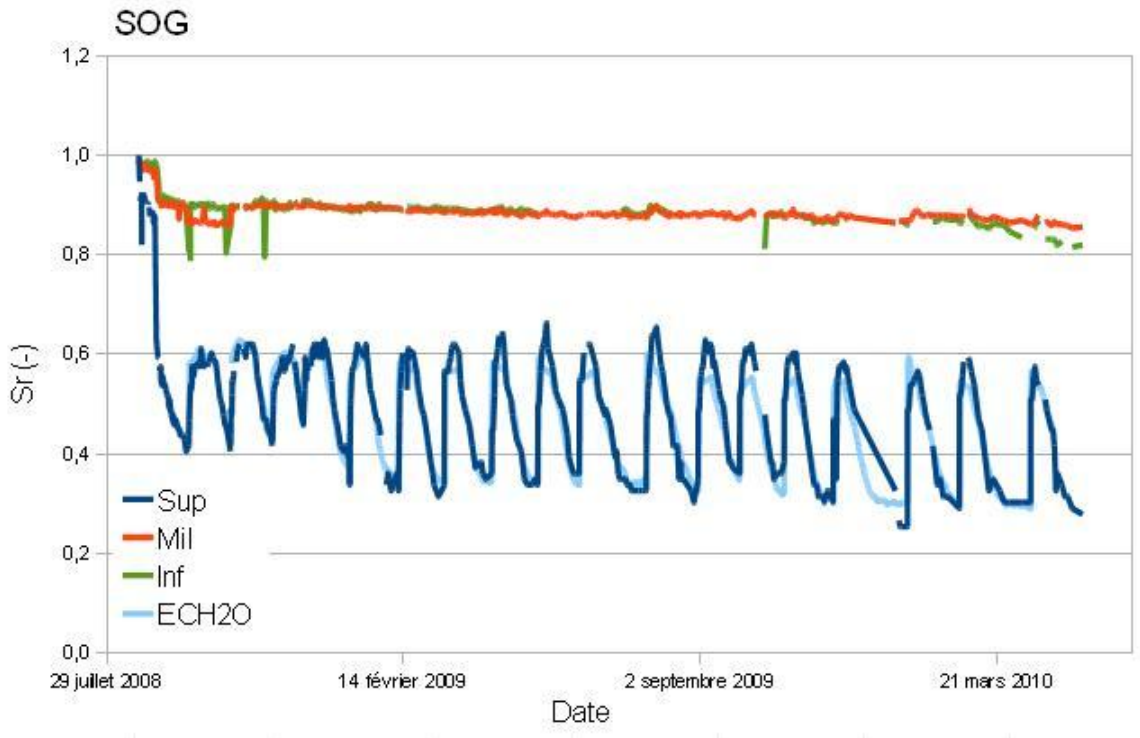


ANNEXE 5.3 – Variations du degré de saturation dans les grandes colonnes à différentes élévations






SNOG
1,2
1,0
0,8
0,6
0,4
0,2
0,0
Sr (-)
Sup
Mil
Inf
ECH2O
29 juillet 2008
14 février 2009
2 septembre 2009
21 mars 2010
Date


SOG
1,2
1,0
0,8
0,6
0,4
0,2
0,0
Sr (-)
Sup
Mil
Inf
ECH2O
29 juillet 2008
14 février 2009
2 septembre 2009
21 mars 2010
Date

ANNEXE 5.4 – Exemple de calcul d'épuisement

Masse de résidus MNO dans la colonne MNOG : $m_T = 52{,}480$ kg

Masse de pyrite initiale dans les résidus MNO : $m_{pyr,0} = 11{,}87\%.m_T = 6{,}229$ kg

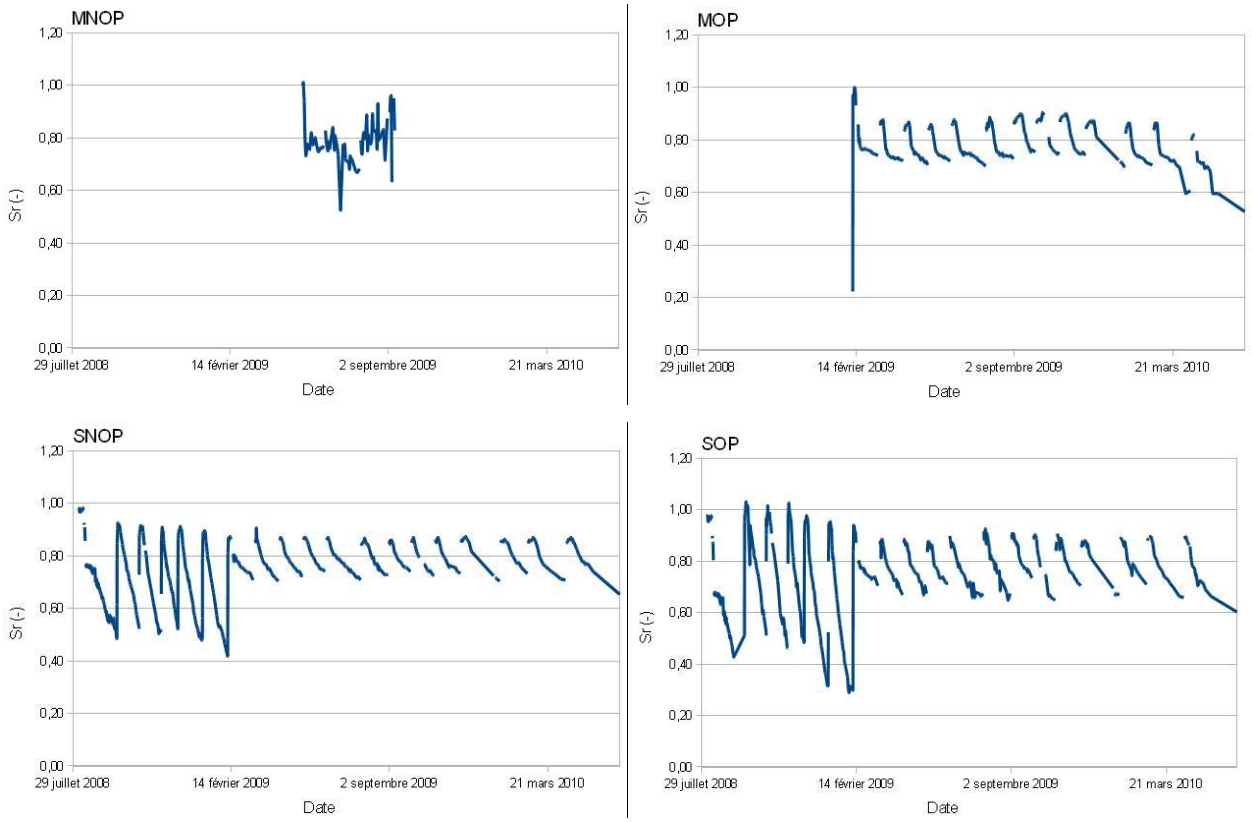
Masse de pyrite consommée au cycle i : $m_{pyr,i} = \frac{[SO_4^{2-}]_i V_i}{2} \cdot M_{pyr}$

avec $[SO_4^{2-}]_i$ exprimé en mol/L et V_i en L, et M_{pyr} la masse molaire de la pyrite ($M_{pyr} = 119{,}975$ g/mol)

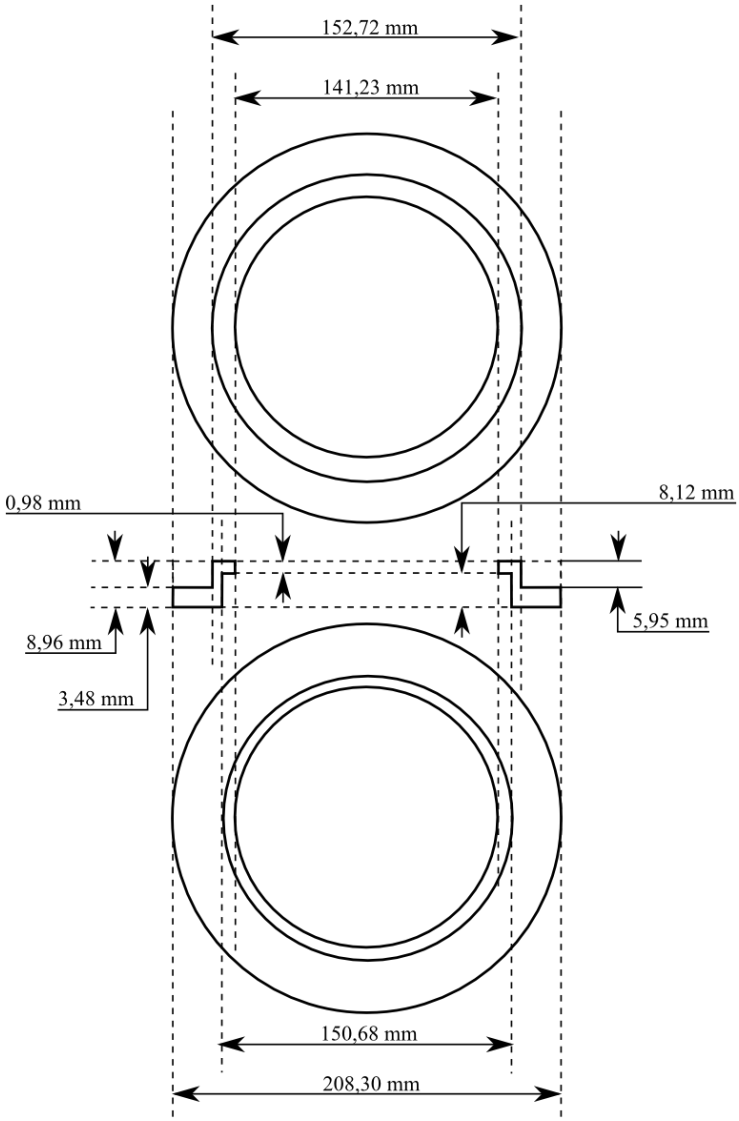
Sur les cycles 14 à 19 (6 derniers cycles), on a récupéré $n_{SO4} = 0{,}312$ mol, soit $m_{pyr} = 18{,}7$ g

Si on suppose le taux de réaction constant tout au long de l'essai, la production de sulfates est égale à la moyenne calculée sur les derniers cycles, soit $n_{SO4,cycle} = 0{,}312/6 = 0{,}052$ mol, soit encore une masse totale de pyrite oxydé sur l'ensemble de l'essai (19 cycles) de $m_{pyr} = 59{,}3$ g

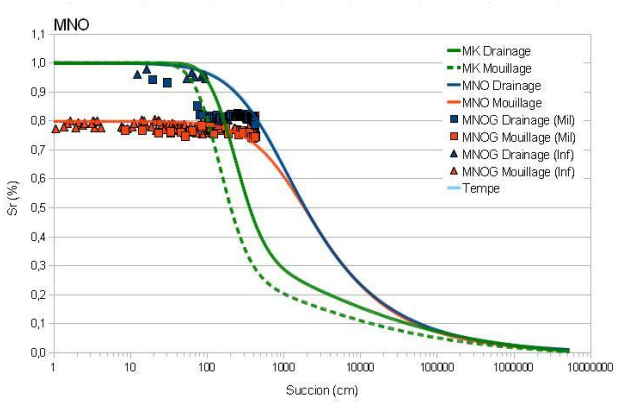
ANNEXE 6.1 – Variations du degré de saturation au sommet des petites colonnes

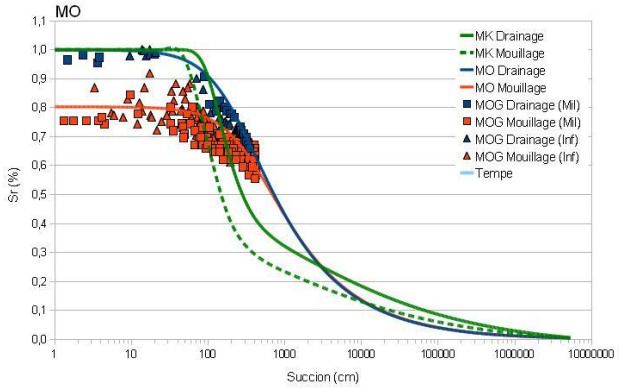


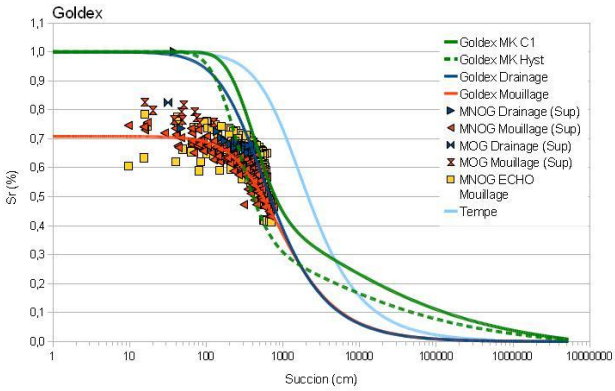
ANNEXE 7.1 – Schéma des céramiques utilisées à la base des grandes colonnes (avec anneau métallique)

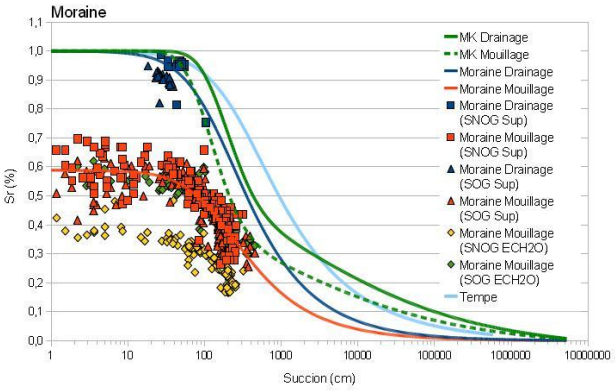


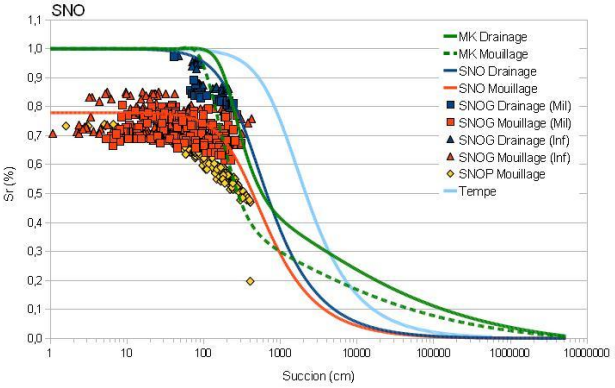
ANNEXE 7.2 – Courbes préliminaires de rétention d'eau en mouillage et en drainage

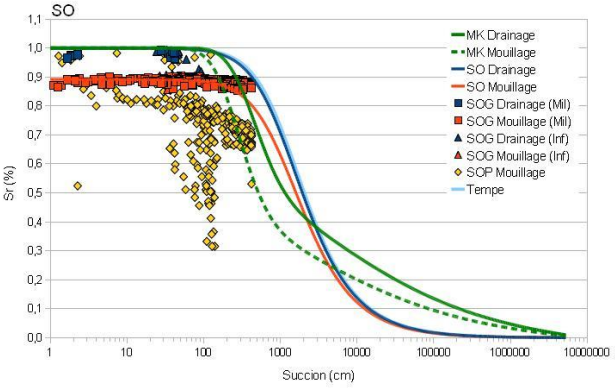












ANNEXE 7.3 – Codage de la fonction Add-In pour simuler la condition frontière inférieure des colonnes dans Vadose/W

```
public class TPFluxBloque : Gsi.Function
{

    public double succion;
    public double cycle2;
    public double cycle3;
    public double cycle4;
    public double cycle5;
    public double cycle6;
    public double cycle7;
    public double cycle8;
    public double cycle9;
    public double cycle10;
    public double cycle11;
    public double cycle12;
    public double cycle13;
    public double cycle14;
    public double cycle15;
    public double cycle16;
    public double cycle17;
    public double cycle18;
    public double cycle19;
    public double Tpsdrainagemin;
    public double x;

    public double Calculate(double head)
    {
      double time = GetParam(Gsi.DataParamType.eTime);
      double debit = GetParam(Gsi.DataParamType.eWaterFlux);

      if(time >= 0 && time <= Tpsdrainagemin*86400){x = succion + 0.001 ;
                    return x;}
```

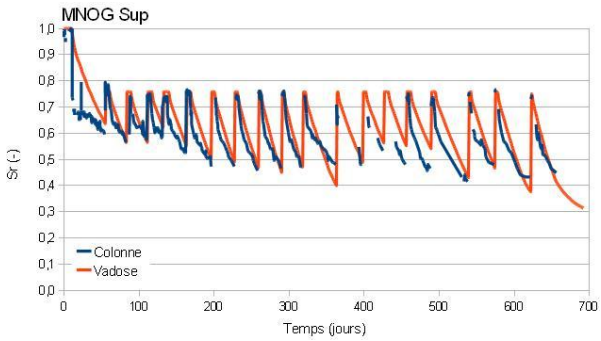
```
    if(time >= cycle2*86400 && time <= cycle2*86400 + Tpsdrainagemin*86400)
                {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle3*86400 && time <= cycle3*86400 + Tpsdrainagemin*86400)
                {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle4*86400 && time <= cycle4*86400 + Tpsdrainagemin*86400)
                {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle5*86400 && time <= cycle5*86400 + Tpsdrainagemin*86400)
                {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle6*86400 && time <= cycle6*86400 + Tpsdrainagemin*86400)
                {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle7*86400 && time <= cycle7*86400 + Tpsdrainagemin*86400)
                {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle8*86400 && time <= cycle8*86400 + Tpsdrainagemin*86400)
                {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle9*86400 && time <= cycle9*86400 + Tpsdrainagemin*86400)
                {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle10*86400 && time <= cycle10*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle11*86400 && time <= cycle11*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle12*86400 && time <= cycle12*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle13*86400 && time <= cycle13*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle14*86400 && time <= cycle14*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle15*86400 && time <= cycle15*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle16*86400 && time <= cycle16*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle17*86400 && time <= cycle17*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle18*86400 && time <= cycle18*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}
    if(time >= cycle19*86400 && time <= cycle19*86400 +
                Tpsdrainagemin*86400) {x = succion + 0.001 ; return x;}

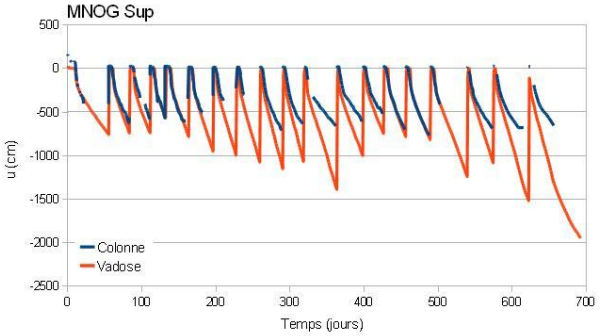

    if(debit > 0) {x = succion - 0.001 ; return x;}

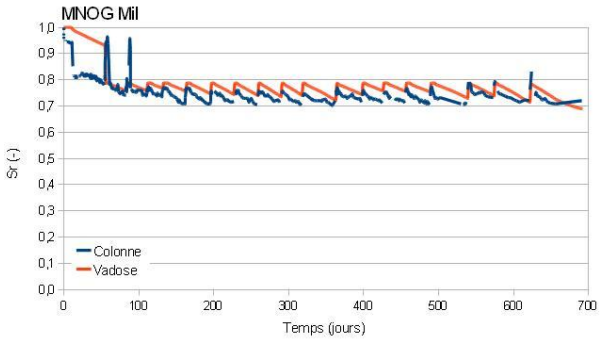

    return x;

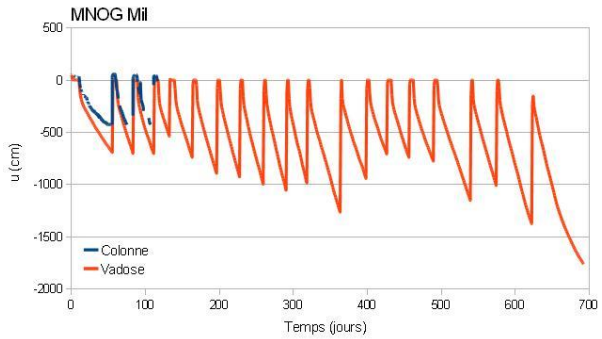

  }
}
```

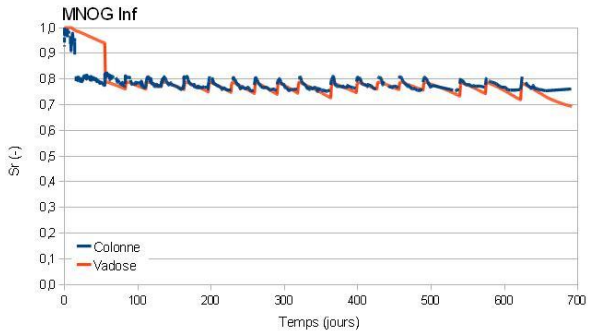
ANNEXE 7.4 – Calibration des simulations des essais en grande colonne avec Vadose/W – Comparaison des degrés de saturation, des pressions et des débits simulés et mesurés

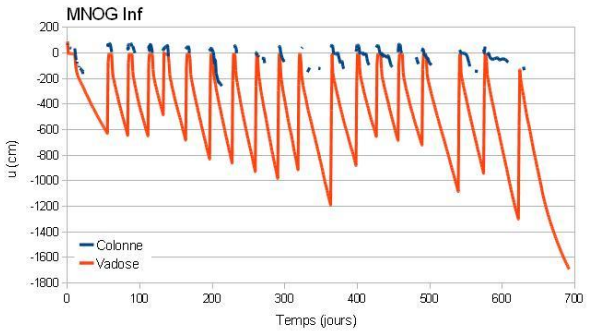


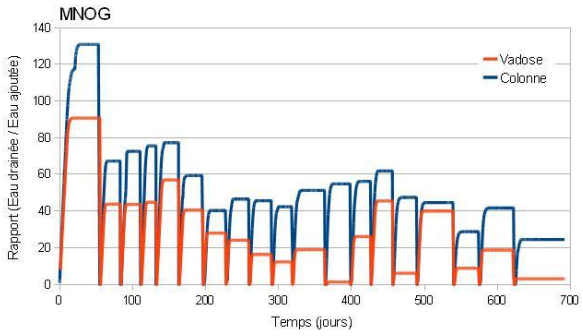


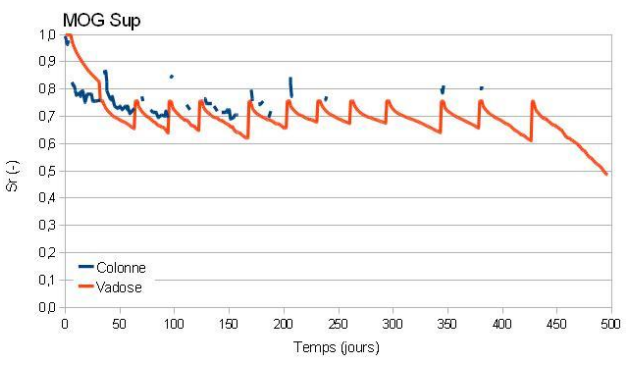


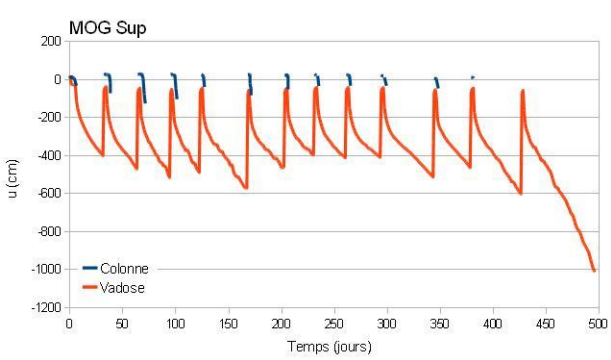


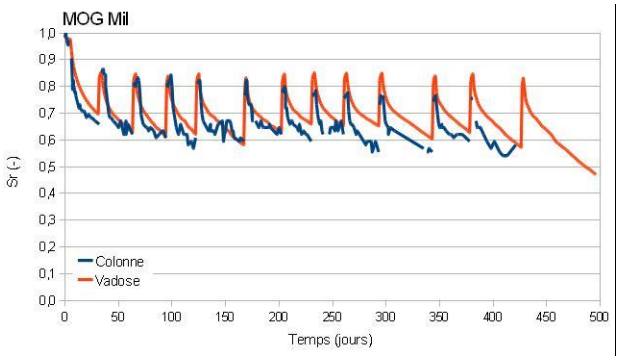


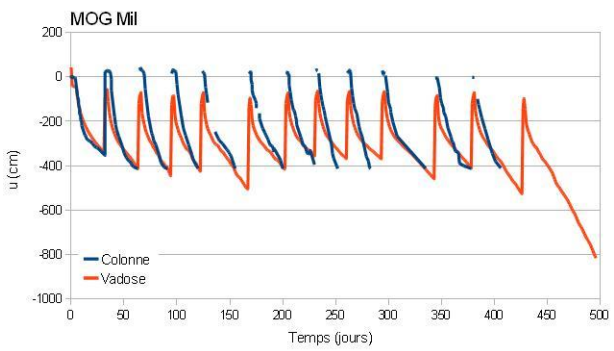


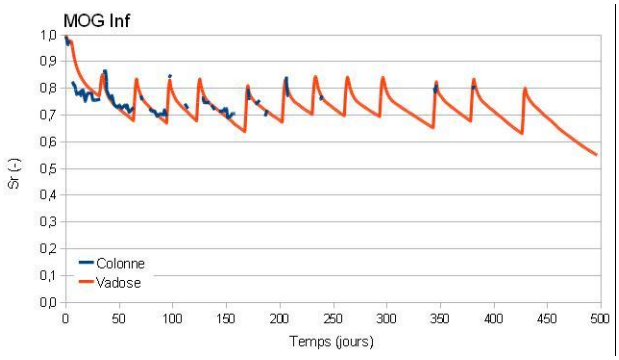


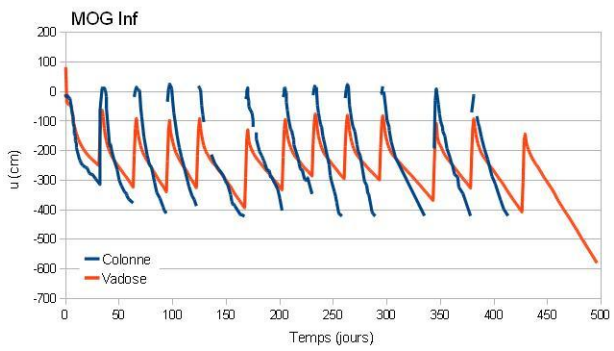

MOG Sup
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

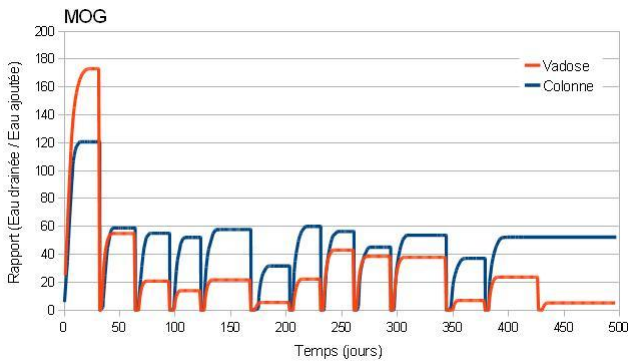

MOG Sup
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

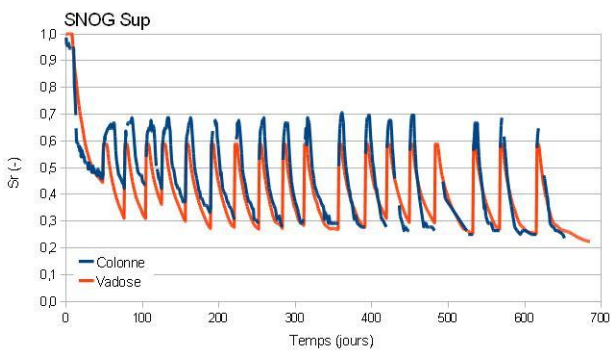

MOG Mil
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

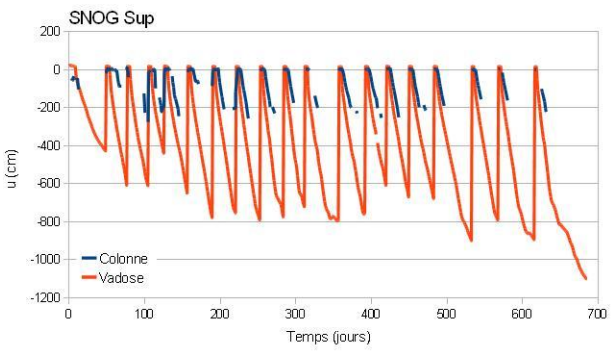

MOG Mil
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

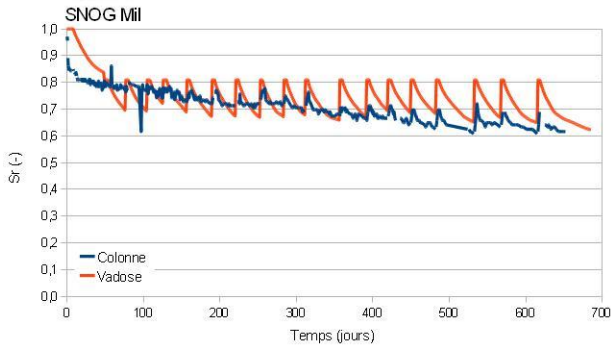

MOG Inf
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

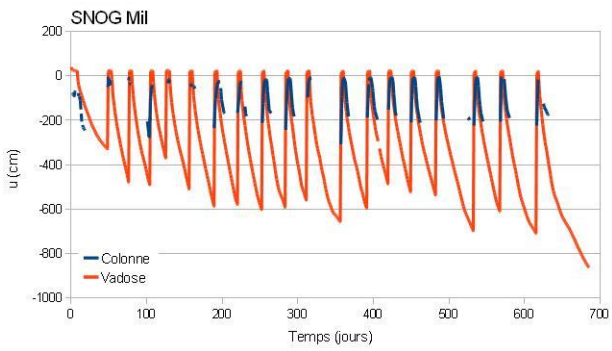

MOG Inf
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

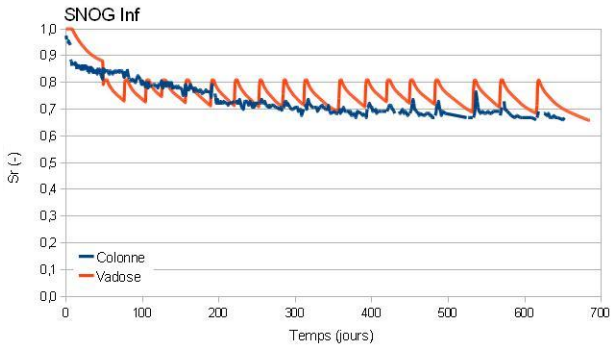

MOG
Rapport (Eau drainée / Eau ajoutée)
Temps (jours)
Vadose
Colonne

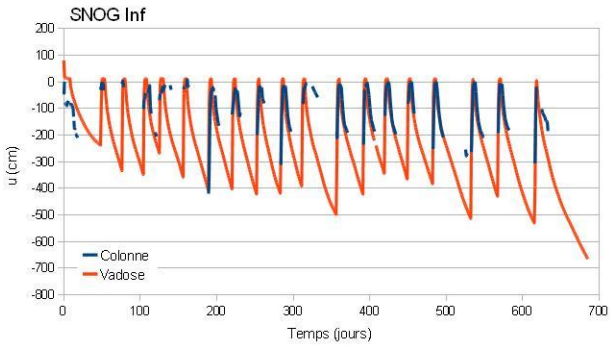

SNOG Sup
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

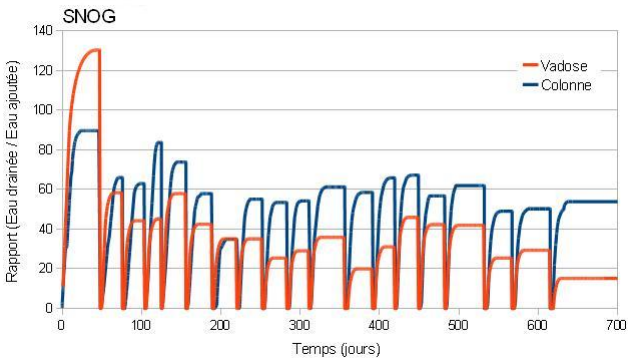

SNOG Sup
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

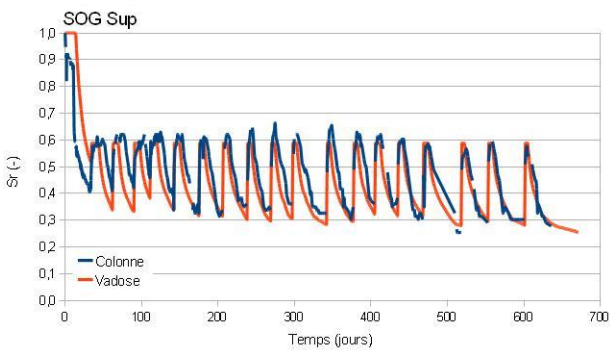

SNOG Mil
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

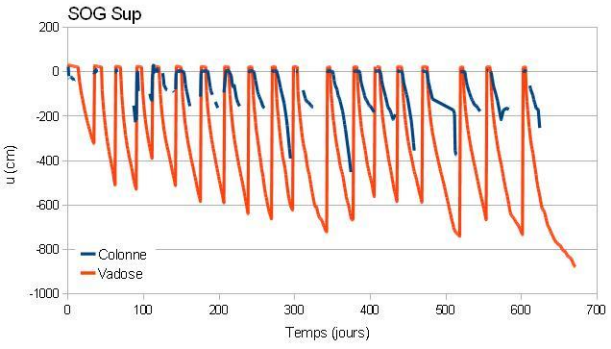

SNOG Mil
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

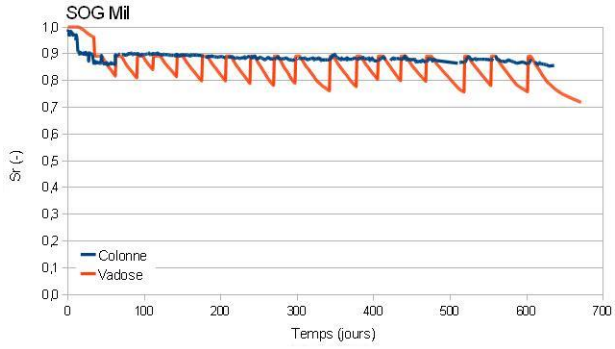

SNOG Inf
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

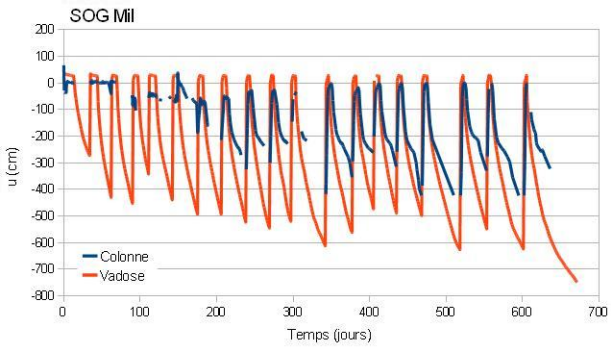

SNOG Inf
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

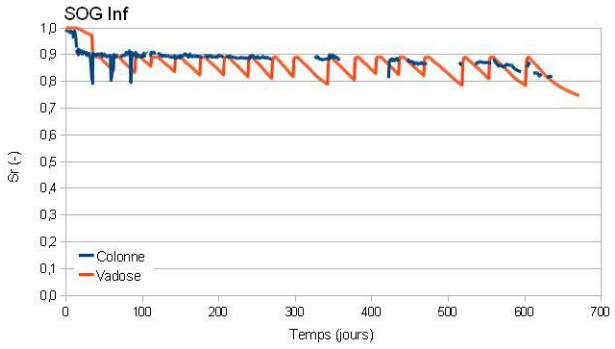

SNOG
Rapport (Eau drainée / Eau ajoutée)
Temps (jours)
Vadose
Colonne

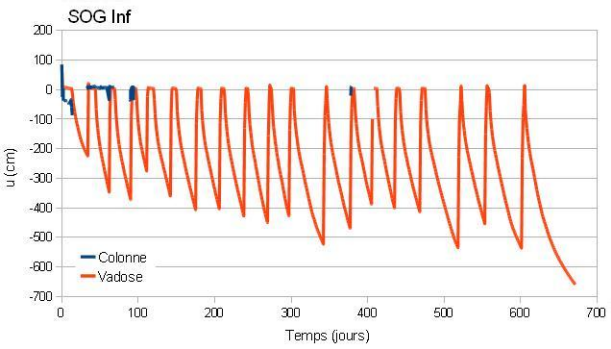

SOG Sup
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

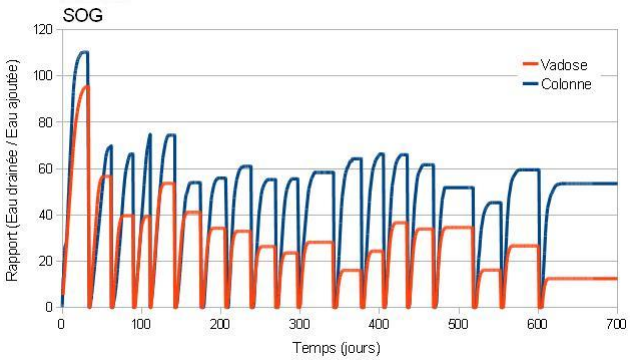

SOG Sup
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose


SOG Mil
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

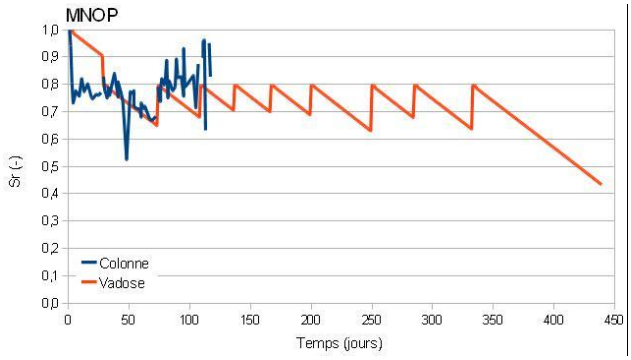

SOG Mil
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

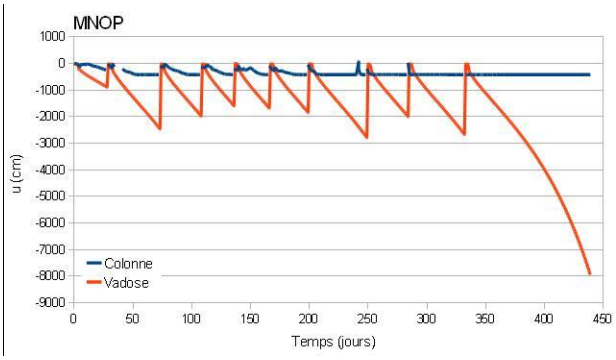

SOG Inf
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

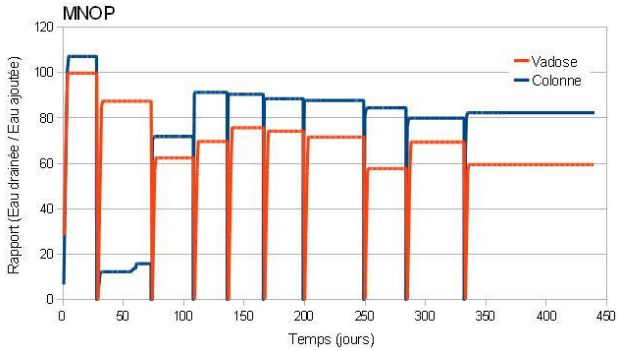

SOG Inf
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose

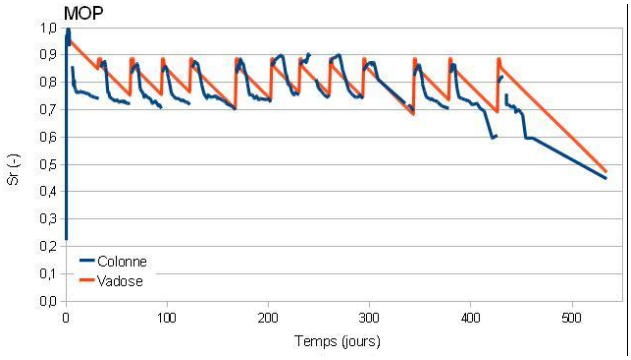

SOG
Rapport (Eau drainée / Eau ajoutée)
Temps (jours)
Vadose
Colonne

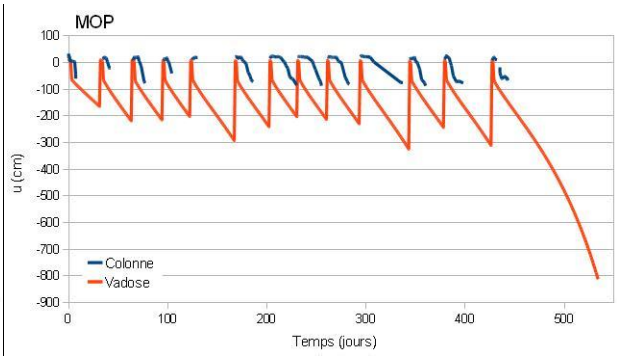
ANNEXE 7.5 – Comparaison des simulations des petites colonnes avec Vadose/W et des résultats de laboratoire

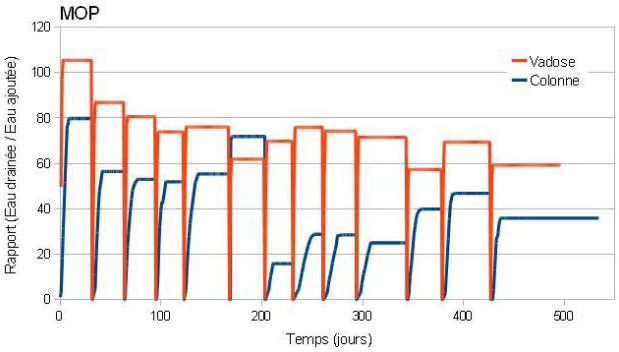


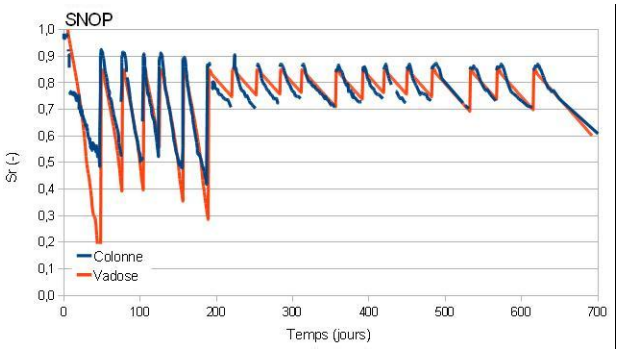


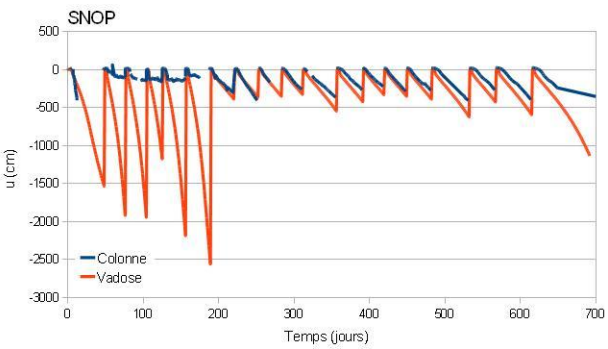


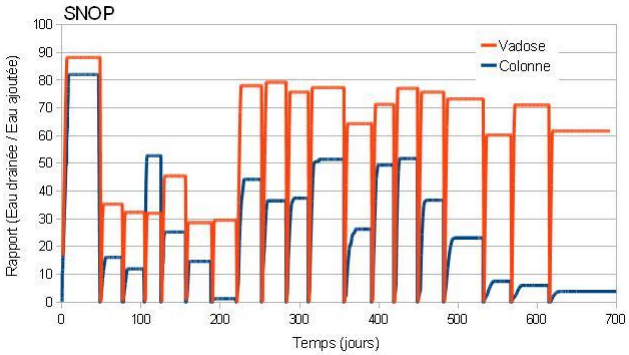


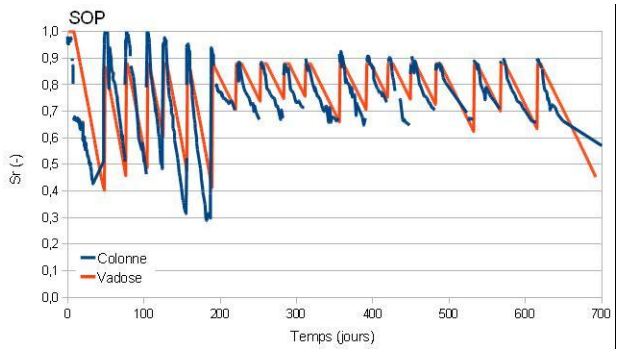


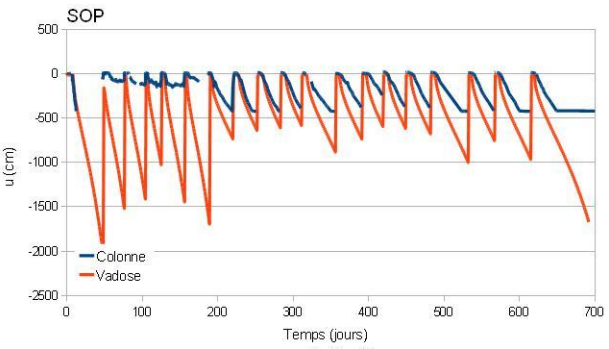


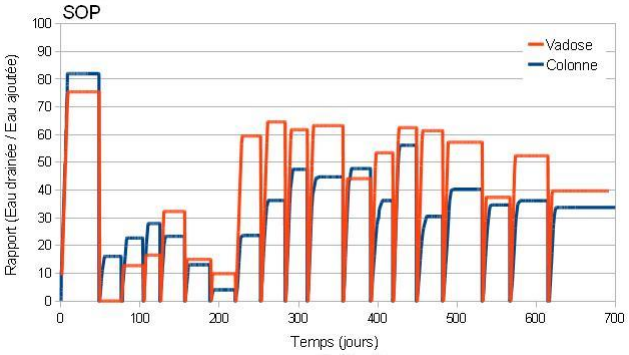

SNOP
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose


SNOP
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose


SNOP
Rapport (Eau drainée / Eau ajoutée)
Temps (jours)
Vadose
Colonne


SOP
Sr (-)
Temps (jours)
Colonne
Vadose


SOP
u (cm)
Temps (jours)
Colonne
Vadose


SOP
Rapport (Eau drainée / Eau ajoutée)
Temps (jours)
Vadose
Colonne

ANNEXE 7.6 – Analyse de sensibilité dans les simulations avec Vadose/W

Un certain nombre d'hypothèses ont été formulées pour la construction des modèles numériques visant à simuler les essais en grande et petite colonne (section 7.2.1). Afin d'estimer l'impact des valeurs des principaux paramètres, et permettre d'identifier les paramètres clefs pour la construction des simulations des conditions de terrain, plusieurs simulations additionnelles ont été réalisées. Elles utilisent les valeurs calibrées de la CRE avec un paramètre modifié à la fois. On compare ensuite les résultats des degrés de saturation et des succions pour évaluer les différences.

A.7.6.1 Absence d'évaporation

L'évaporation joue un rôle déterminant dans le comportement hydrogéologique des colonnes et en particulier dans la désaturation de la couverture. Il a été constaté que les pressions mesurées par les capteurs étaient inférieures à celles correspondant à la position de la nappe. Afin de quantifier le rôle de l'évaporation, on simule le cas où l'évaporation est nulle (ETP imposée = 0 mm/j).

A titre d'exemple, on considère la colonne MNOG. La figure A.7.6.1 présente la variation du degré de saturation dans la couverture de résidus Goldex, et compare les résultats expérimentaux et simulés avec et sans évaporation. On constate que dans le cas où l'évaporation est nulle (en utilisant la CRE en mouillage), le degré de saturation reste supérieur à 72% là où les valeurs expérimentales et simulées donnent des résultats aussi faibles que 40%. Des résultats similaires sont observés pour les autres capteurs (figure A.7.6.3) et les autres colonnes.

La figure A.7.6.1 illustre l'effet de l'évaporation sur la désaturation. On constate dans les résultats des simulations sans évaporation que la diminution du degré de saturation se produit rapidement (en quelques jours) et ne compte que pour 5% de la diminution mesurée dans les colonnes. Le degré de saturation demeure constant dans la suite du cycle. On en déduit que dans le cas où l'évaporation n'est pas nulle, la diminution du degré de saturation (jusqu'à des valeurs de 30%, dans le bas de couverture) est essentiellement due à l'évaporation. On observe d’ailleurs à la

figure A.7.6.2 que quand l'évaporation est nulle, la pression dans la colonne est uniquement liée à la position de la nappe (soit ici une pression de -270 cm).

On peut en conclure que l'évaporation est un paramètre capital dans la simulation des essais en colonne. Sa prise en compte est essentielle à l'estimation de l'efficacité des recouvrements.

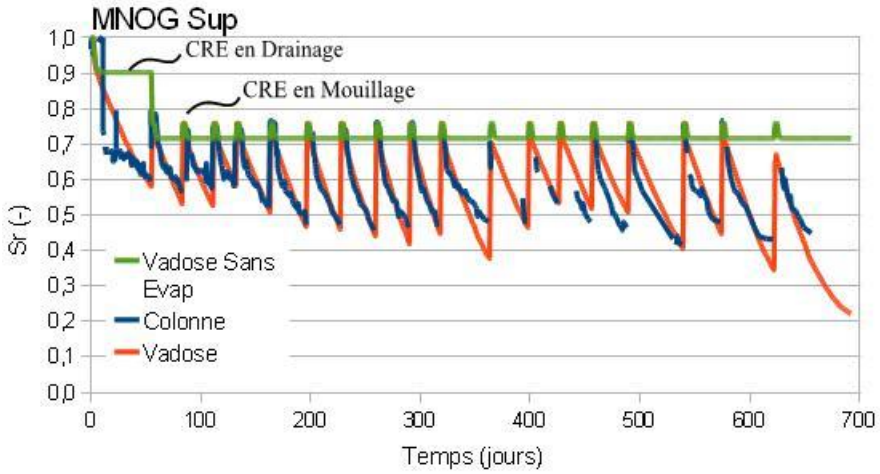


Figure A.7.6.1 Variation du degré de saturation S_r dans la colonne instrumentée MNOG et selon les simulations avec et sans évaporation (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture)

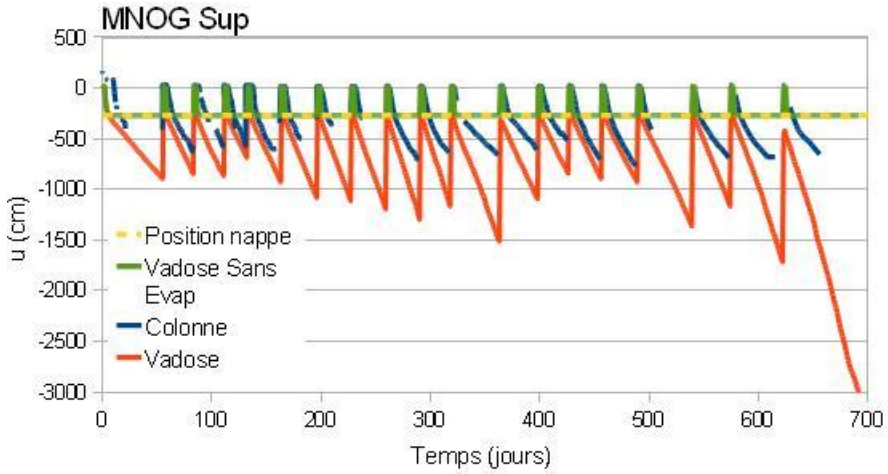


Figure A.7.6.2 Variation de la pression d'eau u dans la colonne instrumentée MNOG et selon les simulations avec et sans évaporation (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture). On indique également la pression liée à la position de la nappe

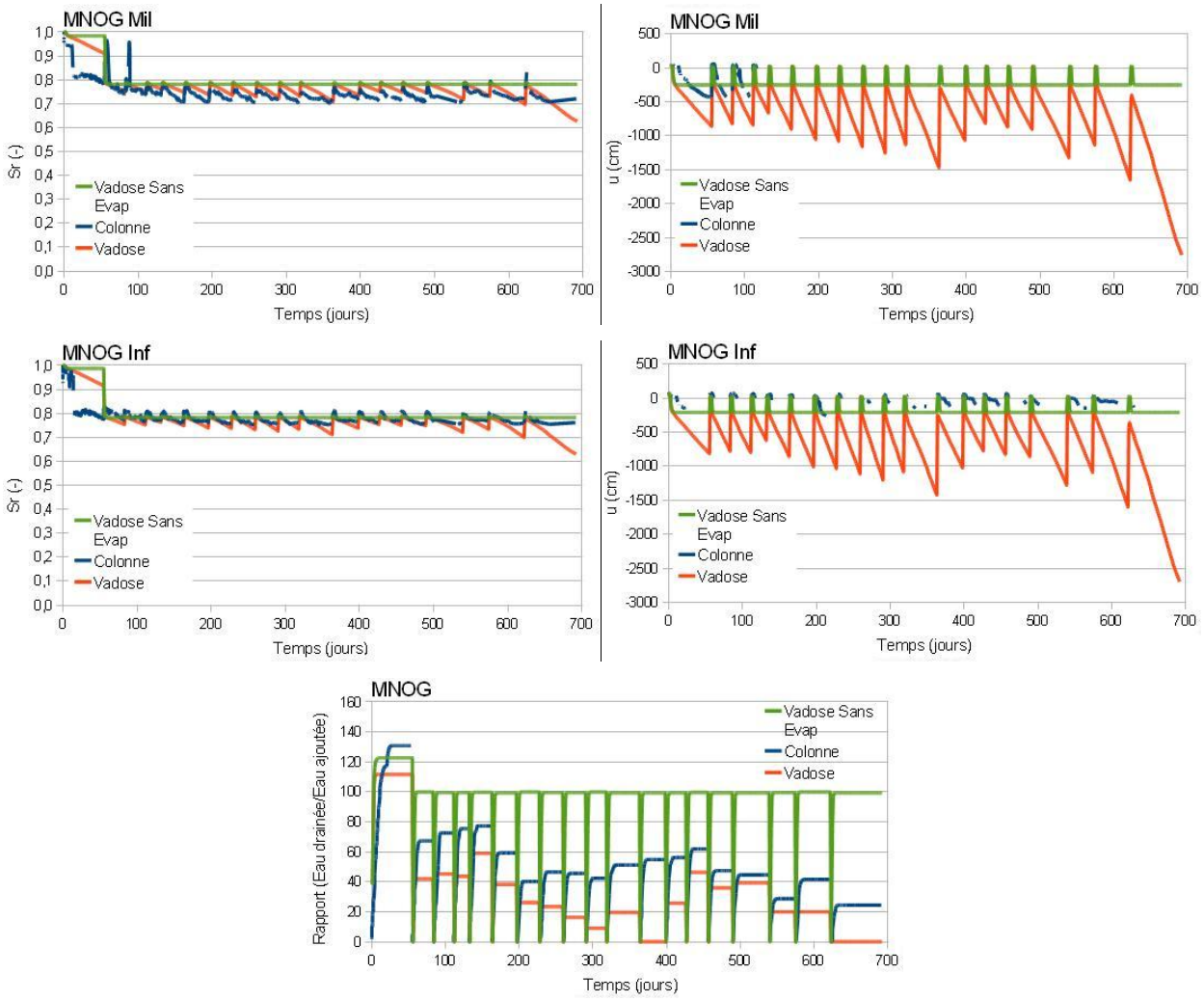


Figure A.7.6.3 Simulation de la grande colonne MNOG dans le cas où l'évaporation serait nulle ; comparaison avec les résultats de laboratoire et les simulations des essais en grandes colonnes

A.7.6.2 Nappe libre

Au laboratoire, on ne disposait pas de réservoir d'eau à la base des colonnes (ou à l'extrémité du tube en U) pour équilibrer les pressions d'eau dans les résidus et leur couverture. Cette condition a été reproduite dans les modèles (par le biais d'une fonction add-in), de telle sorte que la condition frontière inférieure ne correspond pas vraiment à une nappe libre, avec une succion appliquée à la base qui est la même que si une nappe se trouvait à une certaine profondeur sous les résidus (mais l'eau de cette nappe ne peut pas remonter dans ceux-ci pour venir compenser les

pertes liées à l'évaporation). La conséquence est que les teneurs en eau volumiques dans les colonnes sont plus faibles que si une nappe était présente en profondeur.

Afin de quantifier l'effet de cette condition frontière, des modèles ont été réalisés en remplaçant la condition frontière décrite plus haut par une nappe libre à la profondeur de la sortie du tube en U. On compare les résultats expérimentaux aux simulations avec et sans nappe libre aux figures A.7.6.4 et A.7.6.5. On montre ici uniquement la couverture de la colonne MNOG. Tous les résultats sont disponibles à la figure A.7.6.6 (ici et par la suite, on présente les résultats pour les autres capteurs de la colonne MNOG ; les résultats sur les autres colonnes sont semblables).

On constate à la figure A.7.6.4 qu'en présence d'une nappe libre, le degré de saturation simulé dans la couverture est beaucoup plus élevé que celui mesuré (environ 71%). Lorsque l'évaporation est marquée, la succion augmente dans la colonne, ce qui crée un gradient ascendant dans la colonne et de l'eau remonte depuis la nappe pour compenser la perte. La succion diminue par rapport au cas où l'eau ne peut pas être fournie par la nappe et se stabilise autour d'une valeur d'équilibre, plus basse que dans le cas sans nappe libre. La teneur en eau demeure par conséquent plus élevée.

On remarque également à la figure A.7.6.5 que la pression simulée dans la couverture (cas avec nappe libre) atteint un palier légèrement inférieur à la distance à la nappe (soit -290 cm environ contre -270 cm). L'effet de l'évaporation sur la désaturation est donc presque entièrement compensé par la réalimentation des résidus en eau depuis la nappe sous-jacente.

On note ici que le pallier du degré de saturation montré à la figure A.7.6.4 présente de petites fluctuations dues aux conditions climatiques journalières, et qui entraînent une variation de l'évaporation estimée par le modèle.

On peut en déduire que la condition frontière inférieure imposée dans les simulations, qui consiste à bloquer le flux de réalimentation par le bas, s'est avérée efficace pour reproduire les conditions de laboratoire.

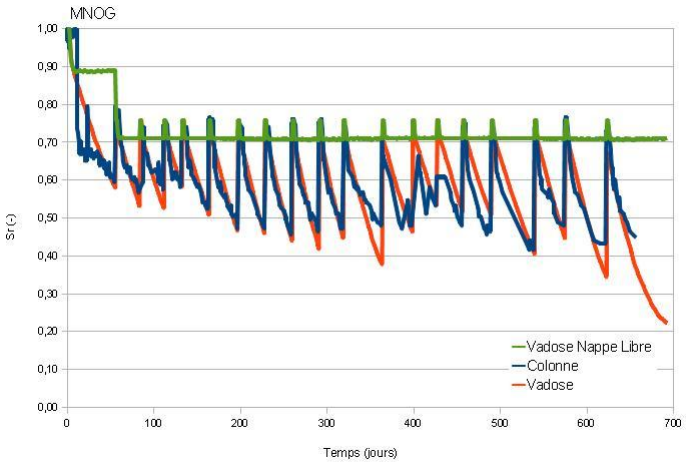


Figure A.7.6.4 Variation du degré de saturation S_r dans la couverture de la colonne MNOG (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture), mesuré lors des essais de laboratoire et obtenu par les simulations avec et sans nappe libre

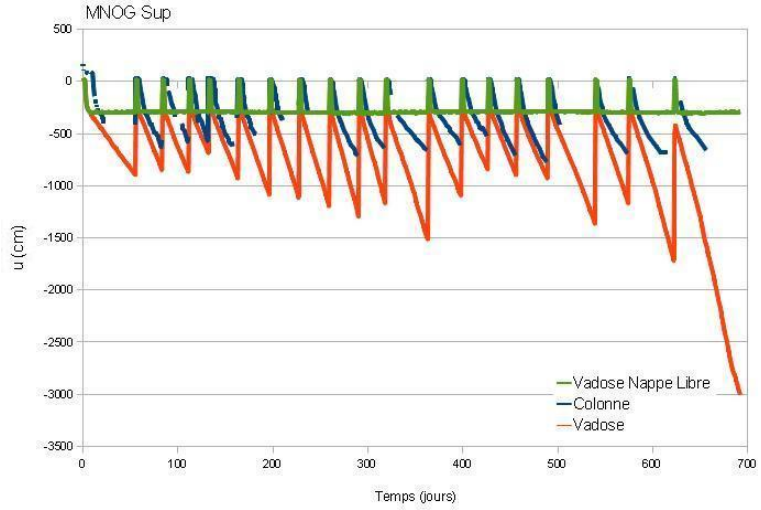


Figure A.7.6.5 Variations de la pression d'eau u dans la couverture de la colonne MNOG (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture), mesurée lors des essais de laboratoire et obtenue par les simulations avec et sans nappe libre

Expérimentalement, le blocage du flux de réalimentation permet de désaturer plus avant les résidus (et donc d'augmenter le flux d'oxygène et la génération de DMA). Cette méthode de calcul est préconisée pour étudier le comportement des couvertures en laboratoire, en particulier lorsque l'AEV des matériaux testés est élevé (comme c'est le cas ici). Pour le cas où l'on

souhaiterait reproduire des conditions plus proches de celles du terrain, il serait utile d'installer un réservoir d'eau à pression atmosphérique à l'extrémité du tube en U pour permettre une réalimentation des colonnes par la base (avec une mèche pour permettre la remontée capillaire de l'eau). Dans ce cas, les résidus se désatureraient moins.

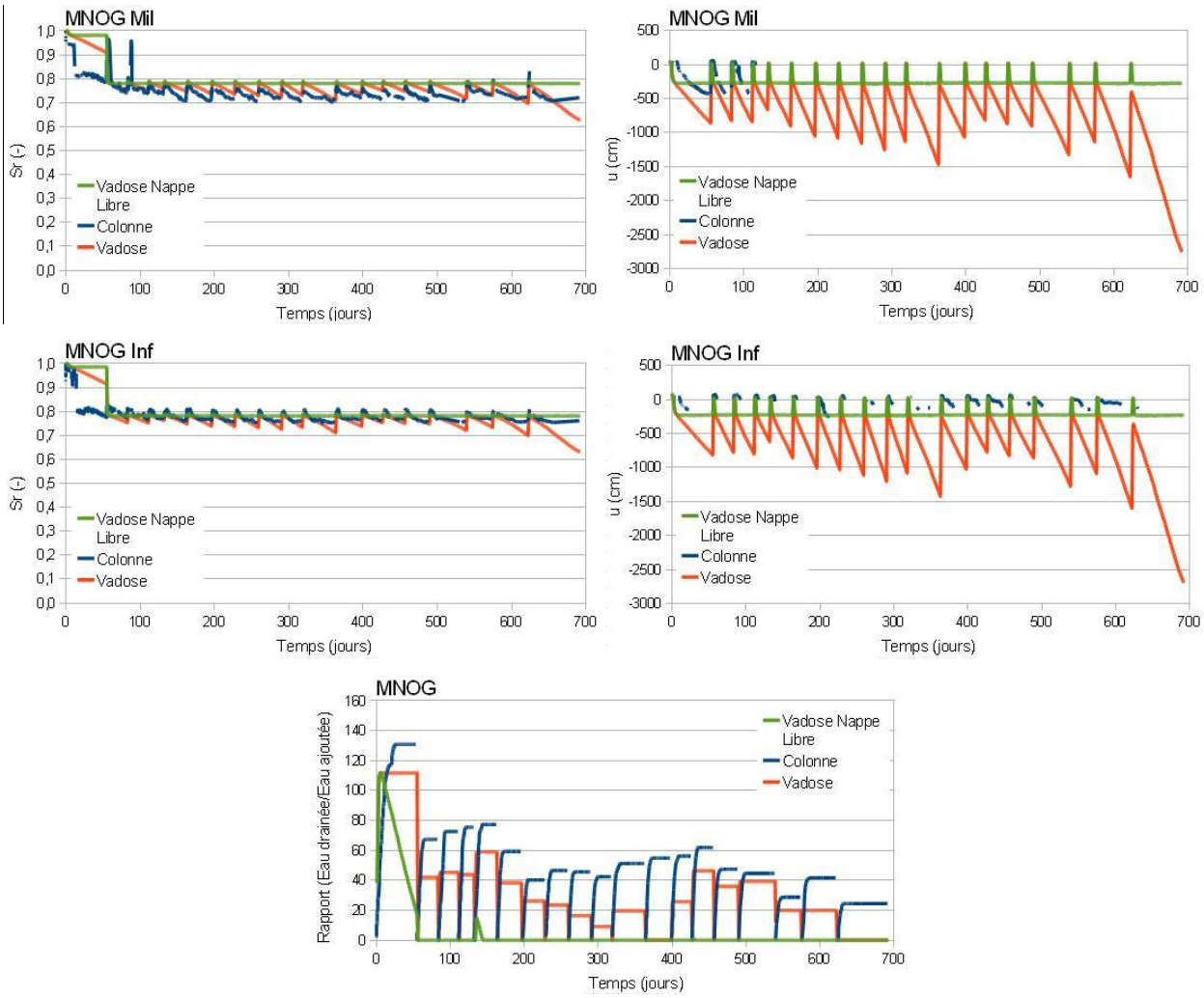


Figure A.7.6.6 Simulation de la grande colonne MNOG dans le cas où la condition frontière inférieure serait une nappe libre située 90 cm sous la base des résidus ; comparaison avec les résultats de laboratoire et les simulations des essais en grande colonne

A.7.6.3 Évaporation imposée

Dans les modèles décrits plus haut, l'évaporation a été estimée par le logiciel à partir des données de températures et d'humidité relative. Vadose/W utilise le modèle de Penman modifié par Wilson (1990) pour ces calculs. Des simulations réalisées sur une tranche d'eau ont permis de constater que le code numérique estimait l'évaporation potentielle à 2,6 mm/j là où les essais en laboratoire donnaient 1,8 mm/j. Toutefois, on considère que si l'on arrive à calibrer les simulations des essais en colonne en employant le modèle climatique de Vadose/W, alors il sera plus aisé d'extrapoler ces résultats aux simulations des conditions terrain, pour lequel on ne dispose pas de mesures d'évaporation.

Pour estimer les effets d'une ETP imposée plutôt qu'estimée, des simulations ont été réalisées avec une évaporation imposée égale à 1,76 mm/j tout au long de l'essai. Un exemple de résultat est présenté à la figure A.7.6.7 pour le cas de la couverture dans la grande colonne MNOG. Quelques autres résultats sont rassemblés à la figure A.7.6.8.

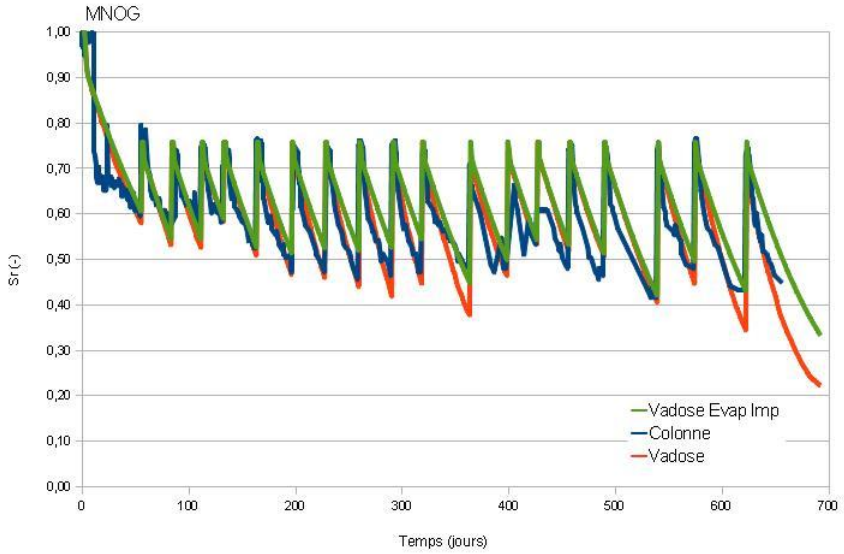


Figure A.7.6.7 Variation du degré de saturation S_r dans la couverture de la colonne MNOG (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture), mesuré lors des les essais de laboratoire et simulé avec une évaporation estimée (par le code Vadose) et imposée à 1,76 mm/j

On constate que les degrés de saturation des simulations avec évaporation imposée et calculée sont relativement proches. La différence maximale entre les courbes est de l'ordre de 10%

environ. Les tendances et les amplitudes des variations de S_r (mesuré) sont bien reproduites ; on constate une diminution un peu moins rapide du degré de saturation au cours du cycle que dans les simulations avec ETP calculée.

Par conséquent, l'estimation de l'évaporation par Vadose/W semble satisfaisante pour les essais en grande colonne. Par la suite, cette méthode sera employée pour simuler l'évaporation (exception faite des cas où le modèle serait assez petit pour que les conditions frontières supérieures et inférieures s'influencent mutuellement, comme c'est le cas des petites colonnes).

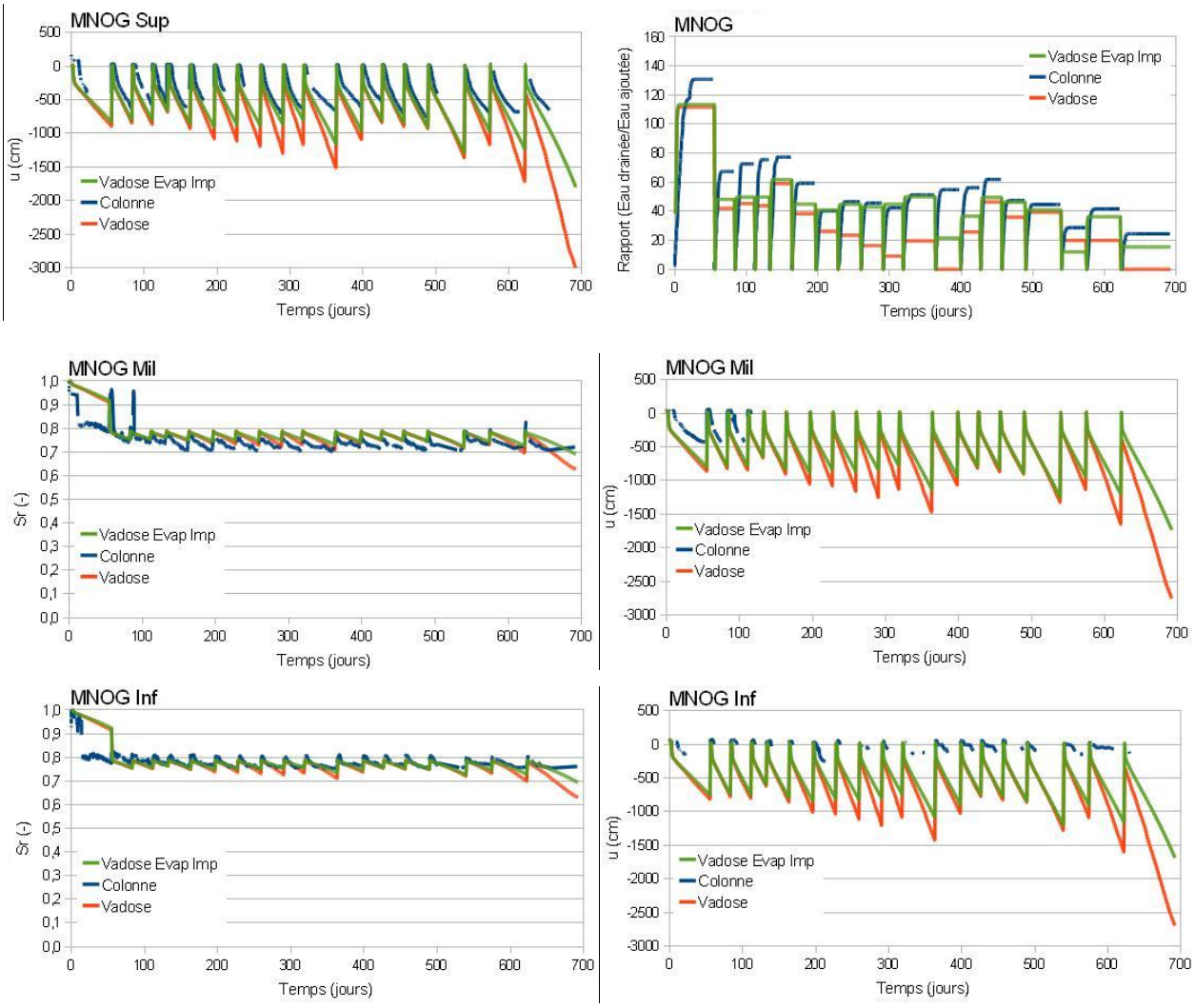


Figure A.7.6.8 Simulation de la grande colonne MNOG dans le cas où l'évaporation serait imposée (ETP = 1,76 mm/j) ; comparaison avec les résultats de laboratoire et les simulations des essais en grandes colonnes

A.7.6.4 Hystérésis

Dans les modèles numériques des essais en colonne, le phénomène d'hystérésis a été simulé en utilisant alternativement les propriétés des matériaux en phase de drainage (premier cycle) ou de mouillage (cycles 2 et suivants). Cette façon de faire a donné de bons résultats, mais elle est complexe à appliquer. Pour les conditions de terrain, il n'est pas toujours évident de déterminer le moment où le matériau passe en drainage ou en mouillage. Par ailleurs, cela requiert de diviser la simulation en un grand nombre d'étapes, avec le risque accru de rencontrer des problèmes numériques occasionnés par le passage d'une courbe à l'autre. Cela nécessite aussi de découper chaque zone selon qu'elle se situe au-dessous ou en-dessous de la frange capillaire. Plusieurs simulations ont donc été réalisées dans lesquelles on ne prend pas en compte le phénomène d'hystérésis et où la courbe de rétention d'eau est celle en drainage.

Quelques résultats caractéristiques sont présentés à la figure A.7.6.9. Ne sont présentés ici que les résultats dans la couverture de la grande colonne MNOG. Les courbes pour les autres capteurs et colonnes sont très similaires et rassemblées à la figure A.7.6.10.

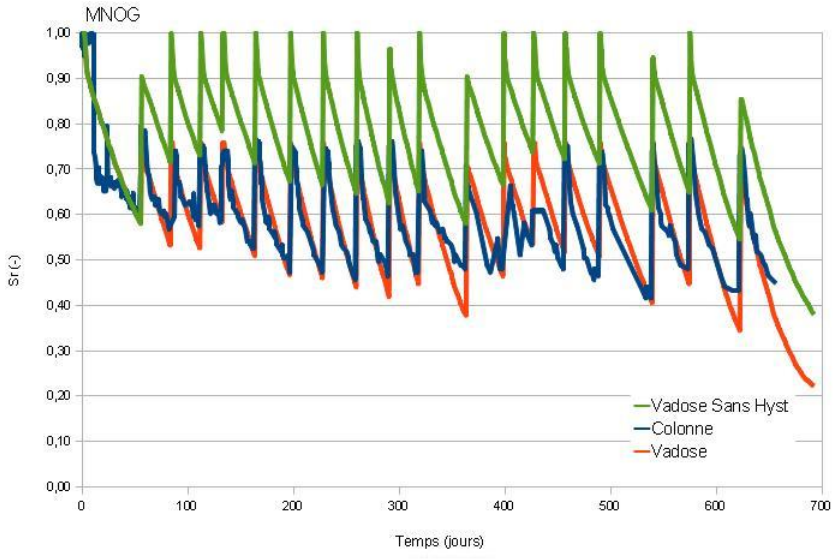


Figure A.7.6.9 Variation du degré de saturation S_r dans la couverture de la colonne MNOG (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture), pour les essais de laboratoire et les simulations avec et sans hystérésis de la CRE

On constate à la figure A.7.6.9 que les résultats des simulations sans hystérésis sont très différents de ceux présentés plus haut et qu'ils reproduisent mal les résultats de laboratoire. Dans ce cas, au début de chaque cycle, le degré de saturation remonte à 100%, surestimant ainsi de plus de 25% les degrés de saturation mesurés. En fin de cycle, les degrés de saturations restent généralement supérieurs à 60% alors qu'ils peuvent atteindre moins de 50% dans les essais.

La surestimation du degré de saturation dans ces simulations entraînerait une sous-estimation du flux d'oxygène traversant la couverture et de la production de DMA. Si l'on souhaite comparer l'efficacité de divers types de recouvrement, il peut-être important de prendre en compte le phénomène d'hystérésis, même s'il engendre quelques contraintes et imprécisions additionnelles.

Par la suite, dans les modèles de terrain notamment, les résidus se verront systématiquement attribuer les paramètres de la CRE en mouillage. Considérant qu'ils ont été entreposés pendant de nombreuses années dans les parcs, laissés exposés aux intempéries, et que la nappe est profonde, on peut considérer qu'ils ont été suffisamment asséchés. Sous la nappe, les résidus sont (par définition) supposés saturés. En ce qui concerne la couverture, tout dépendra des conditions climatiques. Au sortir de l'hiver, on considérera que la cryosuction et le dégel progressif de la partie supérieure du parc entraîne une resaturation partielle de la couverture (on emploiera donc la CRE en drainage). Par la suite, dès que le degré de saturation passe sous la limite de satiation, les paramètres des matériaux de couverture sont modifiés pour ceux en mouillage. Mais si le degré de saturation demeure suffisamment élevé (au-dessus du degré de saturation maximal mesuré dans les colonnes), la courbe en drainage est maintenue. Dans certains cas, l’augmentation du degré de saturation est limitée après l’été (la couverture ne se resature pas complètement et son degré de saturation demeure faible) et dans ce cas, l’utilisation de la courbe en drainage uniquement est jugée suffisante.

Le gel n'affecte en général le sol que sur une assez faible profondeur (< 1-2 m pour le front de gel), et on considère donc que les résidus sous-jacents ne seront pas affectés par ces effets.

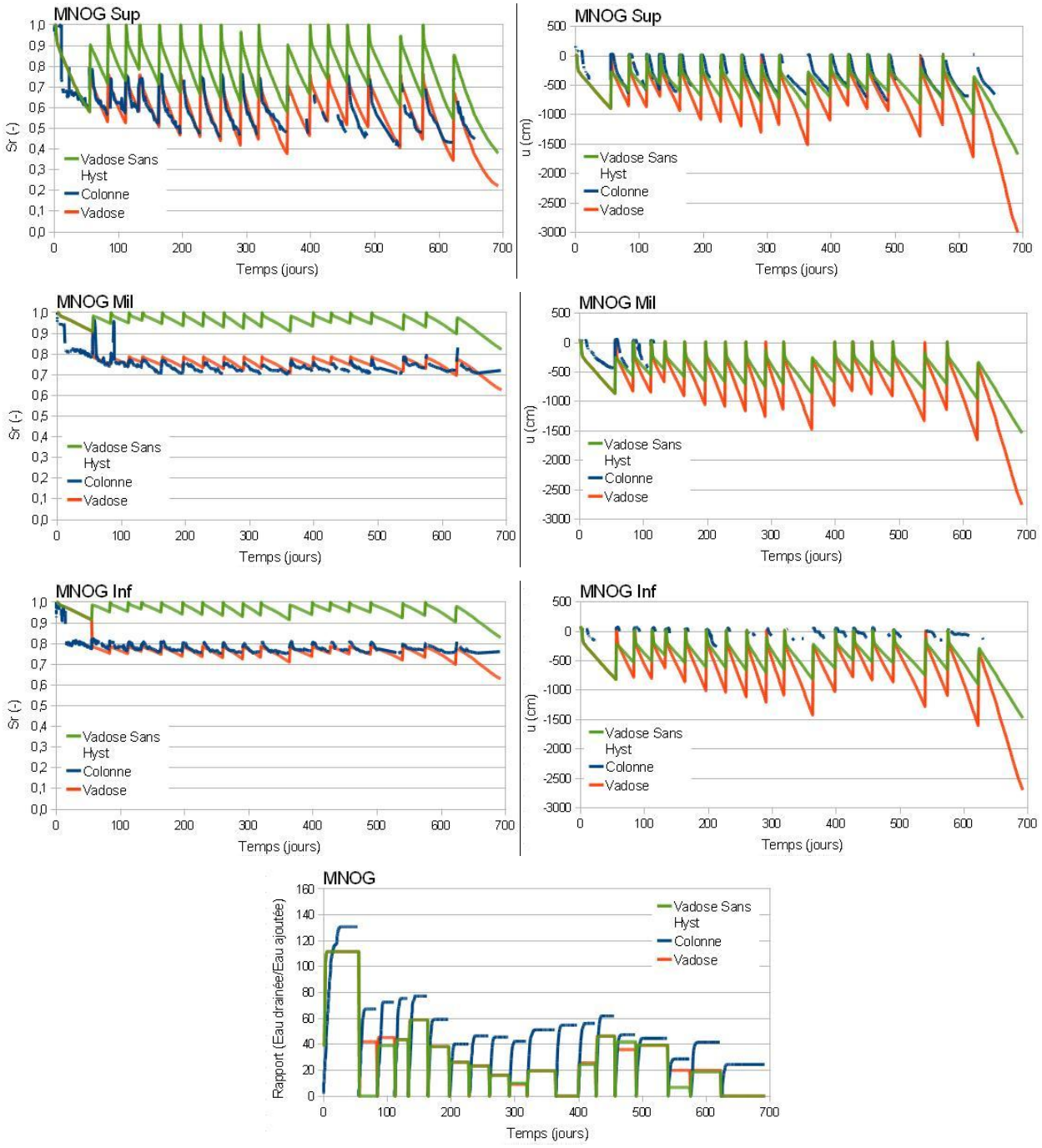


Figure A.7.6.10 Simulation de la grande colonne MNOG dans le cas où le phénomène d'hystérésis serait négligé ; comparaison avec les résultats de laboratoire et les simulations des essais en grandes colonnes

A.7.6.5 Géométrie

La construction des modèles numériques des essais en grande colonne a été réalisée en essayant de reproduire une géométrie réaliste des essais au laboratoire, en prenant en compte la variation du diamètre interne des sections de colonne ainsi que le rétrécissement à leur base due à la céramique et à sa serre métallique (voir section 7.1.1). Des modèles avec une géométrie simplifiée ont aussi été réalisés pour s'assurer que la géométrie employée n'a pas eu d'effet sur la calibration et qu'elle n'a pas faussé la paramétrisation (il serait alors plus difficile d'extrapoler ces résultats à des modèles 1D en conditions de terrain). Dans les modèles à géométrie simplifiée, on considère une colonne 1D parallélépipédique de 0,163 m² section sur toute sa hauteur (section de la partie supérieure des colonnes). La couche de surface, la céramique et le tube en U sont modélisés dans le prolongement de la colonne, avec le même diamètre que celle-ci.

Un exemple de résultats est présenté à la figure A.7.6.11 pour la grande colonne MNOG. Les résultats pour les autres capteurs et colonnes sont similaires et rassemblées à la figure A.7.6.12. On constate que les variations de S_r dans les modèles à géométrie réaliste et simplifiée sont pratiquement superposées. A toute fin pratique, on peut considérer que les modèles numériques donnent des résultats semblables.

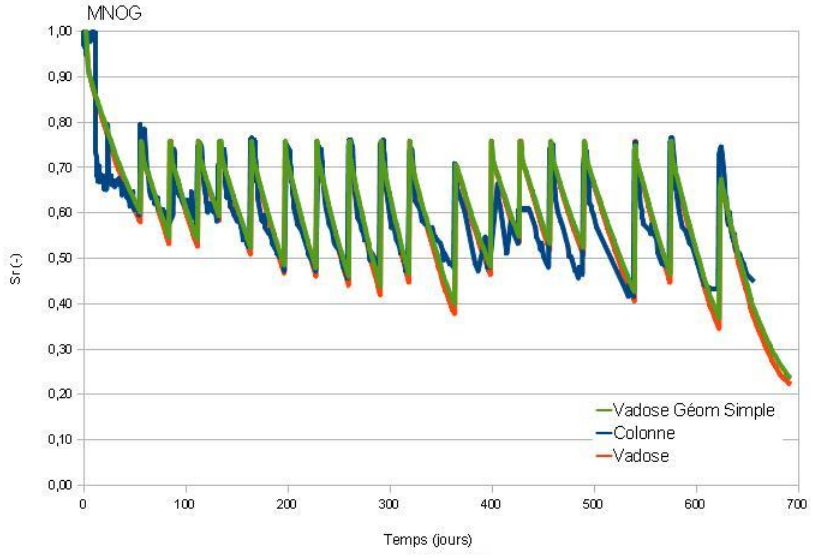


Figure A.7.6.11 Variation du degré de saturation S_r dans la couverture de la colonne MNOG (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture) pour les essais de laboratoire et les simulations avec une géométrie réaliste et avec une géométrie simplifiée

Par la suite, on emploiera exclusivement des modèles parallélépipédiques 1D de 1 m² de surface pour accélérer les calculs (moins d'éléments) et faciliter la comparaison des résultats.

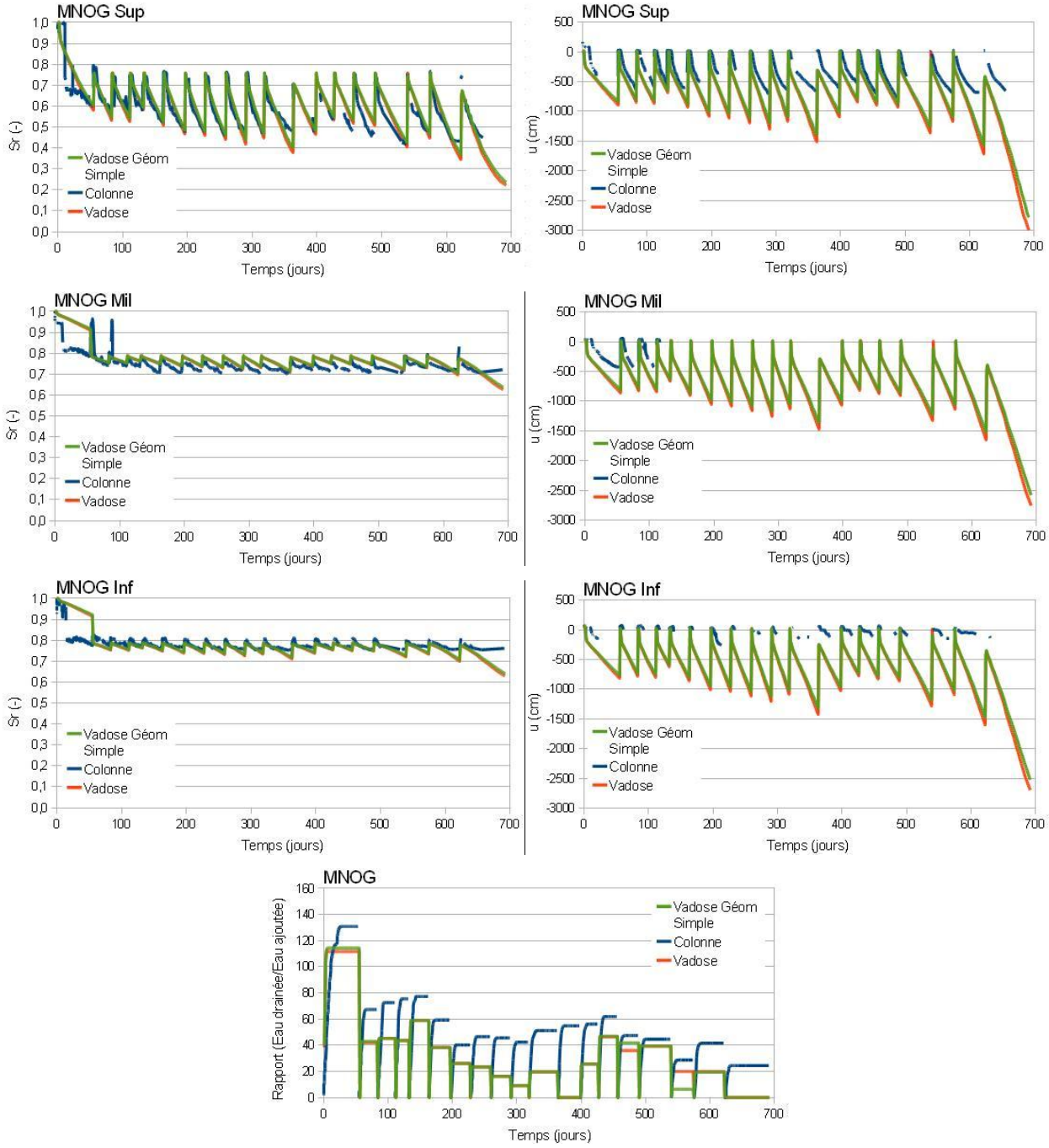


Figure A.7.6.12 Simulation de la grande colonne MNOG pour une géométrie simplifiée ; comparaison avec les résultats de laboratoire et les simulations des essais en grandes colonnes

A.7.6.6 Tube en U et céramique

La modélisation du tube en U et de la céramique à la base des colonnes a nécessité un certain nombre d'approximations. Ces effets géométriques n'ont que peu d'effets sur les simulations (voir section 7.3.6). Le tube en U a été simulé en créant une fonction de rétention d'eau saturée en permanence et égale au volume du tube (= volume des pores), calculée comme le rapport du volume intérieur réel du tube divisé par le volume du tube dans le modèle. Sa conductivité hydraulique a quant à elle été imposée constante et égale à la conductivité hydraulique saturée de la céramique.

On veut évaluer si ces hypothèses et conceptualisation ont influencé les résultats. Des modèles numériques sans céramiques, ni tube en U, ont été réalisés, où ces propriétés ont été remplacées par celles des résidus. La géométrie générale reste identique, de même que la condition frontière inférieure et tous les autres paramètres de simulation.

Quelques résultats sont présentés à la figure A.7.6.13 pour la colonne MNOG. Les résultats pour les autres capteurs et colonnes sont similaires ; certains sont rassemblés à la figure 7.6.14.

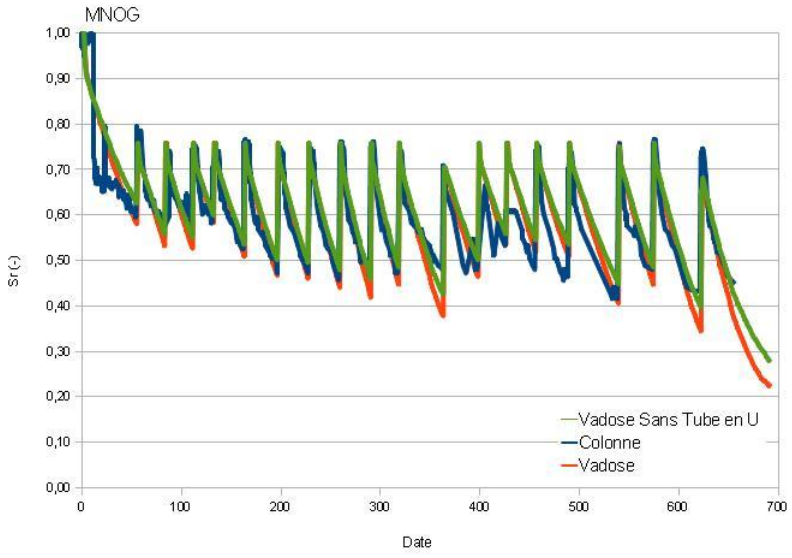


Figure A.7.6.13 Variation du degré de saturation S_r dans la couverture de la colonne MNOG (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture) pour les essais de laboratoire et les simulations avec et sans modélisation du tube en U et de la céramique

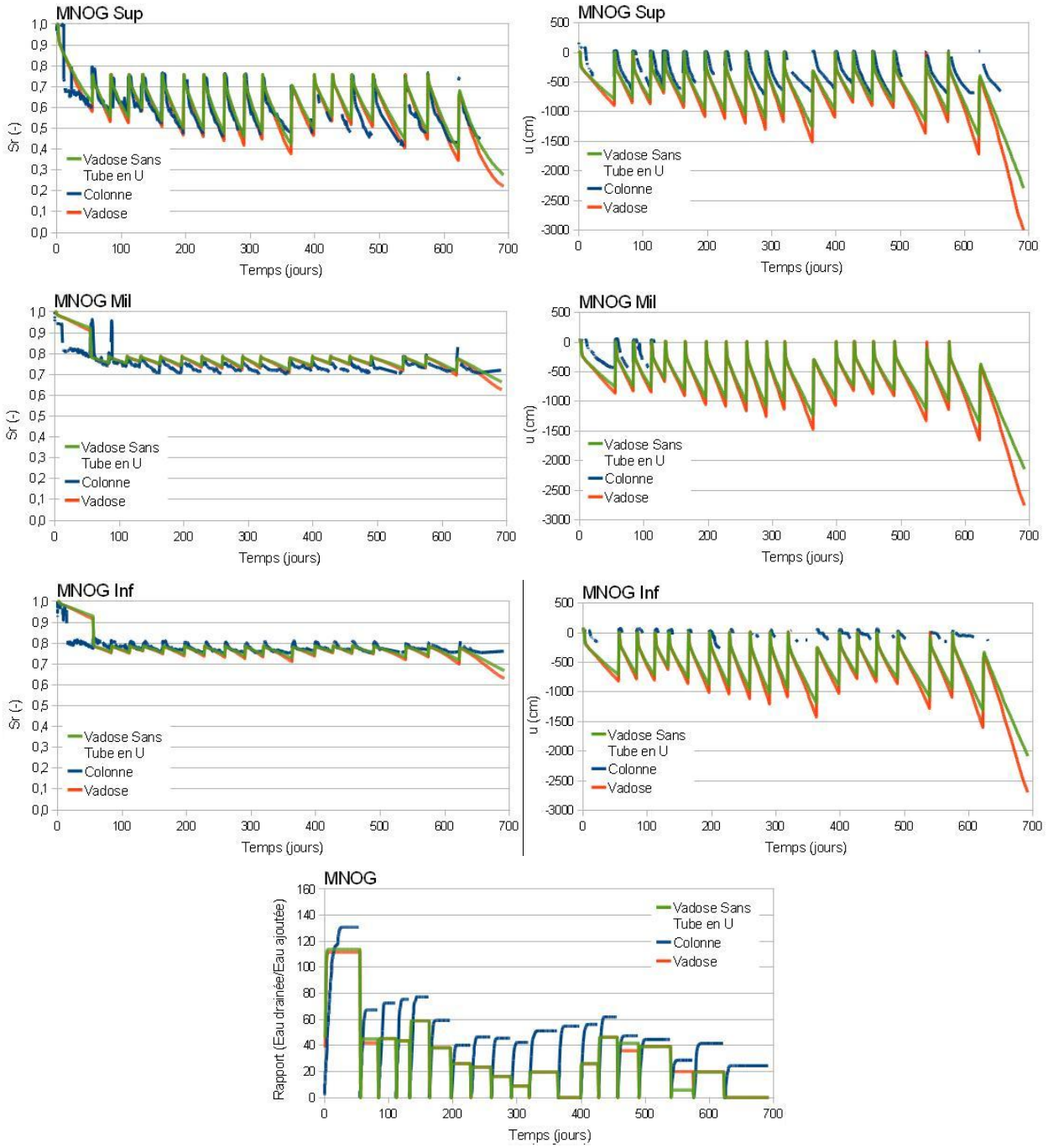


Figure A.7.6.14 Simulation de la grande colonne MNOG dans le cas où le tube en U aurait des propriétés similaires aux résidus MNO ; comparaison avec les résultats de laboratoire et les simulations des essais en grandes colonnes

On constate à la figure A.7.6.13 que le fait d'inclure le tube en U et de la céramique dans la simulation n'a qu'un faible impact sur les résultats. Les variations du degré de saturation sont très

similaires à celles obtenues avec le modèle réaliste. Les pics de saturation au début de chaque cycle sont bien reproduits, et les plus grandes différences sont observées en fin de cycle mais ne dépassent pas quelques pourcents. Ces différences sont à attribuer essentiellement à la différence de capacité de stockage du tube capillaire et des résidus. Le volume d'eau contenu par le modèle fait uniquement de résidus est plus important, et une plus grande quantité d'eau est disponible pour réalimenter la colonne asséchée par le phénomène d'évaporation (la remontée d'eau depuis la nappe est bloquée dans ces modèles). Le modèle du tube en U contient 66 mL d'eau, alors que le même volume rempli de résidus saturés contient 56 L (pour une porosité de 0,438 pour les résidus MNO). La différence entre les degrés de saturation des deux modèles est donc de moins de 5% pour des volumes variant de 1 à 850. On peut donc considérer que les simulations avec le tube en U sont satisfaisantes et que les éventuelles erreurs occasionnées par ces hypothèses sont négligeables.

A.7.6.7 Maillage

Jusqu'ici, on a employé un modèle avec un maillage vertical avec des éléments de 1 cm de hauteur, ce qui représente un peu plus de 200 éléments pour les grandes colonnes et 40 éléments pour les petites colonnes. Ce choix a été réalisé lors des simulations préliminaires et constituait alors un bon compromis entre la précision (numérique et spatiale) des résultats et la vitesse des calculs (des tests préalables ont permis de s’en assurer).

Néanmoins, pour les modèles numériques des conditions de terrain, qui sont plus grands (10 mètres de résidus et jusqu'à 4 mètres de couverture), ou pour accélérer les simulations de l'analyse paramétriques, il serait intéressant de diminuer le nombre d'éléments (i.e. augmenter leur taille) dans les modèles. Une série de simulations a donc été réalisée pour évaluer l'influence de la taille des mailles. On a testé des modèles numériques avec des éléments de 0,5 cm, de 5 cm et de 10 cm, soit respectivement 400, 40 et 20 éléments pour les grandes colonnes. Les temps de calculs varient exponentiellement avec le nombre d'éléments (de quelques minutes à plusieurs heures voire jours).

Quelques résultats typiques sont présentés à la figure A.7.6.15 pour la grande colonne MNOG. Les courbes pour les autres capteurs et colonnes sont très similaires et rassemblées à la figure 7.6.16.

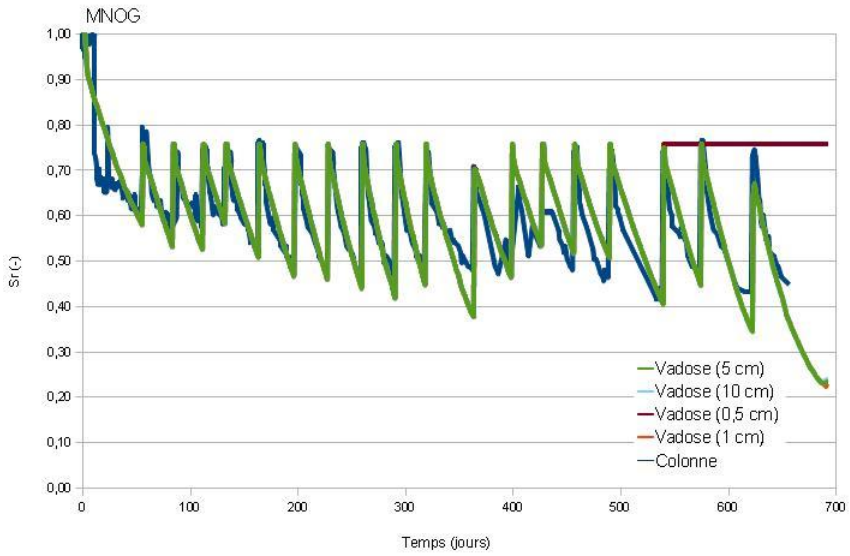


Figure A.7.6.15 Variation du degré de saturation Sr dans la couverture de la colonne MNOG (10 cm au-dessus de l'interface résidus-couverture), pour les essais de laboratoire et les simulations avec plusieurs tailles d'éléments

On constate à la figure A.7.6.15 que les résultats sont superposés quelque soit la taille du maillage, sauf dans le cas du maillage le plus fin (0,5 cm) car ce modèle diverge après le 17^{e} cycle, ce qui laisse penser qu'un trop grand nombre d'éléments peut (ici) être problématique. On suppose que l'accumulation des erreurs et quelques autres problèmes numériques ont pu amener le modèle à diverger. Pour les résidus suffisamment fins dont l'AEV est de l'ordre de 2 mètres, voire plus, les maillages testés ici semblent tous convenir.

Dans la suite des simulations, on considère donc généralement un maillage avec des éléments de 5 cm, ce qui permettra de contrôler le temps de calcul et d'avoir une précision suffisante sur les paramètres hydrogéologiques. Le cas des stériles employés dans l'étude de méthodes alternatives de recouvrement sera détaillé plus tard (voir section 7.6).

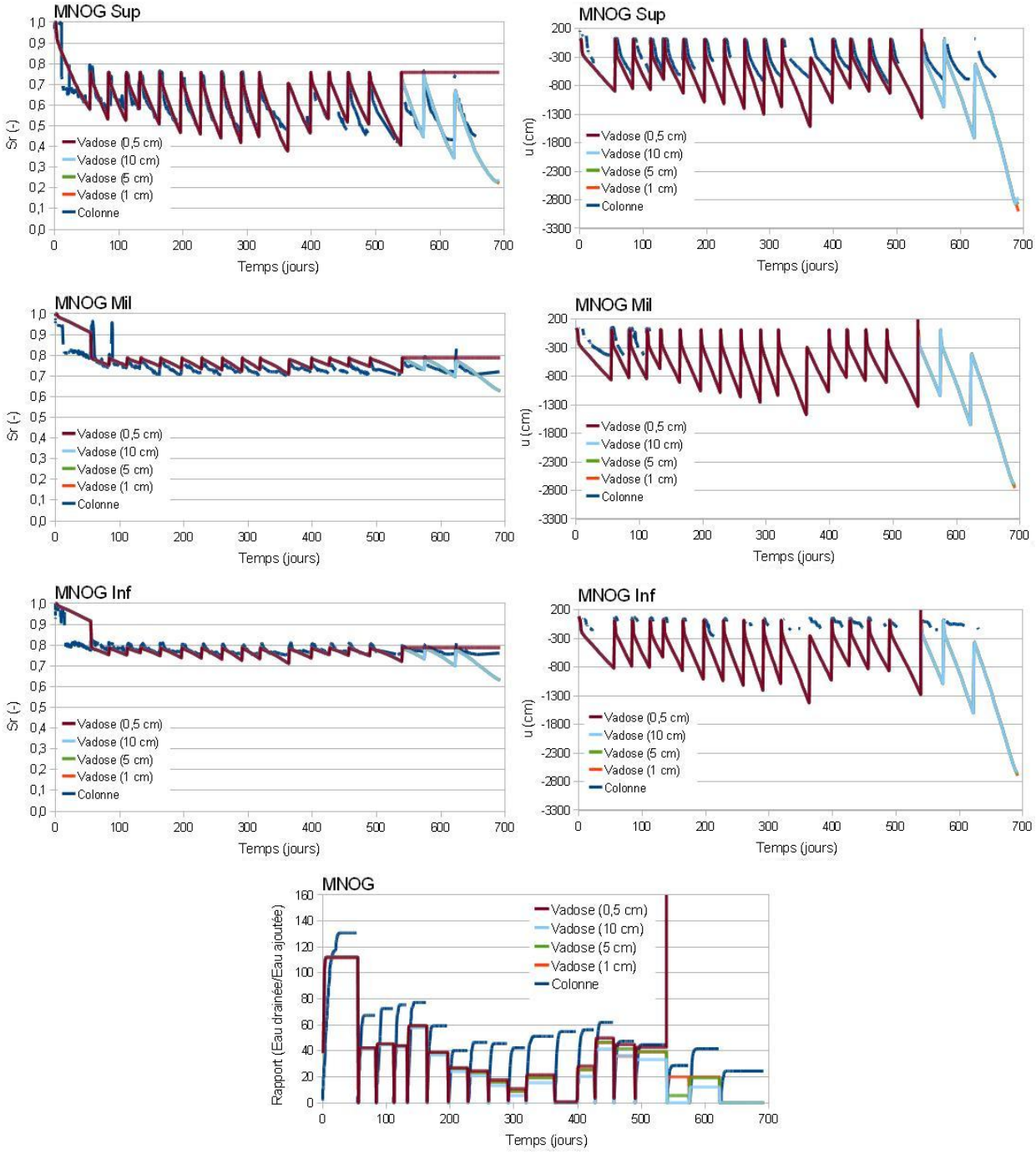


Figure A.7.6.16 Simulation de la grande colonne MNOG pour différentes tailles d'éléments verticaux ; comparaison avec les résultats de laboratoire et les simulations des essais en grandes colonnes

ANNEXE 7.7 – Étude paramétrique

On a vu que certaines conditions (évaporation, condition frontière inférieure, hystérésis ; annexe 7.6) étaient cruciales pour bien modéliser les colonnes. A l'inverse, d'autres paramètres se sont avérés moins critiques, tels la géométrie des colonnes, la présence de la céramique à la base de celles-ci ou encore le maillage. En complément de l'analyse de sensibilité précédente, on réalise également une étude paramétrique. Un des objectifs de ce projet étant d'évaluer l'efficacité de différents recouvrements, il s'agit ici de quantifier l'influence de paramètres clefs de la restauration, comme la profondeur de nappe, l'ampleur de l'évaporation ou l'épaisseur de la couverture.

Comme pour l'analyse de sensibilité, on emploie des modèles numériques types pour lesquels on fait varier un paramètre à la fois. Ce modèle type est constitué d'une colonne parallélépipédique 1D de 1 m² de section et de 10 mètres de hauteur de résidus (plus la couverture). La valeur de 10 mètres est choisie pour s'assurer que les conditions frontières supérieures et inférieures ne s'influencent pas mutuellement. L'épaisseur de la couverture varie selon les simulations. Le modèle utilise les mêmes paramètres de convergence que ceux décrits pour les grandes et les petites colonnes, et la hauteur des éléments du maillage est fixée à 5 cm.

Les calculs se font sur une période de 100 jours. Le régime initial est établi en régime permanent avec la nappe fixée à la profondeur testée, sans évaporation ni écoulement. La condition frontière supérieure dans les simulations est un modèle climatique simplifié. Les températures et humidités relatives maximales et minimales journalières sont choisies comme la moyenne des valeurs obtenues en laboratoire au cours des essais, à savoir respectivement T_{max} = 24,8°C et T_{min} = 23,9°C et RH_{max} = 32,8% et RH_{min} = 26,2%. Ces paramètres ont peu d'importance étant donné que l'évaporation imposée est constante au cours de l'essai. Le cycle de 100 jours débute par l'ajout de 10 cm d'eau au sommet de la colonne. A la base de la colonne, on impose une condition frontière de type nappe libre, dont la profondeur varie selon les cas. On utilise les modèles d'hystérésis des CRE décrits et calibrés plus haut, à savoir qu'on utilise la courbe de rétention d'eau en mouillage pour la couverture et les résidus situés au-dessus de la nappe. Sous la nappe, on considère (par définition) que les résidus sont complètement saturés. Les valeurs des conductivités hydrauliques saturées k_{sat} sont celles estimées au chapitre 5 (tableau 5.2).

A.7.7.1 Profondeur de nappe

Dans un premier temps, on cherche à déterminer l'influence de la profondeur de nappe sur le comportement des résidus et de la couverture. Pour ce faire, on considère le modèle numérique type suivant : 10 mètres de résidus avec une couverture de 1 mètre (de résidus Goldex ou de Moraine selon les résidus analysés), et une évaporation potentielle de 2 mm/j. La profondeur de la nappe est mesurée à partir de l'interface résidus-couverture (z = 0 m). Elle prend les valeurs 0 m, -0,5 m, -1 m, -2 m, -3 m, -4 m, -5 m et -10 m.

La figure A.7.7.1 présente la variation des profils du degré de saturation au cours du temps pour une nappe à 4 mètres sous l'interface résidus-couverture. La seule différence entre les quatre cas présentés ici est le choix des matériaux dans les simulations. La figure A.7.7.2 présente la variation des profils de pression au cours du temps pour les mêmes cas.

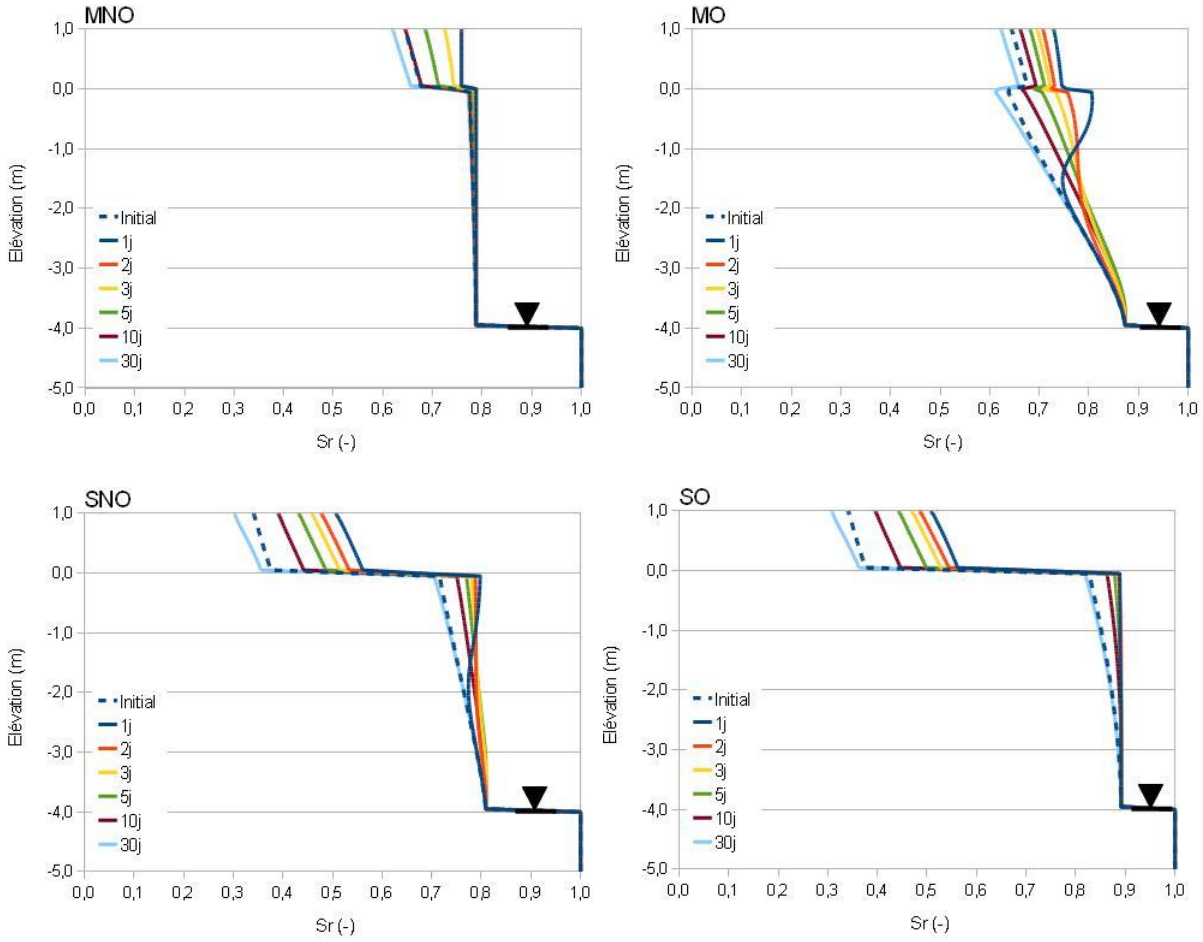


Figure A.7.7.1 Profils du degré de saturation simulé pour les quatre types de résidus, avec couverture monocouche de 1 m, évaporation de 2 mm/j et nappe à 4 m sous l'interface résidus-couverture (z = 0m), à différent temps du cycle de drainage

On constate sur la figure A.7.7.1 que le degré de saturation dans les résidus et les couvertures varie assez rapidement : en trente jours, le degré de saturation au sommet des couvertures a diminué de 14% pour MNO, 8% pour MO, 17% pour SNO et 20% pour SO. Les courbes au jour 1 présentent parfois (pour MO et SNO notamment) un renflement lié à l'infiltration du front de mouillage. Les résidus MO se désaturent rapidement et atteignent des degrés de saturation aussi faibles que 65% après 30 jours. Les résidus MNO ont un AEV plus élevé et demeurent presque a satiation ($\theta = \theta_{sat}$), malgré la désaturation de la couverture de résidus Goldex. Les résidus SNO et SO quant à eux commencent à se désaturer après 5 jours et le processus s'amplifie par la suite.

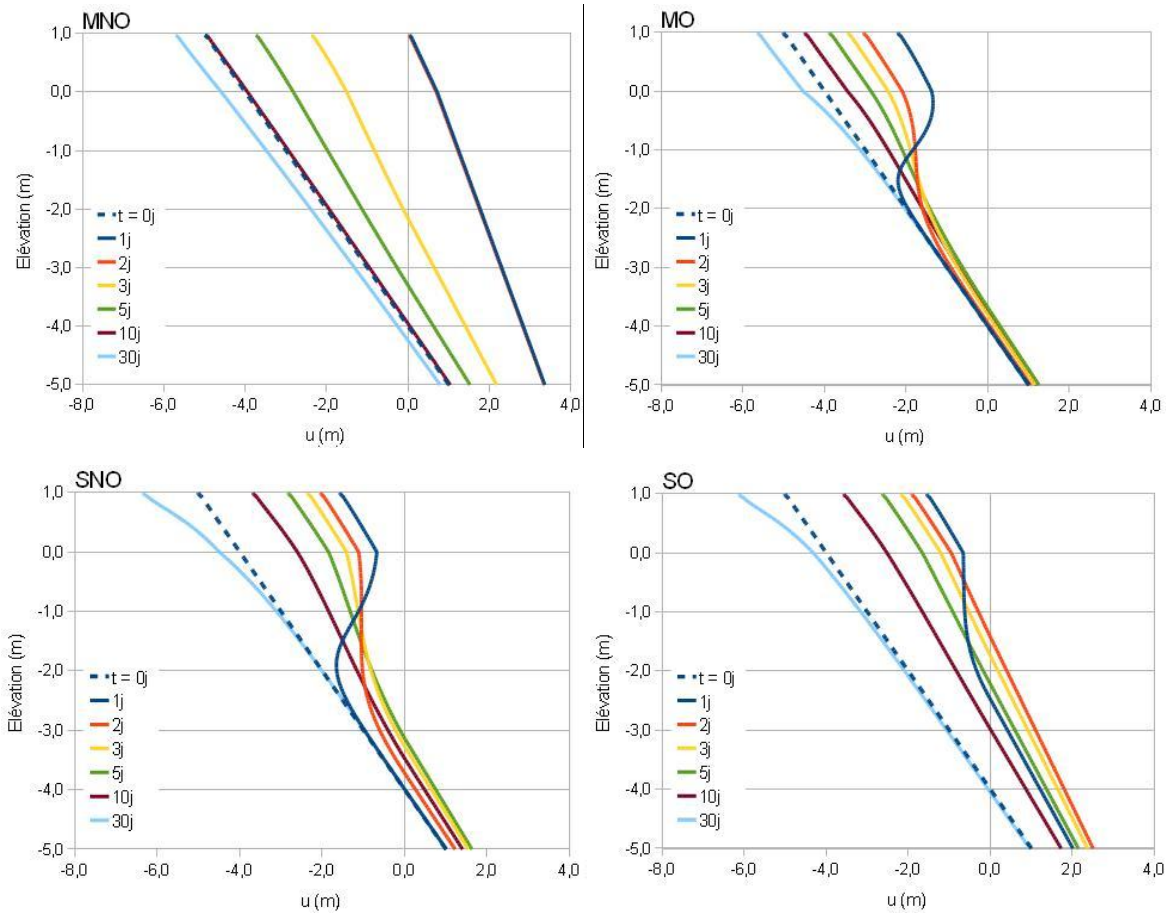
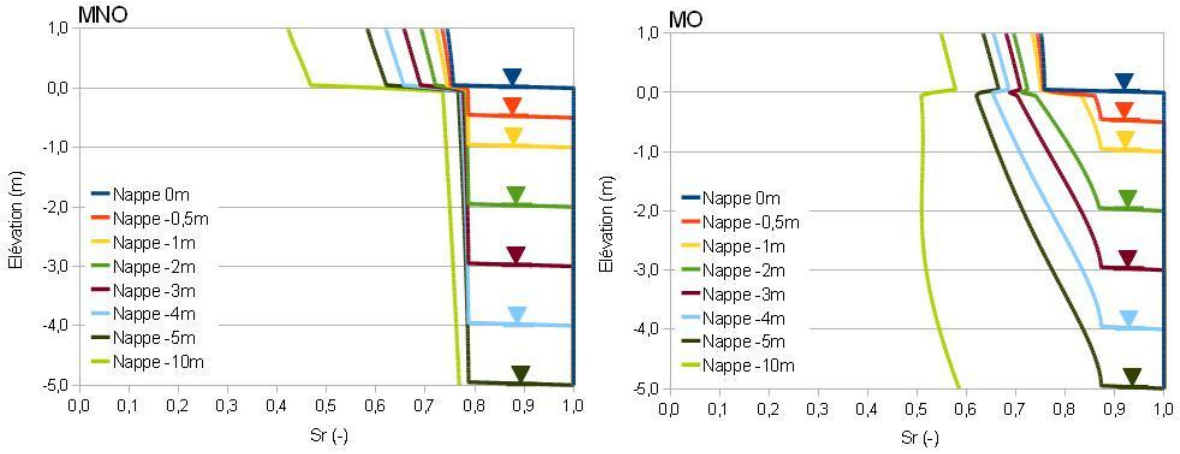


Figure A.7.7.2 Profils de la pression d'eau simulée pour les quatre types de résidus, avec couverture monocouche de 1 m, évaporation de 2 mm/j et nappe à 4 m sous l'interface résidus-couverture (z = 0m), à différent temps du cycle de séchage

On observe sur la figure A.7.7.2 que le profil des pressions d'eau établi en régime permanent (sans évaporation ni écoulement) est atteint (et dépassé) après 30 jours (10 jours pour les résidus MNO). Dans les couvertures, la succion est plus grande (en valeur absolue) qu'au temps initial après 30 jours (entre 50 cm et 1 m de différence), indiquant que la désaturation se poursuit en raison de l'évaporation. On remarque également qu'après 30 jours, l'effet de l'évaporation ne dépasse pas 2 mètres de profondeur (sous la surface) pour les résidus MO, SNO et SO, mais atteindrait 6 mètres dans le cas de MNO (soit sous le niveau de la nappe : voir discussion plus loin). En comparant les profils pour les jours suivants, on constate que les degrés de saturation et les pressions dans les résidus et les couvertures varient très lentement après 30 jours (régime quasi-stationnaire).

On compare les profils de degrés de saturation après 30 jours de sécheresse à la figure A.7.7.3.



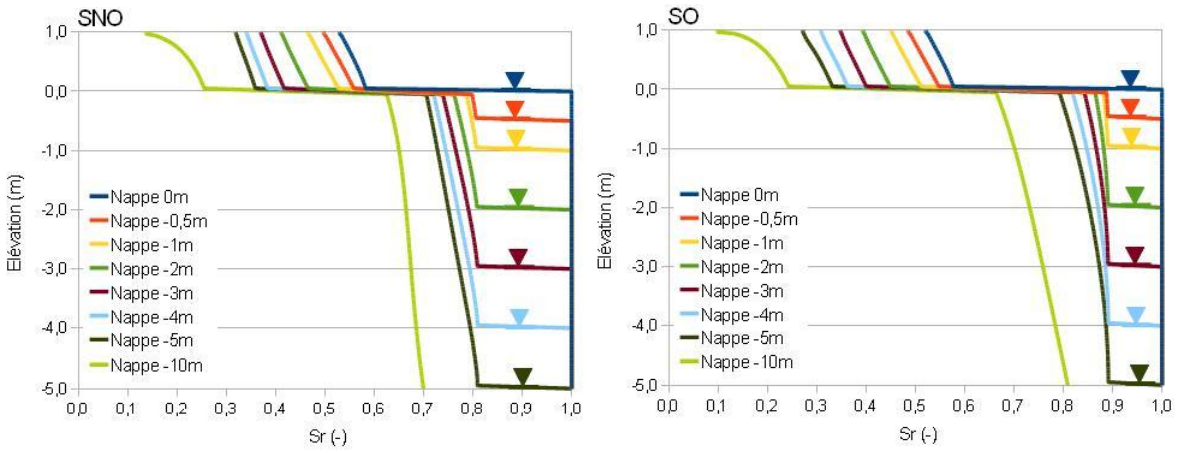


Figure A.7.7.3 Profils du degré de saturation simulé pour différentes profondeurs de nappe après 30 jours de sécheresse ; couverture monocouche de 1 m ; évaporation de 2 mm/j

La figure A.7.7.3 présente la comparaison des profils du degré de saturation au bout de 30 jours (régime quasi-permanent) pour une nappe située à diverses profondeurs. On observe l'influence de la profondeur de la nappe sur le degré de saturation des résidus et de leur recouvrement monocouche de 1 m. L'évaporation est égale à 2 mm/j. On constate logiquement que plus la nappe est profonde, plus le profil aura tendance à se désaturer. Dans le cas où la nappe est à 10 mètres de profondeur, le degré de saturation au sommet de la couverture est d'environ 43% pour MNO, autour de 55% pour MO, et d'environ 14% et 10% pour SNO et SO respectivement. Les résidus ont également tendance à se désaturer, excepté MNO où l'AEV très élevé permet de maintenir des degrés de saturation plus élevés sur tout le profil en tout temps. On note également la présence d'un léger effet de barrière capillaire dans le cas MO, qui tend à s'amplifier à mesure que la nappe est plus profonde, et qui explique sans doute que le degré de saturation de la couverture de résidus Goldex demeure plus élevée (+12% par rapport à MNO dans les mêmes conditions).

La figure A.7.7.4 présente les profils de pressions d'eau dans les résidus MNO et leur couverture de résidus Goldex. On y compare les profils obtenus après 30 jours de sécheresse avec les profils à l'équilibre (sans évaporation).

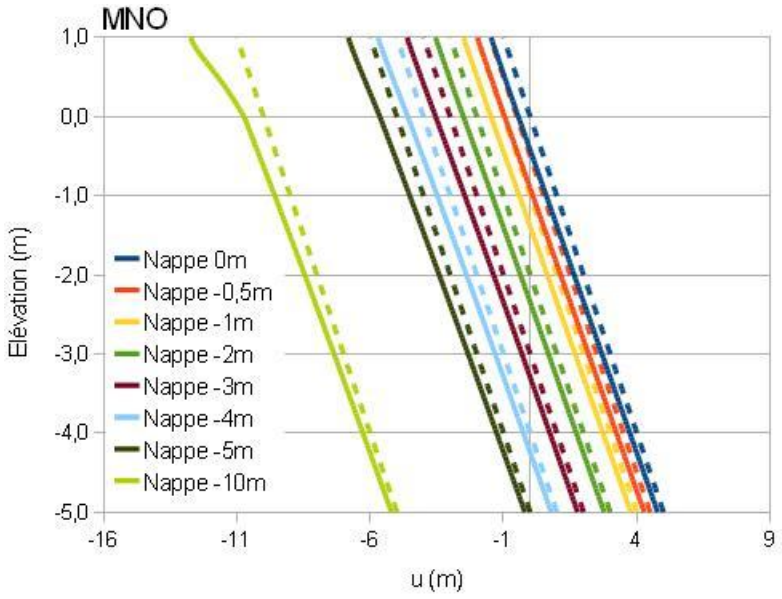


Figure A.7.7.4 Profils de pression d'eau simulée dans les résidus MNO et leur couverture Goldex, pour différentes profondeurs de nappe après 30 jours de sécheresse ; couverture monocouche de 1 m ; évaporation de 2 mm/j ; en pointillés : profils de pression initiale pour chaque niveau de nappe

On constate à la figure A.7.7.4 que l'évaporation produit des pressions plus faibles dans les résidus et la couverture que celles simulées à l'équilibre sans évaporation (entre 50 cm et 1,7 m de différence au sommet de la couverture). On observe également que l'effet de l'évaporation semble être indépendant de la profondeur de nappe, excepté peut-être au sommet de la couverture quand la nappe est à 10 mètres de profondeur. Autrement, les profils à 30 jours sont parallèles aux profils initiaux, et le décalage entre les deux courbes est généralement d'une trentaine de centimètres sur toute la hauteur du profil. On observe également l'effet d'une concurrence entre les conditions frontières qui se traduit ici par des pressions négatives (entre -20 et -40 cm) au niveau et sous la nappe (artefact numérique). Cela signifie que l'évaporation tend à faire diminuer le niveau de la nappe.

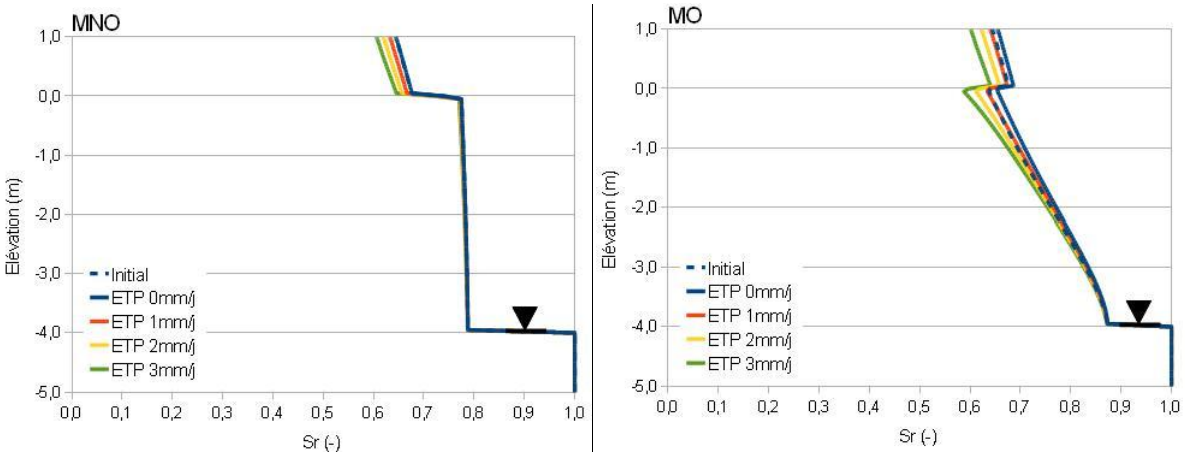
La profondeur de nappe est donc un facteur important dans l'évaluation de l'efficacité des méthodes de recouvrement. Le degré de saturation peut être assez différent pour des nappes relativement proches. Pour 1 m de profondeur de différence, le degré de saturation au sommet de

la couverture peut varier de plus de 5% ce qui peut modifier sensiblement son comportement vis-à-vis de la diffusion d'oxygène.

A.7.7.2 Évaporation

L'amplitude de l'évaporation fluctue au cours de l'année et selon les conditions météorologiques qui prévalent (exposition au soleil, au vent, humidité relative de la région, etc.). On compare l'effet que peuvent avoir ces variations en testant ici quatre variations du modèle type. Celui-ci est défini comme une colonne de 10 m de haut, avec une couverture monocouche de 1 m et une nappe située 4 m sous l'interface résidus-couverture. La comparaison est effectuée sur les profils du degré de saturation obtenus après 30 jours de sécheresse (avec drainage et évaporation). Les valeurs d'évaporation potentielle testées sont les suivantes : 0 mm/j, 1 mm/j, 2 mm/j et 3 mm/j. Les résultats sont présentés à la figure A.7.7.5. On constate que la valeur de l'évaporation potentielle fait varier relativement peu le degré de saturation des couvertures et des résidus (pour cette plage). Dans le pire des cas, les degrés de saturation au sommet de la couverture ne sont différents que d'un peu plus de 10%. L'influence sur le degré de saturation des résidus est plus faible (moins de 5%).

On compare à la figure A.7.7.6 les profils de pression dans les résidus et leur couverture après 30 jours de sécheresse et pour différentes valeurs de l'évaporation potentielle.



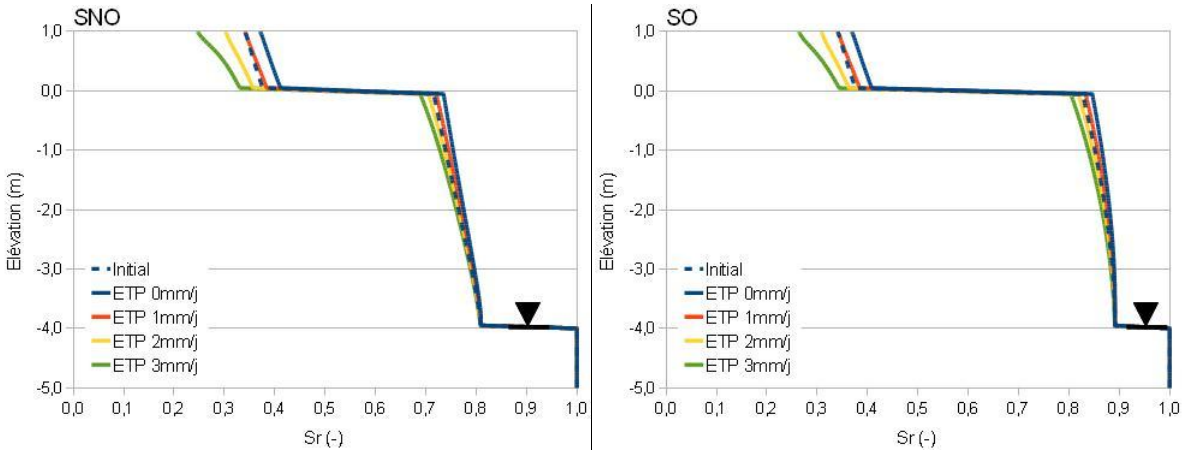
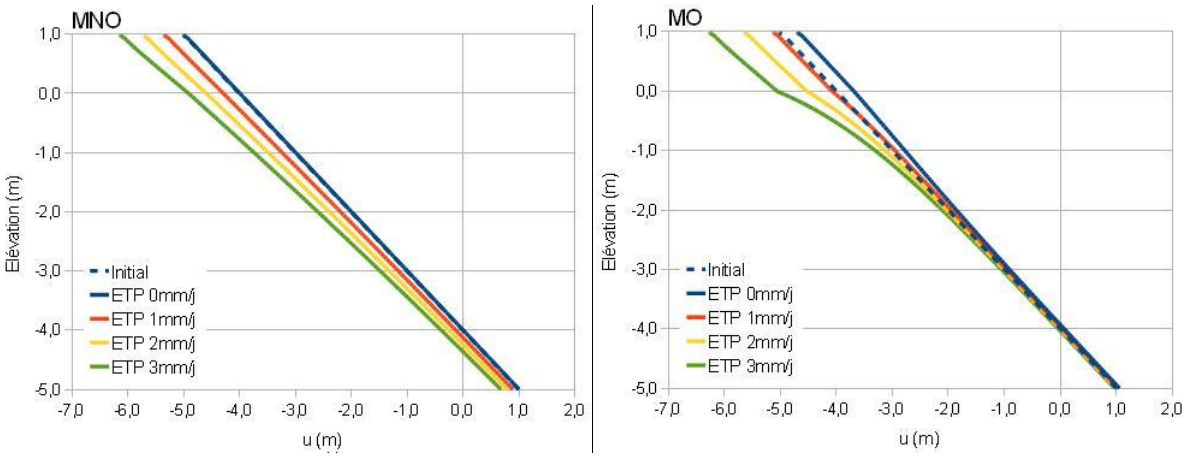


Figure A.7.7.5 Profils des degrés de saturation après 30 jours de sécheresse pour différentes valeurs de l'évaporation potentielle pour des simulations unidimensionnelles, avec couverture monocouche de 1 m et une nappe située 4 mètres sous l'interface résidus-couverture

On constate sur la figure A.7.7.6 que l'évaporation accélère la diminution de la pression d'eau dans les résidus et la couverture. Pour une évaporation nulle, le profil de pression n'a pas recouvré sa valeur à l'équilibre après 30 jours (sauf dans le cas MNO). On remarque aussi que l'effet de l'évaporation diminue avec la profondeur (contrairement à ce que l'on a observé par exemple à la figure A.7.7.3). L'effet de l'évaporation est également plus important sur la moraine où les pressions atteignent des valeurs plus basses que dans les résidus Goldex : l'évaporation crée au sommet de la moraine une succion de près de 4 m, et de 2 m dans les résidus Goldex. On déduit de ces observations que l'évaporation joue un rôle important (voir section 7.3.2) et influence directement le degré de saturation de la couverture. Les résidus semblent ici moins affectés par l'amplitude de l'évaporation (pour cette couverture) que par la position de la nappe.



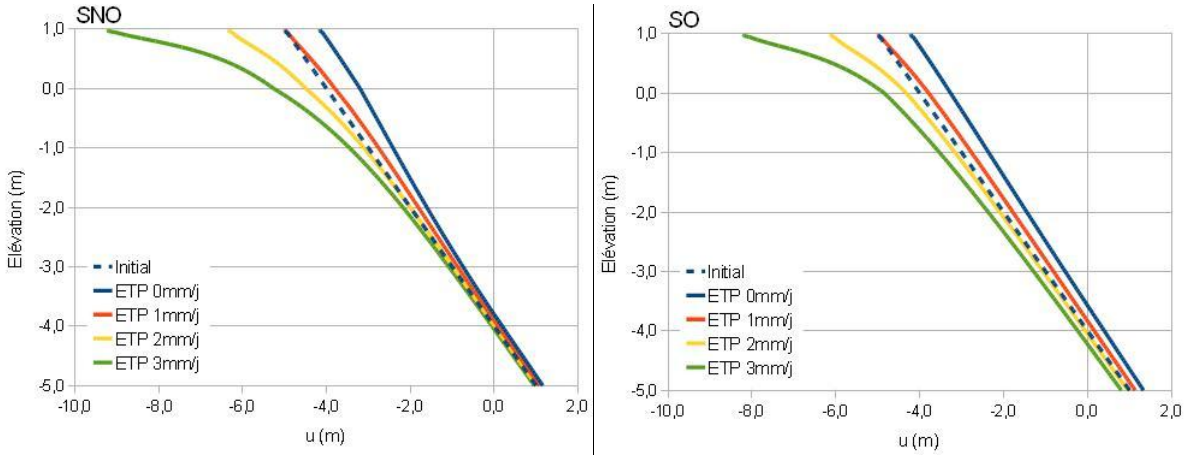


Figure A.7.7.6 Profils des pressions d'eau après 30 jours de sécheresse pour différentes valeurs de l'évaporation potentielle pour des simulations unidimensionnelles, avec couverture monocouche de 1 m et une nappe située 4 mètres sous l'interface résidus-couverture

A.7.7.3 Épaisseur du recouvrement

Une épaisseur moyenne de 1 m est considérée ici pour la restauration des deux parcs à résidus étudiés, mais il s'agit d'un paramètre qui pourrait éventuellement être modifié dans le cas du site Manitou. Il pourrait par exemple être envisageable d'ajouter d'avantage de résidus Goldex au sommet des résidus. Sur le site Selbaie, il a été constaté que l'épaisseur de la couverture de moraine pouvait atteindre 2 mètres. L'épaisseur de la couverture est donc un critère de design à considérer pour la restauration de ces deux parcs (en autres aussi parce qu'elle a un impact sur les coûts de mise en place). Le modèle type employé ici est une colonne 1D de 10 mètres de hauteur (résidus), avec une nappe située 4 mètres sous l'interface résidus-couverture et une évaporation potentielle de 2 mm/j. Les épaisseurs de couverture testées sont de 0,5 m, 1 m et 2 m. Les figures A.7.7.7 et A.7.7.8 présentent les profils du degré de saturation et de pression dans les colonnes.

On constate à la figure A.7.7.7 que l'augmentation de l'épaisseur des couvertures semble avoir un effet limité sur le comportement des résidus ou des couvertures elles-mêmes (différences entre les degrés de saturation entre les couvertures de 0,5 m et 2 m inférieures à 10%). Une différence notable est observée pour le temps requis pour atteindre un régime permanent. Plus la couverture est mince, plus elle se désaturera rapidement (sous l'effet combiné du drainage et de l'évaporation). A l'inverse, plus elle est épaisse, plus sa teneur en eau restera élevée longtemps.

Dans le cas où la phase de sécheresse se prolongerait, les résultats indiquent toutefois que l'épaisseur de la couverture aurait peu d'impact sur son degré de saturation et par conséquent sur le contrôle du flux d'oxygène.

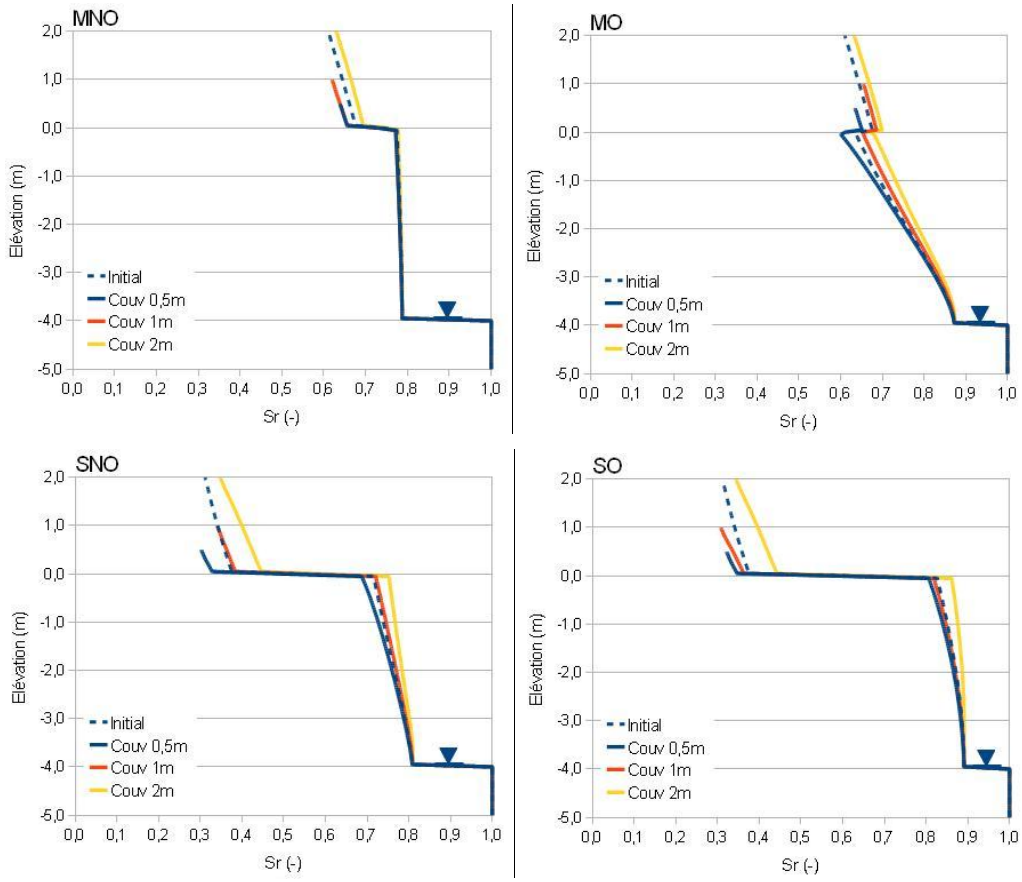
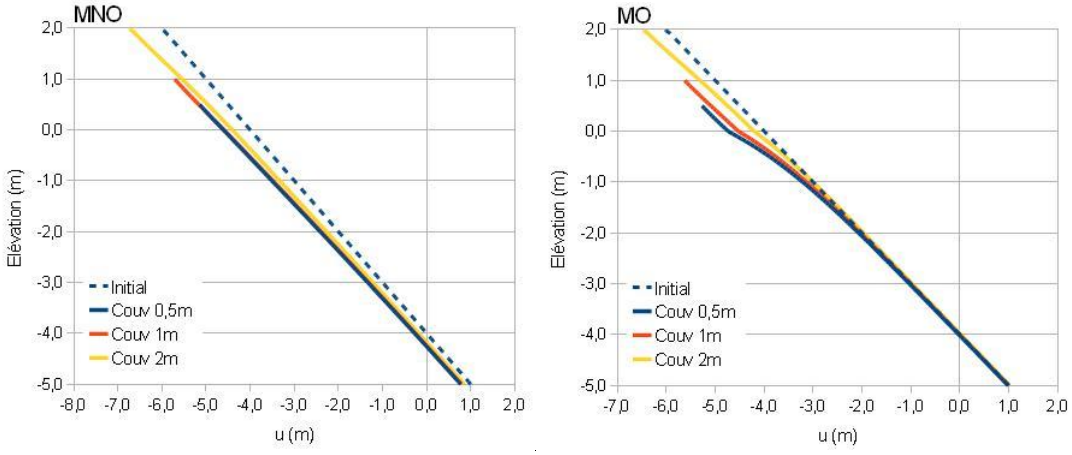


Figure A.7.7.7 Profils du degré de saturation pour différentes épaisseurs de recouvrement, dans des modèles unidimensionnels après 30 jours de sécheresse (drainage et évaporation), avec une évaporation potentielle de 2 mm/j et une nappe située 4 mètres sous l'interface résidus-couverture



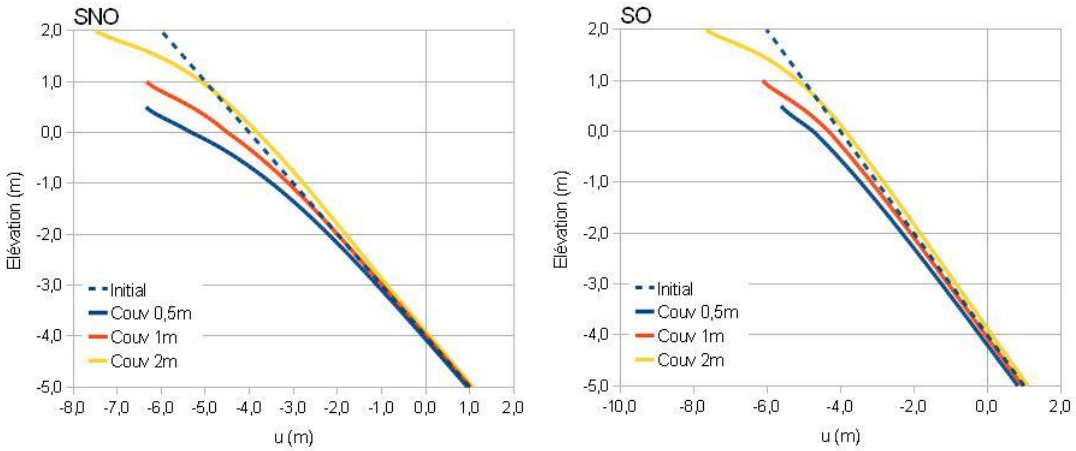


Figure A.7.7.8: Profils de pressions d'eau pour différentes épaisseurs de recouvrement, dans des modèles unidimensionnels après 30 jours de sécheresse (drainage et évaporation), avec une évaporation potentielle de 2 mm/j et une nappe située 4 mètres sous l'interface résidus-couverture

La figure A.7.7.8 permet de constater que l'épaisseur de la couverture a d'avantage d'effet sur la moraine que sur les résidus Goldex. Les profils de pression dans ces résidus sont presque superposés après 30 jours (moins d'une dizaine de centimètres de différence). Par contre les écarts dans les profils dans la moraine peuvent dépasser 2 mètres de succion. Les couvertures les plus épaisses se désaturent plus en surface, mais leur degré de saturation demeure plus élevé en profondeur.

L'ensemble des résultats présentés ici montrent que la position de la nappe et les propriétés des résidus et des matériaux de couverture sont les facteurs les plus importants. La durée de la phase de sécheresse (drainage et évaporation) est également un paramètre critique.

ANNEXE 7.8 – Liste des simulations hydrogéologiques et hydrogéochimiques avec sections correspondantes

Cas simulés			M3G2	M4G2	S2Mor2	S3Mor2
Monocouche 1 m,	nappe -1 m		7.5.2.1/8.5.2.4	7.5.2.1	-	-
	nappe -2 m		7.5.2.1/8.5.2.4	7.5.2.1	7.5.2.2/8.5.3.3	7.5.2.2
	nappe -2m, année sèche		7.5.2.1	7.5.2.1	-	-
	nappe -4 m		7.5.2.1/8.5.2.4	7.5.2.1	7.5.2.2/8.5.3.2	7.5.2.2
	nappe -6 m		7.5.2.1/8.5.2.4	7.5.2.1	7.5.2.2/8.5.3.3	7.5.2.2
Monocouche 2 m,	nappe -1 m		7.5.2.1	7.5.2.1	-	-
	nappe -2 m		7.5.2.1	7.5.2.1	7.5.2.2	7.5.2.2
	nappe -2m, année sèche		7.5.2.1	7.5.2.1	-	-
	nappe -4 m		7.5.2.1	7.5.2.1	7.5.2.2	7.5.2.2
	nappe -6 m		7.5.2.1	7.5.2.1	7.5.2.2	7.5.2.2
Monocouche 4 m,	nappe -1 m		7.5.2.1	7.5.2.1	-	-
	nappe -2 m		7.5.2.1	7.5.2.1	7.5.2.2	7.5.2.2
	nappe -2m, année sèche		7.5.2.1	7.5.2.1	-	-
	nappe -4 m		7.5.2.1	7.5.2.1	7.5.2.2	7.5.2.2
	nappe -6 m		7.5.2.1	7.5.2.1	7.5.2.2	7.5.2.2
CEBC bicouche	1 m, stériles 1 (0,5 m),	nappe -4 m	A.7.8.1	A.7.8.1	A.7.8.2	A.7.8.2
	1 m, stériles 2 (0,5 m),	nappe -4 m	A.7.8.1	A.7.8.1	A.7.8.2	A.7.8.2
CEBC bicouche	1 m, stériles 1 (1 m),	nappe -4 m	7.5.3.2	7.5.3.2	7.5.3.2	7.5.3.2
		nappe -1 m	7.5.3.2	-	-	-
	2 m, stériles 1 (1 m),	nappe -4 m	7.5.3.2	7.5.3.2	7.5.3.2	7.5.3.2
		nappe -1 m	7.5.3.2	-	-	-
	3 m, stériles 1 (1 m),	nappe -4 m	7.5.3.2	7.5.3.2	7.5.3.2	7.5.3.2
		nappe -1 m	7.5.3.2	-	-	-
CEBC bicouche	1 m, stériles 2 (1 m),	nappe -4 m	7.5.3.2/8.5.2.5	7.5.3.2	7.5.3.2/8.5.3.4	7.5.3.2
		nappe -1 m	7.5.3.2/8.5.2.5	-	-	-
	2 m, stériles 2 (1 m), nappe -4 m		7.5.3.2	7.5.3.2	7.5.3.2	7.5.3.2
		nappe -1 m	7.5.3.2	-	-	-
	3 m, stériles 1 (1 m),	nappe -4 m	7.5.3.2/8.5.2.5	7.5.3.2	7.5.3.2/8.5.3.4	7.5.3.2
		nappe -1 m	7.5.3.2	-	-	-
Barrière à l'évaporation (0,5 m), stériles 1, nappe -4m			7.5.3.3	7.5.3.3	7.5.3.3	7.5.3.3
CEBC tricouche, stériles 1, nappe -4 m			7.5.4.1/8.5.2.6	7.5.4.1	7.5.4.2	7.5.4.2
CEBC tricouche, stériles 1, nappe -4 m, année sèche			7.5.4.1	7.5.4.1	7.5.4.2	7.5.4.2
CEBC tricouche, stériles 2, nappe -4 m			7.5.4.1/8.5.2.6	7.5.4.1	7.5.4.2/8.5.3.5	7.5.4.2
CEBC tricouche, stériles 1, nappe -4 m, année sèche			7.5.4.1	7.5.4.1	7.5.4.2	7.5.4.2

ANNEXE 7.9 –Simulations des conditions de terrain : effets de l'épaisseur de la couche de stériles dans un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire

A.7.9.1 Site Manitou

Ces modèles visent à déterminer l'influence de l'épaisseur du bris capillaire dans un recouvrement bicouche à effet de barrière capillaire, pour des épaisseurs de 0,5 m et 1 m pour la couche de stériles. Les résultats des simulations sont présentées aux figures A.7.9.1 (variations du degré de saturation 10 cm au-dessus de l'interface stériles-couverture), A.7.9.2 (profils du degré de saturation le jour le plus sec de l'année, soit le jour 188 (8 juillet) en comparaison avec le profil à la fin de l'hiver (jour 125)) et A.7.9.3 (profil de pression aux mêmes dates). Les flux d'oxygène estimés par Vadose/W à la surface du recouvrement sont reproduits dans le tableau A.7.9.1.

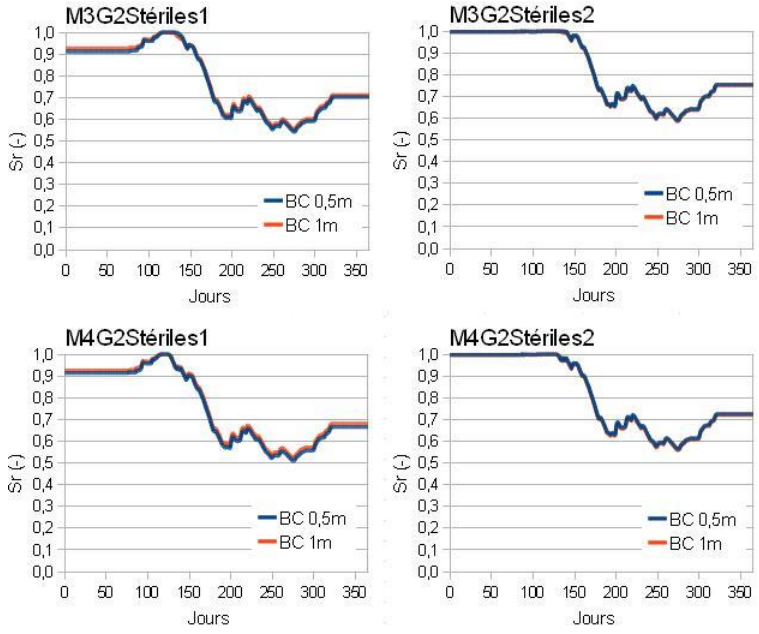


Figure A.7.9.1: Simulation de la variation du degré de saturation pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), 10 cm au-dessus de l'interface bris capillaire-couche de rétention; les résultats sont montrés pour une année et deux épaisseurs de couche de stériles (bris capillaire) différentes

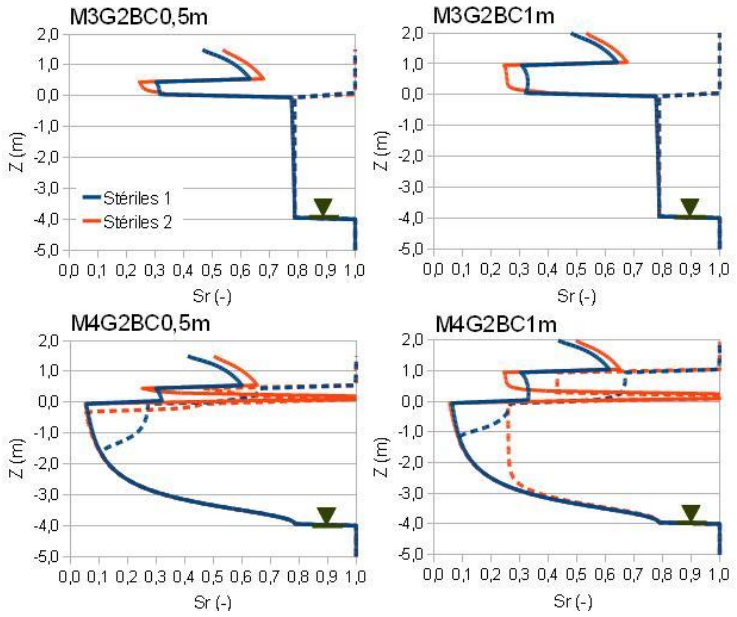


Figure A.7.9.2: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour deux épaisseurs de couche de stériles différentes. On présente le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

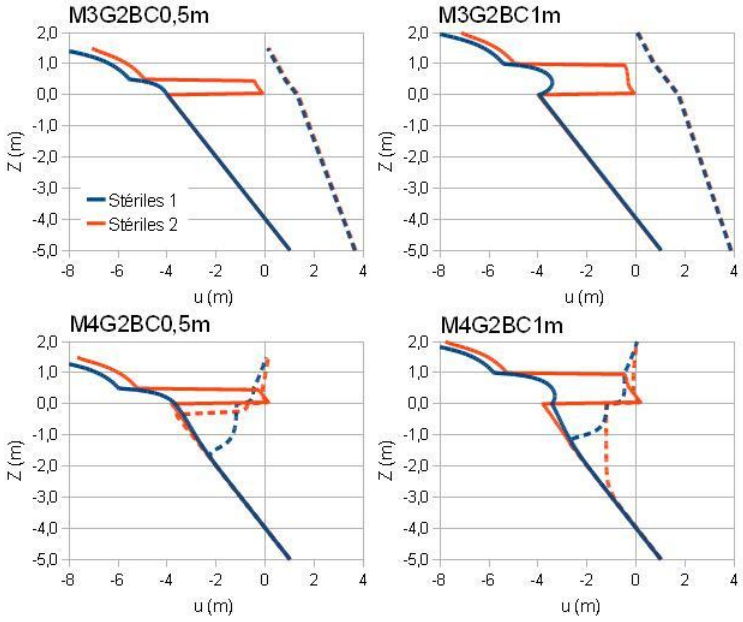


Figure A.7.9.3: Profils de pression simulée pour une CEBC bicouche (M3G2 et M4G2), le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour deux épaisseurs de couche de stériles différentes. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

On constate à la figure A.7.9.1 que l'effet de l'épaisseur de la couche de matériau grossier sur le degré de saturation de la couche de rétention est limité. Les courbes sont en effet pratiquement superposées. Dans tous les cas, le degré de saturation à la base de la couche de rétention augmente après l'hiver jusqu'à environ 100%, avant de rediminuer pendant l'été jusqu'à 70% approximativement.

Ces résultats montrent que :

- l'épaisseur du bris capillaire formé de roches stériles ne semble pas avoir d'influence significative sur le comportement du recouvrement (ce qui a été observé aussi par Aubertin et al., 1995) ;
- une couverture bicouche à effet de barrière capillaire avec une couche de rétention de 1 mètre ne peut pas se maintenir saturée toute l'année ($S_r < 70\%$).

La figure A.7.9.2 confirme les résultats précédents, à savoir que malgré le bris capillaire, la couche de rétention se désature à des valeurs inférieures à 70% ; S_r peut atteindre des valeurs aussi faibles que 45% à son sommet. Pourtant, on constate que le bris capillaire se développe bien à la figure A.7.9.3, en particulier pour les stériles 2. La figure A.7.9.3 indique que la désaturation de la couche de rétention est principalement imputable à l'évaporation (les pressions interstitielles simulées au sommet des modèles sont largement inférieures aux pressions hydrostatiques). Les résidus M3 demeurent à satiation, alors que les résidus M4 peuvent atteindre des degrés de saturation aussi bas que 10%.

On observe également dans la figure A.7.9.2 des pics de saturation au bas de la couche de stériles. Ils sont liés à l'accumulation d'eau à la surface des résidus (voir aussi figure A.7.9.3 : la pression est proche de 0 m à cet endroit). On les observe en particulier avec les résidus M4, lesquels ont tendance à se désaturer rapidement entraînant la diminution de leur conductivité hydraulique. Par conséquent, celle-ci devient rapidement très faible. De l'eau s'accumule à la surface des résidus et forme un second bris capillaire (inversé). Le même phénomène est observé, mais dans une moindre mesure, avec les stériles 1. Ce phénomène est purement artificiel et la formation d'un semblant de bris capillaire un artefact numérique. En pratique, une telle d'accumulation d'eau ne pourrait se produire, car l'écoulement se ferait instantanément entre les deux couches de matériaux grossiers St2 et M4 (e.g. Bussière, 1999). Vadose/W (et la plupart des codes numériques en hydrogéologie) simulent mal les écoulements dans les matériaux grossiers

(Fala, 2008; Abdelgahni, 2009) et ne prennent pas en compte les lois de l'hydraulique classique. Les flux d'oxygène estimés dans ces cas là sont donc jugés non représentatifs.

Tableau A.7.9.1: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet d'un recouvrement bicouche (M3G2 et M4G2) avec une nappe à -4 m et pour différentes épaisseurs de la couche de stériles (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité relative du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	0,5 m de stériles		1 m de stériles	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
M3G2 St1	792	6%	663	8%
M3G2 St2	603	8%	571	9%
M4G2 St1	1370	3%	1070	5%
M4G2 St2	Non applicable			

On observe au tableau A.7.9.1 que :

- l'augmentation de l'épaisseur de la couche de stériles permet d'améliorer légèrement l'efficacité de la couverture. Néanmoins, le gain est très limité (moins de 2% en termes d'efficacité) ;
- les stériles 2 permettent de développer un meilleur effet de barrière capillaire et donc de limiter plus efficacement le flux d'oxygène (le gain par rapport aux stériles 1 est néanmoins faible avec les résidus M3). Par contre, le comportement hydrogéologique dans les stériles 2 est plus complexe à simuler.

On note que le cas M4G2 St2 semble donner de bons résultats (flux inférieur à 15 g/m²/an, efficacité supérieure à 300%), mais comme mentionné plus tôt, la baisse du flux d'oxygène est principalement liée à l'accumulation d'eau dans la couche de stériles et non au fait que la couche de rétention demeure saturée (elle se désature jusqu'à des S_r de moins de 70%). Ces valeurs ne seront donc pas considérées ici car jugées irréalistes.

On considère une couche de stériles de 1 m d'épaisseur dans les autres simulations.

A.7.9.2 Site Selbaie

Des calculs et analyses analogues aux précédents ont été réalisés avec les résidus Selbaie et la Moraine. On compare la fluctuation des degrés de saturation 10 cm au-dessus de l'interface stériles-résidus (figure A.7.9.4) et on analyse les profils du degré de saturation et de pression le jour le plus sec de l'année (jour 188, soit le 8 juillet ; figures A.7.9.5 et A.7.9.6). Les flux d'oxygène estimés sur l'année par Vadose/W sont présentés au tableau A.7.9.2.

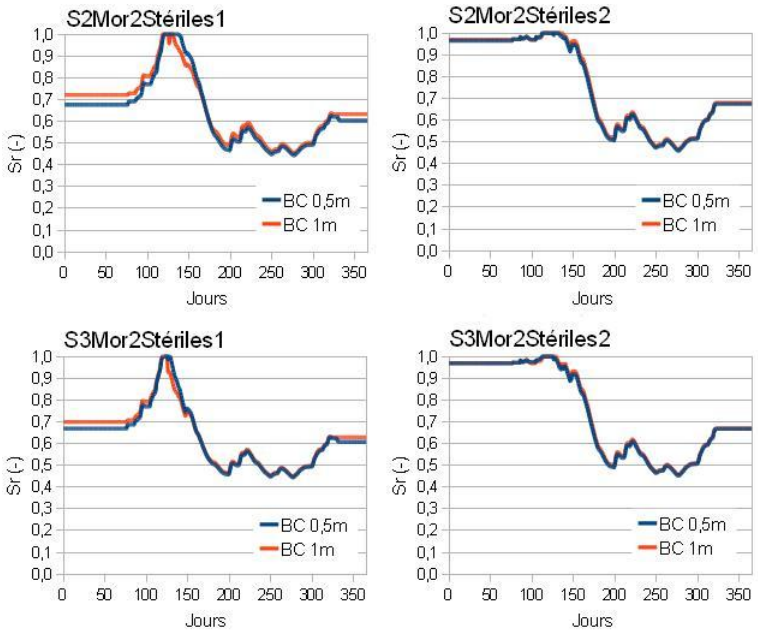


Figure A.7.9.4: Variation du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), 10 cm au-dessus de l'interface stériles-couche de rétention ; on présente les résultats pour une année et pour deux épaisseurs de couche de stériles différentes

Les résultats présentés à la figure A.7.9.4 sont comparables à ceux obtenus pour le cas Manitou. On constate tout d'abord que l'augmentation de l'épaisseur de la couche de stériles de 0,5 m à 1 m n'a pratiquement aucune influence sur le degré de saturation de la couche de rétention (les courbes sont pratiquement superposées). Le comportement de la couche de rétention est comparable pour les deux types de stériles : on observe une resaturation sur toute son épaisseur à la fonte des neiges, suivie d'une désaturation au cours de l'été, jusqu'à un degré de saturation qui se maintient entre 60 et 70%. Ces résultats indiquent que de telles couvertures ne seront pas efficaces pour contrôler le passage de l'oxygène (S_r < 85%).

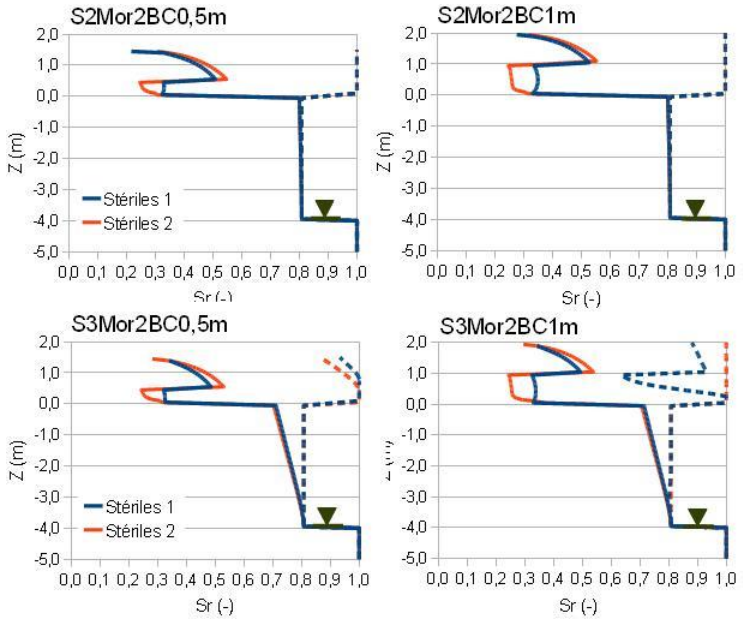


Figure A.7.9.5: Profils du degré de saturation simulé pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), le jour le plus sec de l'année (jour 188) pour deux épaisseurs de couche de stériles. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

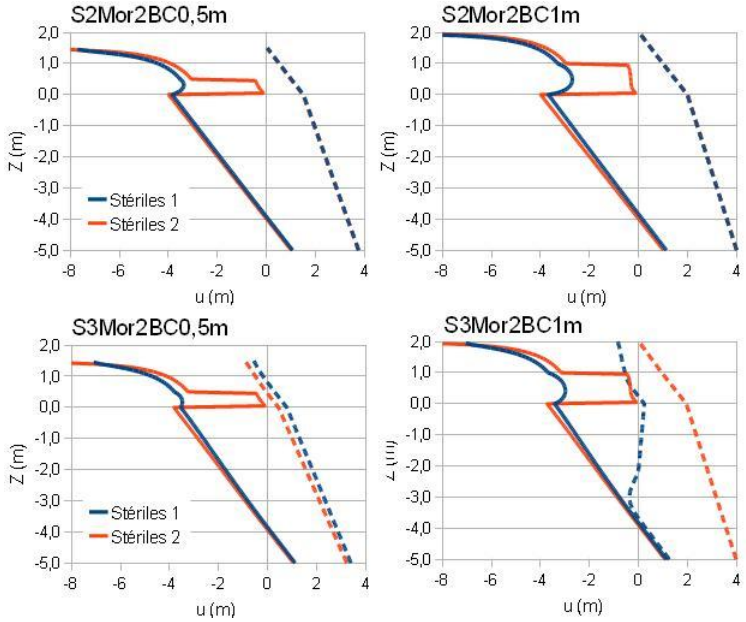


Figure A.7.9.6: Profils de pression simulée pour une CEBC bicouche (S2Mor2 et S3Mor2) le jour le plus sec de l'année (jour 188 ; 8 juillet) pour deux épaisseurs de couche de stériles. On montre également le profil du degré de saturation à la fin de l'hiver (jour 125 ; pointillés)

Les profils du degré de saturation montré à la figure A.7.9.5 confirment les observations précédentes. La couche de rétention se désature largement sous 50% au cours de l'année. Le degré de saturation au sommet de la couche de rétention atteint des valeurs aussi faibles que 30%. Un effet de barrière capillaire semble pourtant se former (surtout dans le cas des stériles 2, voir figure A.7.9.6). L'évaporation serait la cause principale de la désaturation de la couche de rétention.

On note ici que les résidus S2 et S3 ne se désaturent pas suffisamment pour former, comme dans le cas de Manitou, un pseudo-bris capillaire (numérique) avec les stériles. Les calculs de flux d'oxygène sont donc jugées réalistes.

Tableau A.7.9.2: Flux d'oxygène annuels simulés au sommet de la couverture bicouche (S2Mor2 et S3Mor2), avec une nappe à -4 m, pour différentes épaisseurs de la couche de stériles (en g/m²/an) ; on présente aussi l'efficacité du recouvrement (par rapport à l'objectif de 50 g/m²/an)

Matériau	0,5 m de stériles		1 m de stériles	
	Flux (g/m²/an)	Eff (%)	Flux (g/m²/an)	Eff (%)
S2M2 St1	601	8%	537	9%
S2M2 St2	574	8%	528	9%
S3M2 St1	805	6%	718	7%
S3M2 St2	740	7%	671	7%

L'estimation des flux d'oxygène présentée au tableau A.7.9.2 confirme les observations précédentes. Aucune des configurations simulées ici ne semble efficace pour prévenir la migration de l'oxygène jusqu'aux résidus. On ne note pas de différences importantes entre l'utilisation d'un bris capillaire de 0,5 m ou 1 m ; les flux d'oxygène sont comparables. Les résidus S2 et S3 sont également trop grossiers pour retenir l'eau.

ANNEXE 8.1 – Codage des modifications au code Min3P

Prise en compte du phénomène d'hystérésis et estimation du coefficient de diffusion effectif D_e d'après le modèle d'Aachib et al. (2004)

```
c -------------------------
c real*8 function satfpres
c -------------------------
      real*8 function satfpres(swr,aentry,pressure,
     &                         spalpha,spbeta,spgamma)

      implicit real*8 (a-h,o-z)

      parameter (r1 = 1.0D0)

c original:
c       dp = pressure-aentry
c       press = spalpha*dabs(dp)
c       se    = (r1+(press)**spbeta)**(-spgamma)
c       satfpres = se*(r1-swr)+swr

c  !JMolson for T. Pabst for hysteresis
      swmax=aentry
      dp = pressure
      press = spalpha*dabs(dp)
      se    = (r1+(press)**spbeta)**(-spgamma)
      satfpres = se*(swmax-swr)+swr

      return
      end



c -------------------------
c real*8 function diffcoff
c -------------------------
      real*8 function diffcoff(diff_p,sat_p,por,tortuosity_corr)

      implicit real*8 (a-h,o-z)

      parameter (r3=3.0d0,r4=4.0d0,r10=10.0d0,r2=2.d0,r34=3.4d0)

      logical tortuosity_corr

      if (tortuosity_corr) then
c        diffcoff = diff_p * sat_p**(r10/r3) * por**(r4/r3)  !original
         diffcoff  =  (diff_p/por**r2)  *  (sat_p*por)**(r34)   !Aachib  et  al.
(2004)
      else
        diffcoff = diff_p * sat_p * por
      end if

      return
      end
```

```
c ---------------------
c subroutine initsatw
c ---------------------
      subroutine initsatw

      use parm
      use gen
      use phys

      implicit real*8 (a-h,o-z)

      external satfpres

      parameter (r1 = 1.0d0)

c  fully saturated conditions
c  assign unity to all saturations

      if (fully_saturated) then
        do ivol=1,nn
          saold(ivol) = r1
          sanew(ivol) = r1
        end do

c  variably saturated conditions
c  calculate saturations for each control volume from pressure

      elseif (variably_saturated) then
        do ivol=1,nn
          izn = mpropvs(ivol)
          if (uvsnew(ivol).lt.0.) then          !JM janv2011 aentry replaced
with 0.
            saold(ivol) = satfpres(swr(izn),aentry(izn),uvsnew(ivol),
     &                             spalpha(izn),spbeta(izn),
     &                             spgamma(izn))
            sanew(ivol) = saold(ivol)
            sgnew(ivol) = r1-sanew(ivol)
            sgold(ivol) = sgnew(ivol)
          else
            saold(ivol) = aentry(izn)       !JM jan,2011  (=r1 removed)
            sanew(ivol) = aentry(izn)
              sgnew(ivol) = r1-sanew(ivol)
            sgold(ivol) = sgnew(ivol)     !
          end if
        end do
      end if

      return
      end
```

```
c --------------------------
c real*8 function relpfsat
c --------------------------

      real*8 function relpfsat(swc,swr,expn,gamma,aentry)

      implicit real*8 (a-h,o-z)

      parameter (r0 = 0.0d0, r1 = 1.0d0, eps_conv = 1.0d-6,
     &           aconstant = r1 - eps_conv)

c  compute effective saturation

      se = (swc - swr)/(aentry - swr)       !JM jan2011

c  compute some constants

      v_gamma = r1/gamma

c  close to saturation -> use linear interpolation

      if (se.gt.aconstant) then

         sat_1 = aconstant
         term1 = (r1-sat_1**(v_gamma))**gamma
         rkw_1 = dsqrt(sat_1)*(r1-term1)*(r1-term1)

c  note that the k_rw at sat=1.0 is 1.0

         dk_ds  = (r1-rkw_1)/(r1-sat_1)
         relpfsat = dk_ds*(se-sat_1)+rkw_1

c  close to residual saturation -> set to zero

      elseif (se.lt.eps_conv) then

         relpfsat = r0

c  intermediate saturations -> use van Genuchten directly

      else

         term1 = (r1-se**(v_gamma))**gamma
         relpfsat = se**expn*(r1-term1)*(r1-term1)  !for l = variable
cff      relpfsat = dsqrt(se)*(r1-term1)*(r1-term1) !for l = 0.5d0

      end if

      return
      end
```

```
c ---------------------
c subroutine soilparm
c ---------------------
      subroutine soilparm(uvsnew,sanew,relperm,mpropvs,nn)

      use parm
      use phys

      implicit real*8 (a-h,o-z)

      external relpfsat, satfpres

      dimension uvsnew(*),sanew(*),relperm(*),mpropvs(*)

      parameter (r1 = 1.0d0)

c  compute soil hydraulic parameters

      do ivol=1,nn
        izn = mpropvs(ivol)                   !material property zone
        if (uvsnew(ivol).lt.0.) then        !JM janv2011 (aentry replaced with
0.)
          sanew(ivol) = satfpres(swr(izn),aentry(izn),uvsnew(ivol),
     &                           spalpha(izn),spbeta(izn),spgamma(izn))
          relperm(ivol) = relpfsat(sanew(ivol),swr(izn),expn(izn),
     &                             spgamma(izn),aentry(izn))
        else
          sanew(ivol) = aentry(izn)       !JM janv 2011 (=r1 removed)
          relperm(ivol) = r1              !JM janv 2011
        end if
      end do

cdbg  activate for purposes of debugging
c
c     write(igen,'(4x,3a12)') 'uvsnew      ',
c    &                        'sanew       ',
c    &                        'relperm     '
c     do ivol=1,nn
c       write(igen,'(3(e10.4,2x))') uvsnew(ivol),
c    &                              sanew(ivol),
c    &                              relperm(ivol)
c     end do
c     stop
cdbg
      return
      end
```

ANNEXE 8.2 – Exemple de modèle sous Min3P

```
! Modèle incomplet
! Paramètres de convergences types
! + Eléments pris en compte

[...]

! Data Block 2: geochemical system
! ------------------------------------------------------------------------
!
[...]

'compute alkalinity'

'components'
22                          ;number of components (nc-1)
'ca+2'                      ;component names
'k+1'
'cl-1'
'h4sio4'
'al+3'
'co3-2'
'h+1'
'o2(aq)'
'fe+2'
'fe+3'
'so4-2'
'mg+2'
'na+1'
'mn+2'
'zn+2'
'ni+2'
'pb+2'
'cu+2'
'co+2'
'cd+2'
'hs-1'
'mn+3'

'redox couples'
3                           ;number of redox couples (nr)
'fe+2'  'fe+3'              ;names of redox couples
'mn+2'  'mn+3'
'so4-2'  'hs-1'

'secondary aqueous species'
138                         ;number of secondary aqueous species
'h2so4(aq)'                 ;names of secondary aqueous species
'khso4(aq)'
'h2(aq)'
'cuo2-2'
'feco3+'
```

```
'oh-'
'h3sio4-'
'h2sio4-2'
'mgoh+'
'mgco3aq'
'mghco3+'
'mgso4aq'
'caoh+'
'cahco3+'
'caco3aq'
'caso4aq'
'cahso4+'
'naco3-'
'nahco3aq'
'naso4-'
'kso4-'
'aloh+2'
'al(oh)2+'
'al(oh)4-'
'also4+'
'alhso42+'
'al(so4)2-'
'al(oh)3aq'
'feoh+'
'feoh3-1'
'feso4aq'
'fehso4+'
'fehco3+'
'feco3aq'
'feoh2aq'
'fe(hs)2aq'
'fe(hs)3-'
'feoh+2'
'feso4+'
'fehso42+'
'fecl+2'
'fecl+'
'fecl2+'
'fecl3aq'
'feoh2+'
'feoh3aq'
'feoh4-'
'fe(so4)2-'
'fe2(oh)2+4'
'fe3(oh)4+5'
'mncl+'
'mncl2aq'
'mncl3-'
'mnoh+'
'mn(oh)3-1'
'mno4-'
'mno4-2'
'mnco3aq'
'mnso4aq'
'mnhco3+'
'cu(co3)2-2'
'cucl+'
```

```
'cucl2aq'
'cucl3-'
'cucl4-21'
'cuoh+'
'cu(oh)2aq'
'cu(oh)3-'
'cu(oh)4-2'
'cu2(oh)2+2'
'cuso4aq'
'cu(hs)3-'
'cuhco3+'
'zncl+'
'zncl2aq'
'zncl3-'
'zncl4-2'
'znoh+'
'zn(oh)2aq'
'zn(oh)3-'
'zn(oh)4-2'
'znohclaq'
'zn(hs)2aq'
'zn(hs)3-'
'znso4aq'
'zn(so4)2-2'
'znhco3+'
'znco3aq'
'zn(co3)2-2'
'cdcl+'
'cdcl2aq'
'cdcl3-'
'cd(co3)3-4'
'cdoh+'
'cd(oh)2aq'
'cd(oh)3-'
'cd(oh)4-2'
'cd2oh+3'
'cdohclaq'
'cdso4aq'
'cdhs+'
'cd(hs)2aq'
'cd(hs)3-'
'cd(hs)4-2'
'cdhco3+'
'cdco3aq'
'cd(so4)2-2'
'pbcl+'
'pbcl2aq'
'pbcl3-'
'pbcl4-2'
'pb(co3)2-2'
'pboh+'
'pb(oh)2aq'
'pb(oh)3-'
'pb2oh+3'
'pbso4aq'
'pb(hs)2aq'
'pb(hs)3-'
```

```
'pb3(oh)4+2'
'pbco3aq'
'pb(oh)4-2'
'pb(so4)2-2'
'pbhco3+'
'nicl+'
'nioh+'
'ni(oh)2aq'
'ni(oh)3-'
'niso4aq'
'nicl2aq'
'nihco3+'
'nico3aq'
'ni(co3)2-2'
'ni(so4)2-2'
'hco3-'
'h2co3aq'
'hso4-'
's-2'

'gases'
2                              ;number of gases
'o2(g)'                        ;names of gases
'co2(g)'

'minerals'
[Selon matériaux]

'done'

[...]

! Data Block 4: time step control - global system
! ------------------------------------------------------------------------------

'time step control - global system'
'days'                        ;time unit
0.0                           ;time at start of solution
[Selon modèle]                ;final solution time
1.0                           ;maximum time step
1.0d-20                       ;minimum time step

'done'

! Data Block 6: control parameters - variably saturated flow
! ------------------------------------------------------------------------------

'control parameters - variably saturated flow'

'mass balance'

'input units for boundary and initial conditions'
[Selon modèle]                ;input unit

'compute underrelaxation factor'
100d0                         ;max. allowed update
```

```
'newton iteration settings'
1.0d-4                          ;increment for numerical differentiation
15                                 ;maxit_vs, max. number of newton iterations !
Avant 100
1.0d-4                          ;tol_vs, convergence tolerance
0.3                             ;sw_star

'solver settings'
0                               ;level_vs, incomplete factorization level
100                             ;msolvit_vs, max. number of solver iterations
0                               ;idetail_vs, solver information level
1.0d-07                         ;restol_vs, solver residual tolerance
1.0d-07                         ;deltol_vs, solver update tolerance

'done'

! Data Block 7: control parameters - reactive transport
! ------------------------------------------------------------------------
!
'control parameters - reactive transport'

'mass balance'

'spatial weighting'
'upstream'

'activity update settings'
'time_lagged'

'tortuosity correction'
'millington'

'newton iteration settings'
1.d-4                           ;increment h for numerical differentiation
12                              ;anticipated number of Newton iterations
15                              ;max. number of Newton iterations
0.5                             ;anticipated update in log cycles
1.0                             ;maximum update in log cycles
1.d-4                           ;convergence tolerance (global system)

'solver settings'
0                               ;incomplete factorization level
100                             ;max. number of solver iterations
1                               ;information level
1.d-7                           ;solver residual tolerance
1.d-7                           ;solver update tolerance

'done'

[...]
```

ANNEXE 8.3 – Oxydation indirecte dans Min3P

On a fait l'hypothèse dans les simulations (chapitre 8) que l'on pouvait employer le modèle d'oxydation directe dans les modèles Min3P pour simuler le comportement des résidus dans les colonnes et en conditions de terrain. Or, il a été observé à la section 2.1.7 que l'oxydation indirecte peut aussi jouer un rôle important dans l'acidification du milieu, en particulier lorsque le pH est faible et que les concentrations en Fe(III) sont importantes, ce qui est notamment le cas pour les résidus Manitou (et en particulier les colonnes MNOP et MNOG).

Pour évaluer l'effet qu'une telle réaction pourrait avoir dans les modèles numériques, on reprend ici les modèles des colonnes MNOP et MNOG en ajoutant au code Min3P trois expressions pour représenter l'oxydation indirecte (voir section 2.1.7 pour les détails) :

PyrWill1 (Williamson et Rimstidt, 1994) : $R_{FeS_2} = 10^{-8,58}.\frac{[Fe^{3+}]^{0,30}}{[Fe^{2+}]^{0,47}.[H^+]^{0,32}}$ (A.8.1)

```
! pyrWill1: pyrite-sc modifiée (oxydation indirecte)
! (Williamson et Rimstidt, 1994)
'pyrwill1'
'transport'
119.9750  5.020
5 'fe+2' 15.0 'so4-2' 2.0 'h+1' 16.0 'h2o' -8.0 'fe+3' -14.0
'irreversible dissolution'

'log rate constant' -8.58
'fractional C^c' 1
'fe+3' 0.300
'fractional C^c' 1
'fe+2' -0.470
'fractional C^c' 1
'h+1' -0.320
'shrinking core parameters'  2.41d-9  14.000
```

PyrWill2 (Williamson et Rimstidt, 1994) : $R_{FeS_2} = 10^{-6,07}.\frac{[Fe^{3+}]^{0,93}}{[Fe^{2+}]^{0,40}}$ (A.8.2)

```
! pyrWill2: pyrite-sc modifiée (oxydation indirecte)
! (Williamson et Rimstidt, 1994)
'pyrwill2'
'transport'
119.9750  5.020
5 'fe+2' 15.0 'so4-2' 2.0 'h+1' 16.0 'h2o' -8.0 'fe+3' -14.0
'irreversible dissolution'

'log rate constant' -6.07
```

```
'fractional C^c' 1
'fe+3' 0.930
'fractional C^c' 1
'fe+2' -0.400
'shrinking core parameters'  2.41d-9  14.000
```

PyrGleis (Gleisner et al., 2006) : $R_{FeS_2} = 10^{-7,02}.[Fe^{3+}]^{0,83}$ (A.8.3)

```
! pyrGleis: pyrite-sc modifiée (oxydation indirecte)
! (Gleisner et al., 2006)
'pyrgleis'
'transport'
119.9750  5.020
5 'fe+2' 15.0 'so4-2' 2.0 'h+1' 16.0 'h2o' -8.0 'fe+3' -14.0
'irreversible dissolution'

'log rate constant' -7.02
'fractional C^c' 1
'fe+3' 0.830
'shrinking core parameters'  2.41d-9  14.000
```

Pour chaque modèle, on conserve les paramètres du noyau réactif de l'oxydation de la pyrite par l'oxygène, car on ne dispose pas de suffisamment d'information concernant les mécanismes et vitesses de diffusion du Fe(III) à travers la couronne d'oxydation. On fait également l'hypothèse (afin de pouvoir mieux comparer les résultats) que le paramètre « scalfac » est identique d'un modèle à l'autre. L'objectif ici n'est pas de trouver et calibrer le meilleur modèle descriptif, mais de comparer, dans les mêmes conditions, les différentes expressions de l'oxydation de la pyrite.

Les résultats obtenus dans les simulations de la petite colonne MNOP sont présentés à la figure A.8.3.1 (le détail des simulations est présenté à la section 9.1). On constate tout d'abord que les résultats obtenus avec les différents modèles d'oxydation (directe et indirecte) présentent certaines tendances analogues. On retrouve par exemple les pics caractéristiques de Fe et SO_4 aux 5^e et 6^e cycles. On tend aussi vers des concentrations en sulfates et des pH assez semblables vers la fin de l'essai.

On remarque aussi que les modèles d'oxydation indirectes sous-estiment le pH d'une unité par rapport au modèle d'oxydation directe et surestiment en général les concentrations de sulfates (de plus de 20 000 ppm).

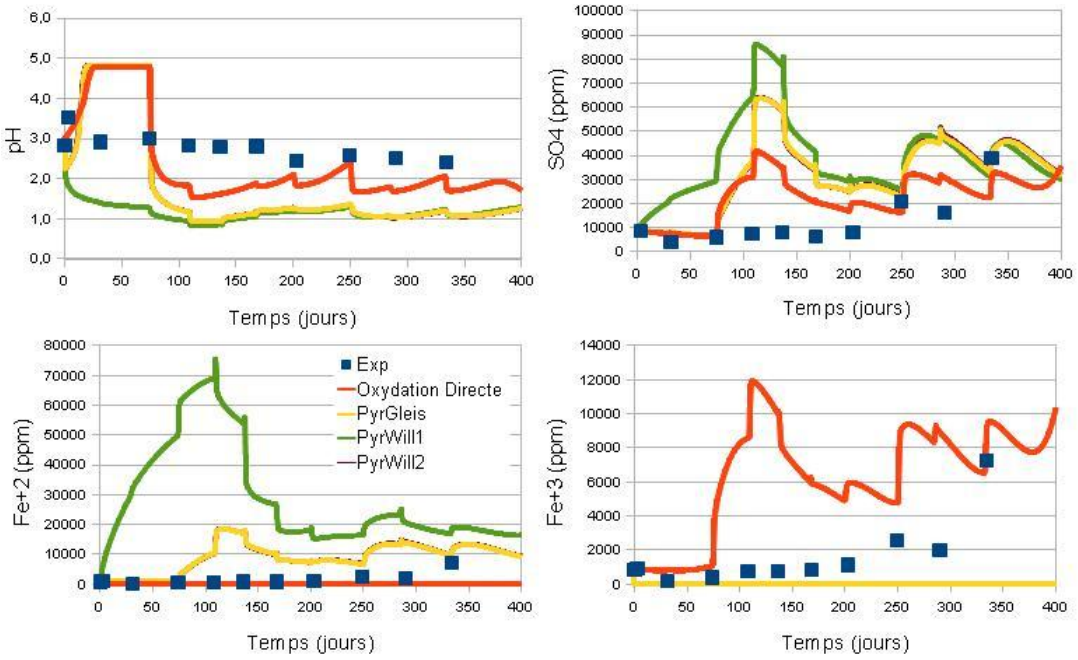


Figure A.8.3.1: Evolution du pH et des concentrations de sulfates et de fer dans la colonne MNOP au cours du temps, avec quatre modèles d'oxydation, comparée aux résultats expérimentaux

Une autre différence entre les modèles d'oxydation directe et indirecte réside dans la spéciation du fer. Dans les deux cas, la pyrite s'oxyde en formant du Fe(II) (en plus grandes quantités dans la réaction indirecte), qui est ensuite oxydé sous forme de Fe(III). Dans le modèle avec réaction directe, le Fe(III) s'accumule dans le milieu (les précipitations secondaires ne sont pas simulées ici). Dans les modèles avec oxydation indirecte, le Fe(III) est directement consommé par la réaction d'oxydation et la réaction d'oxydation du Fe(II) en Fe(III) est le facteur limitant. Par conséquent, le Fe(II) a plus tendance à s'accumuler dans le milieu. C'est ce que l'on constate à la figure A.8.3.1 où les concentrations en Fe(II) sont importantes dans le lixiviat alors que celles en Fe(III) sont faibles. En d'autres termes, la réaction d'oxydation indirecte simulée consomme plus rapidement le Fe(III) que celui-ci n'est produit. Ces observations reflètent la théorie (voir 2.1.7).

Dans le milieu naturel, les populations bactériennes peuvent aussi catalyser cette réaction. On a tenté dans le code Min3P d'accélérer la cinétique d'oxydation du Fe(II) en Fe(III) (pour représenter cet effet catalyseur), mais cela s'est traduit par des instabilités numériques additionnelles et l'approche a dû être abandonnée.

Enfin, remarquons que le modèle PyrWill1 (Williamson et Rimstidt, 1994) est celui produisant le plus d'oxydation dans ces simulations. Avec ce modèle, le pH est inférieur à 2 en tout temps, et les concentrations de fer et sulfates sont les plus importantes. Les modèles PyrGleis (Gleisner et al., 2006) et PyrWill2 (Williamson et Rimstidt, 1994) produisent des résultats similaires.

Considérant que le facteur limitant est la vitesse d'oxydation du Fe(II) en Fe(III), et qu'il n'a pas été possible dans Min3P d'accélérer cette réaction, on a fait l'hypothèse que celle-ci était aussi rapide que la réaction d'oxydation de la pyrite. La réaction globale peut alors s'écrire :

$$FeS_2 + \frac{1}{2}H_2O + \frac{15}{4}O_2 \rightarrow 2SO_4^{2-} + H^+ + Fe^{3+} \qquad \text{(A.8.4)}$$

```
5 'fe+3' 1.0 'so4-2' 2.0 'h+1' 1.0 'h2o' -0.5 'o2(aq)' -3.75
```

On a réalisé les mêmes simulations que précédemment, en utilisant également les mêmes modèles d'oxydation avec la nouvelle réaction d'oxydation globale (A.8.4). Les résultats obtenus sont présentés à la figure A.8.3.2.

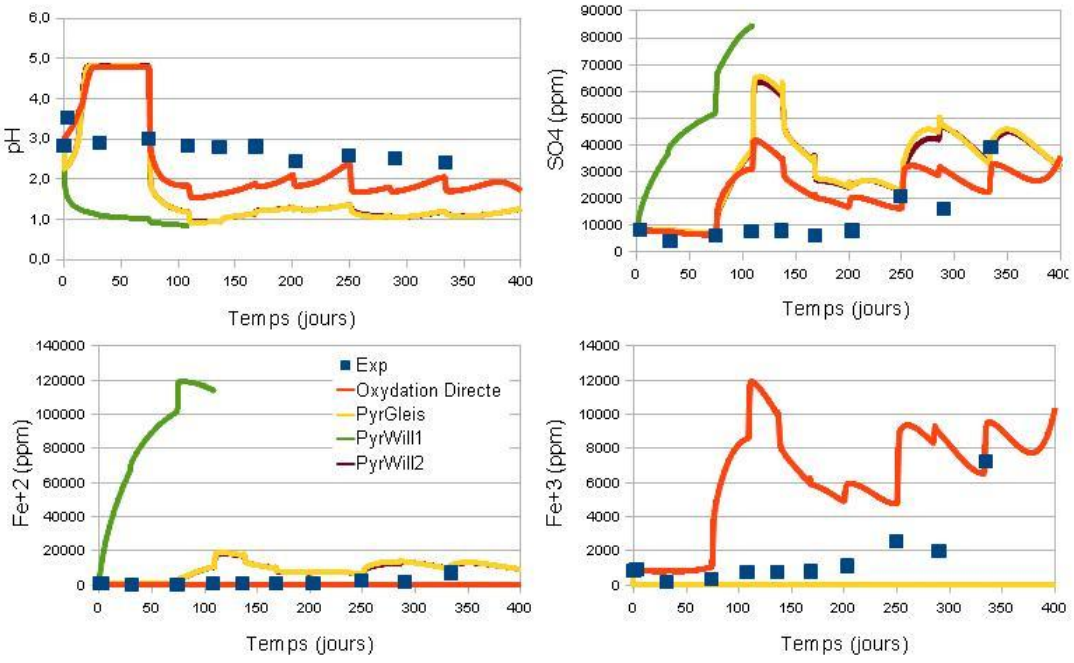


Figure A.8.3.2: Evolution du pH et des concentrations de sulfates et de fer dans la colonne MNOP au cours du temps, avec quatre modèles d'oxydation et en considérant l'oxydation du Fe(II) en Fe(III) comme étant instantanée, comparée aux résultats de laboratoire

On constate à la figure A.8.3.2 que les résultats sont les mêmes que ceux du cas précédent, excepté pour le modèle PyrWill1 qui génère des concentrations de fer plus importantes, et qui s'avère instable après 190 jours. Malgré le fait que la réaction globale soit sensée produire du Fe(III), les concentrations simulées de Fe^{3+} par les modèles d'oxydation indirecte restent très faibles, avec pratiquement tout le fer sous forme de Fe(II). On en déduit que ces ajustements n'accélèrent pas la réaction d'oxydation indirecte.

Afin d'investiguer plus avant le comportement des modèles d'oxydation indirecte, on simule ces réactions (PyrWill1, PyrWill2 et PyrGleis) pour la grande colonne MNOG. Les résultats sont présentés à la figure A.8.3.3. Contrairement au cas des petites colonnes, on obtient des résultats très différents d'un modèle à l'autre.

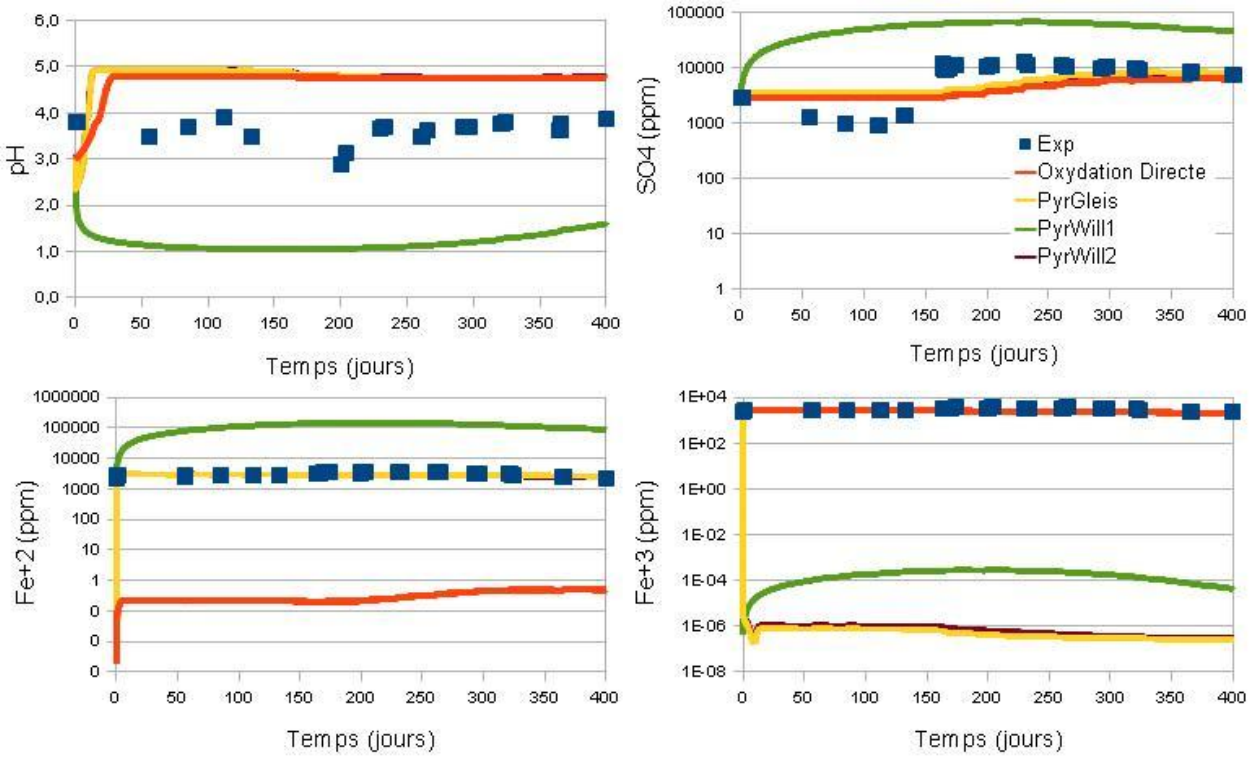


Figure A.8.3.3: Evolution du pH et des concentrations de sulfates et de fer dans la colonne MNOG au cours du temps, avec quatre modèles d'oxydation différents, comparée aux résultats expérimentaux

De façon générale, les modèles PyrGleis et PyrWill2 donnent des résultats proches l'un de l'autre, et globalement assez semblables à ceux obtenus avec le modèle d'oxydation directe (à l'exception de la spéciation du fer). Le pH reste légèrement inférieur à 5. Les concentrations en sulfates augmentent au cours du temps d'environ 5000 ppm à 8000 ppm. Les concentrations en fer sont constantes autour de 3000 ppm. Ces modèles reproduisent donc assez bien les résultats expérimentaux avec la même calibration que pour la réaction d'oxydation directe.

Le modèle PyrWill1 donne des résultats beaucoup moins représentatifs et on remarque que les tendances générales ne sont pas respectées : les concentrations en fer et sulfates augmentent au cours des premiers cycles puis diminuent graduellement (et inversement pour le pH). Ce modèle génère également beaucoup plus d'acide que les autres modèles. Dès le 2^{e} cycle, le pH est aussi faible que 1. Les concentrations en sulfates sont 10 fois plus importantes que celles obtenus avec les autres modèles et celles de fer presque 100 fois plus importantes.

Dans les simulations, l'apport en oxygène reste important (la teneur en oxygène au sommet des résidus est de 15% (phase gazeuse)). La réaction d'oxydation indirecte peut théoriquement continuer de produire du DMA même en l'absence d'oxygène (et donc même après la fin des travaux de restauration). On a réalisé les mêmes simulations que précédemment mais en considérant que la couverture est efficace comme barrière à l'oxygène et que la concentration d'oxygène au sommet des résidus n'est plus que de 1%.

Les résultats sont présentés à la figure A.8.3.4. On constate que le modèle d'oxydation directe montre un pH qui augmente lentement et des concentrations de sulfates et de fer qui diminuent progressivement de 3000 à 800 ppm et de 3000 à 200 ppm respectivement.

Les modèles PyrGleis et PyrWill2 présentent des tendances similaires, bien qu'un peu plus marquées. En d'autres termes, dans ces modèles avec oxydation indirecte, sans oxygène pour oxyder le Fe(II), la génération d'eaux acides s'arrête d'elle-même une fois tout le Fe(III) consommé. On ne constate pas ici de véritable retard dans l'amélioration des conditions, car le Fe(III) est consommé rapidement par la réaction d'oxydation indirecte.

Le modèle PyrWill1 donne des résultats similaires au cas précédent (où la pression partielle d'oxygène était 15 fois supérieure à la valeur imposée ici), comme si les concentrations d'oxygène n'avaient pas véritablement d'impact sur les résultats. L'augmentation du pH se fait un peu plus rapidement, mais les concentrations en sulfates et en fer sont semblables.

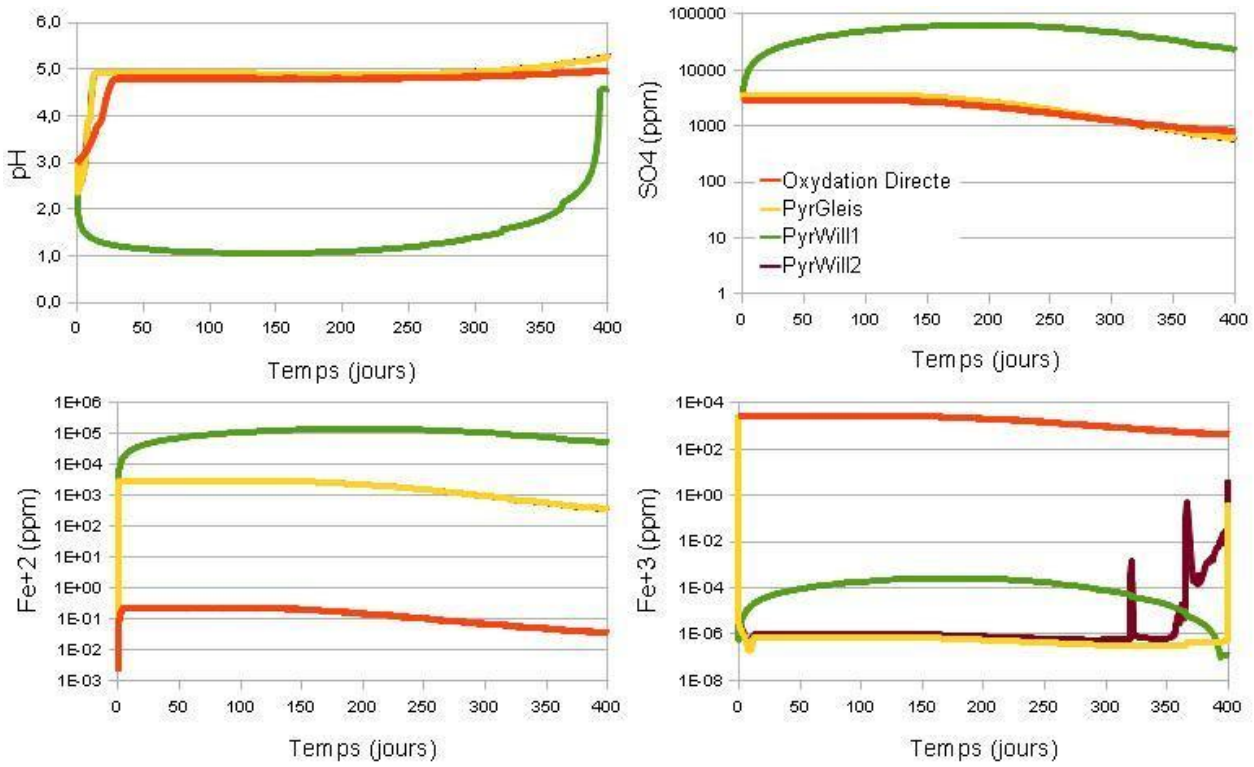
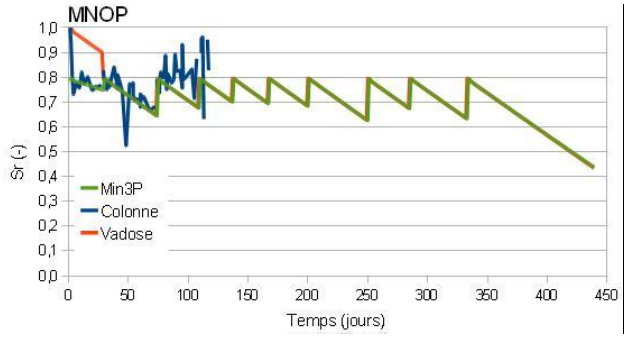
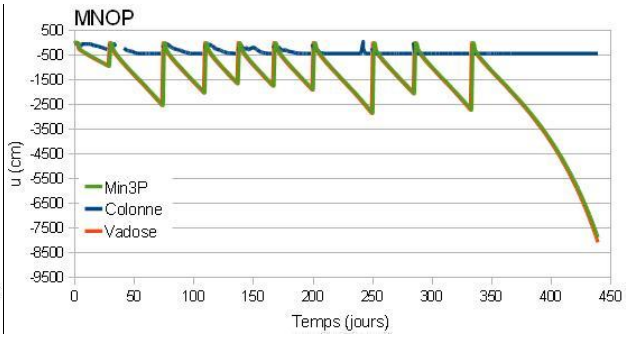


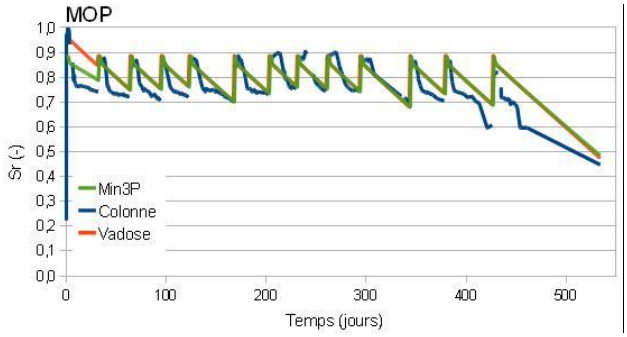
Figure A.8.3.4: Simulation de l'évolution du pH et des concentrations de sulfates et de fer dans la colonne MNOG au cours du temps, avec quatre modèles d'oxydation différents et en considérant une couverture efficace qui limite la concentration d'oxygène à l'interface résidus-couverture à 1%

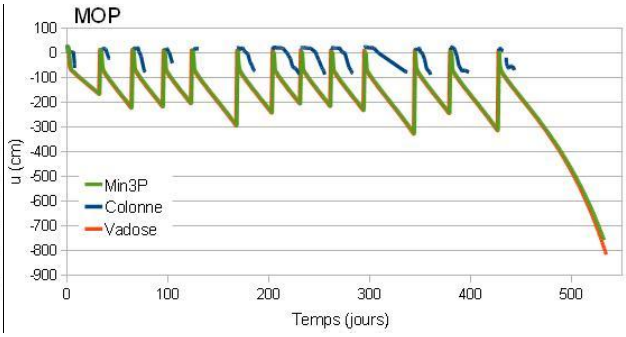
De ces résultats, on retient que le modèle d'oxydation directe simule des comportements assez similaires aux modèles d'oxydation indirecte PyrGleis et PyrWill2. Au final, l'emploi de modèle d'oxydation indirecte ne semble pas justifié ici, en particulier car il s'agit d'un effet transitoire si la couverture est efficace, et dans le cas où celle-ci n'est pas efficace, l'effet est faible et facilement intégrable au modèle d'oxydation directe (inclus dans le code Min3P). Dans la suite des travaux, le modèle d'oxydation directe seul sera conservé, calibré sur les résultats expérimentaux.

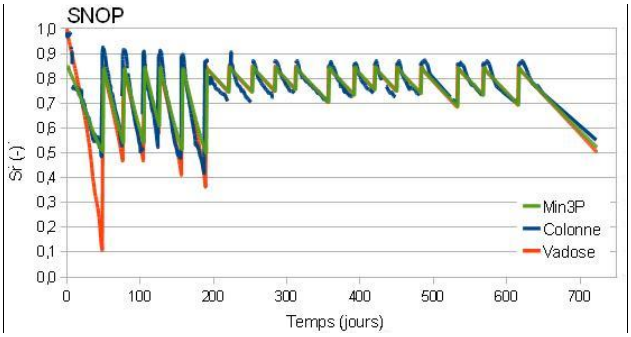
ANNEXE 8.4 – Comparaison des résultats des simulations des essais en petite colonne avec Min3P et les résultats obtenus au laboratoire et avec Vadose/W

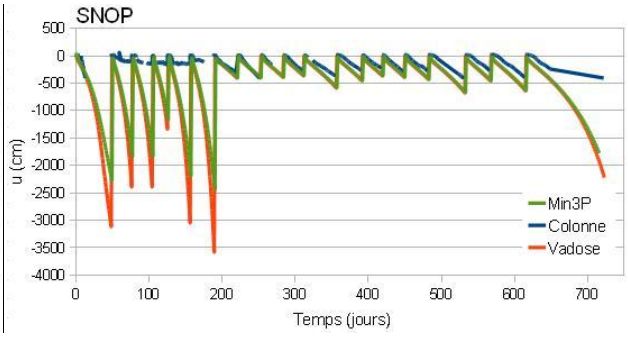


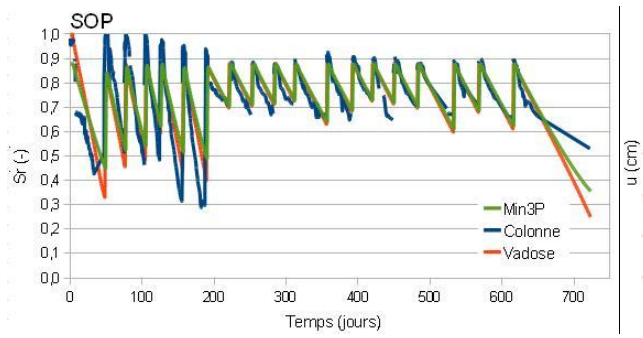


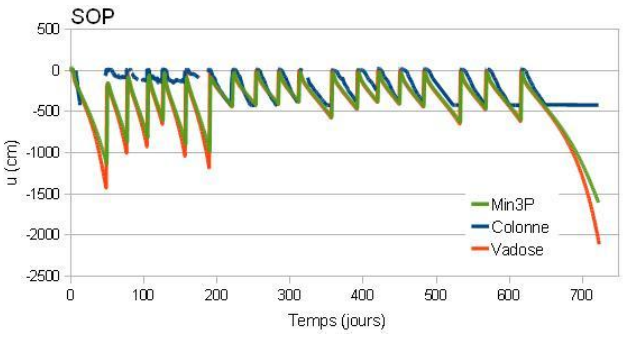












ANNEXE 8.5 – Simulation des essais dans la petite colonne MOP avec le code Min3P

Pour la calibration du modèle MOP, on procède de la même façon que pour le cas MNOP (section 8.2.3). A partir de la mesure des teneurs de chaque minéral, on détermine les paramètres de réactivité (« area » ou « scalfac ») pour reproduire les résultats de laboratoire. Les résidus MO ne contiennent pas ou très peu de minéraux sulfureux (aucune trace détectée au DRX, consommation d'oxygène non mesurable). Il s'agit donc dans ces simulations de réactions de diffusion essentiellement et de phénomène de dilution et de transport, ce qui permet de valider le modèle de transport. Les paramètres minéralogiques finaux utilisés dans les modèles MO sont présentés au tableau A.8.5.

Tableau A.8.5.1: Paramètres minéralogiques utilisés dans les simulations des essais avec les résidus MO

Minéraux	%Massique	Fraction Volumique	Area / Scalfac	radi/rads
Chlorite	20,00	$1{,}02.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Muscovite	12,00	$6{,}33.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Quartz	66,40	$3{,}83.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Anorthite	0,50	$2{,}89.10^{-3}$	$5{,}0.10^{-6}$	-
Albite	0,10	$5{,}88.10^{-4}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Gypse	1,00	$6{,}59.10^{-3}$	$2{,}0.10^{-10}$	-

Comme la pyrite n'a pas été détectée dans les résidus MO, on n'utilise pas de modèle de substitution, et on fait l'hypothèse que les concentrations initiales de certains métaux lourds mesurées dans l'eau interstitielle sont les produits de réactions antérieures.

On note dans le tableau A.8.5.1 que du gypse a été ajouté au modèle alors que l'on n'en avait pas mesuré dans les résidus MO. Le gypse n'est pas toujours détecté par les analyses DRX (s'il est amorphe) mais aux pH mesurés, on s'attend à ce que celui-ci précipite (Appelo et Postma, 1993). Comme le pH initial est relativement bas (pH~3), on ajoute aux simulations une faible quantité de gypse (1%) pour permettre sa précipitation au besoin lorsque le pH augmente.

Remarquons également dans le tableau A.8.5.1 que le paramètre « area » de certains silicates a été augmenté par rapport au cas précédent (jusqu'à six ordres de grandeur ; voir tableau 8.4). En effet, la dissolution des silicates dans le modèle est fonction du pH, qui est ici relativement élevé. Pourtant, les silicates semblent tout de même se dissoudre (voir plus bas). On a donc augmenté artificiellement la réactivité des silicates pour libérer plus facilement ces éléments.

Le paramètre « area » du gypse est plus délicat à ajuster. De trop grands écarts par rapport à la valeur de base entraînent d'importantes instabilités du code (les calculs ne se font pas). La calibration de ce paramètre très sensible est donc plus liée à la question de la convergence du modèle qu'aux résultats eux-mêmes.

La comparaison des résultats numériques avec les mesures de laboratoire est présentée à la figure A.8.5.1. On observe tout d'abord que dans l'ensemble, toutes les concentrations simulées tendent à diminuer au cours des 13 cycles de l'essai, excepté pour Ca et Si.

De façon plus détaillée, on observe dans les simulations, comme dans les essais de laboratoire, que le pH augmente au fil des cycles. Le pH initial est fixé à 3,0, mais celui-ci est ajusté immédiatement à 5,0 dans les simulations. Il augmente ensuite progressivement d'environ 0,2 par cycle pour atteindre finalement un palier autour de 6,5 à partir du cycle 8. Ces résultats sont surestimés de plus de 2 unités par rapport aux mesures de laboratoire. Néanmoins, on observe une tendance semblable dans la colonne MOP avec une augmentation du pH du même ordre de grandeur (de 3 à presque 6). Comme l'augmentation du pH proviendrait principalement du phénomène de dilution (l'eau ajouté a un pH d'environ 6,5), on en déduit que le modèle reproduit bien l'écoulement de l'eau et le transport des contaminants par advection.

Les concentrations de fer et de sulfates sont bien reproduites par le modèle. Dans le cas du fer, les concentrations diminuent progressivement au cours des cycles, passant de 150 ppm initialement, à moins de 5 ppm en moins de 6 cycles. Cette décroissance est plus rapide au laboratoire. La précipitation du fer (sous forme d'oxy-hydroxydes notamment) dans les colonnes pourrait entraîner la rétention de celui-ci dans les résidus. Pour des raisons de stabilité numérique, la ferrihydrite n'a cependant pas pu être ajoutée au modèle, mais si on place les valeurs de pH et de Eh simulées par le code (voir diagramme Eh-pH à la figure 8.3), on constate que l'on se trouve dans la zone de prédominance du $Fe(OH)_{3(s)}$. Le fer devrait donc précipiter.

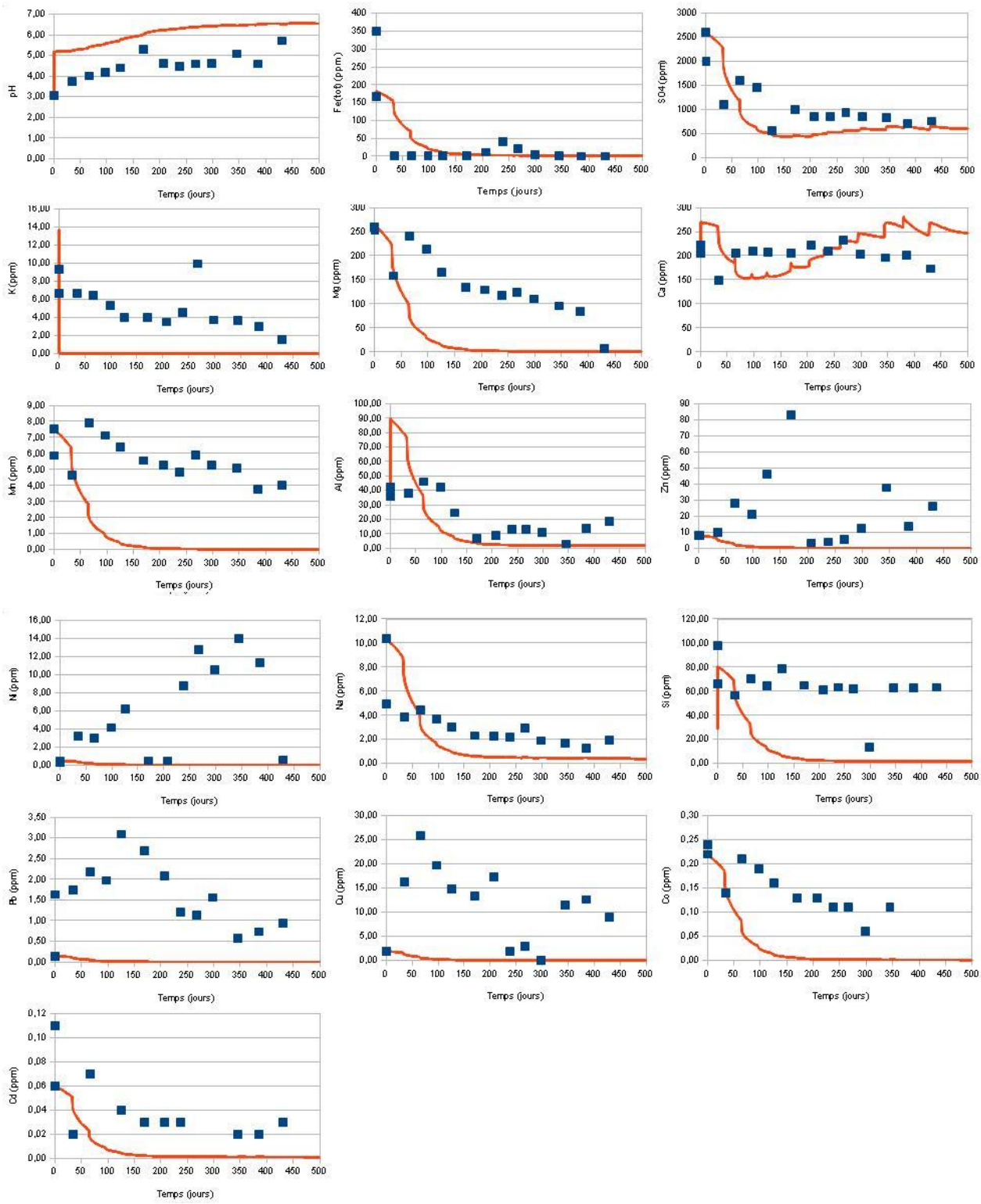


Figure A.8.5.1: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la petite colonne MOP au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation)

Les concentrations de sulfates suivent une tendance similaire. Initialement autour de 2500 ppm, elles diminuent au cours des 5 premiers cycles pour se stabiliser autour de 500 ppm. Cette diminution se fait à peu près à la même vitesse dans les modèles que dans les essais. Le palier, qui se maintient jusqu'à la fin de l'essai (également observé dans les essais), serait principalement dû au gypse qui se dissout progressivement au cours du temps. Après un certain temps, on pourrait donc s'attendre à voir les concentrations de sulfates diminuer. Il est également possible expérimentalement que de faibles quantités de pyrite demeurent présentes dans l'échantillon (le DRX mesure la minéralogie de petits échantillons et a une précision limitée).

L'influence du gypse est également confirmée par les concentrations de Ca qui suivent les mêmes tendances que celles des sulfates, à savoir une diminution au cours des 4 premiers cycles (de 250 à 150 ppm), avant une légère augmentation à 250 ppm vers la fin de l'essai. Cette augmentation va un peu à l'encontre des observations de laboratoire, où les concentrations semblent plutôt diminuer, mais les ordres de grandeurs sont semblables.

Pour les autres éléments, la tendance générale est la même, soit une diminution rapide des concentrations (plus rapide dans les simulations que pour les mesures dans les petites colonnes). En général, la plupart des éléments voient leurs concentrations diminuer jusqu'à 0 ppm, mais certains, comme Al, Na ou Si, semblent atteindre un pallier non nul. Ceci pourrait s'expliquer par la dilution de certains silicates dans des conditions proches de la neutralité. Ce phénomène ne semble pas bien reproduit par le code (pour les conditions simulées ici).

Les concentrations de certains éléments orphelins présentent une brève remontée sur quelques cycles au début des essais. Peut être demeurait-il une petite fraction de pyrite dans les résidus qui a produit une augmentation de la concentration de ces éléments. La pyrite étant présente en faible quantité, la libération de fer et de sulfates n'a pas eu d'impact significatif sur les concentrations de ces éléments, mais a affecté les autres métaux (dont les concentrations ne dépassent pas quelques ppm). Peut-être aussi ces éléments étaient-ils présents sous forme précipitée et se sont dissouts avec les changements des conditions géochimiques dans le milieu.

Cette simulation d'un cas "non réactif" (ou très peu réactif) montre que le code Min3P permet de reproduire assez bien les phénomènes de dilution et de transport des contaminants par advection/dispersion. On a également pu constater que l'ajout de précipités secondaires (comme le gypse ici) en conditions circo-neutrales, déstabilisaient le modèle.

ANNEXE 8.6 – Simulation des essais dans la petite colonne SOP avec le code Min3P

Le cas de la colonne avec les résidus SO ressemble beaucoup à celui de SNOP. Ici aussi les résidus sont réactifs, mais le lixiviat dans la colonne demeure globalement neutre ; rappelons que les résidus SOP contiennent plus de pyrite (4%) que SNO. Comme précédemment, on a ajouté de la dolomite au modèle (3%). Ce choix semble justifié par les concentrations très importantes de Mg mesurées et par les bons résultats de cette approche dans le cas de SNOP. Les analyses LECO sur les résidus SO (voir section 4.1.6.1) ont donné des teneurs en carbone de l'ordre de 0,4%. En faisant l'hypothèse que tout le carbone provient des carbonates, on estime la quantité de dolomite dans les résidus SO à environ 3%. L'ajout de dolomite aux simulations semble donc justifié. Du gypse (non détecté) a également été ajouté au modèle.

Les paramètres minéralogiques finaux utilisés dans les modèles SNO sont présentés au tableau A.8.6.1. La comparaison des résultats numériques avec les mesures de laboratoire est présentée à la figure A.8.6.1.

Tableau A.8.6.1: Paramètres minéralogiques utilisés dans les modèles SO.

Minéraux	%Massique	Fraction Volumique	Area / Scalfac	radi/rads
Chlorite	6,50	$3{,}60.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-12}$	-
Muscovite	15,00	$8{,}59.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Quartz	67,50	$4{,}23.10^{-1}$	$1{,}0.10^{-14}$	-
Anorthite	1,00	$6{,}26.10^{-3}$	$5{,}0.10^{-10}$	-
Albite	2,00	$1{,}28.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-12}$	-
Dolomite	3,00	$1{,}75.10^{-2}$	$1{,}0.10^{-6}$	-
Pyrite	4,00	$1{,}32.10^{-2}$	$5{,}0.10^{-7}$	$3{,}63.10^{-6}/3{,}60.10^{-6}$
Gypse	1,00	$7{,}16.10^{-3}$	$1{,}0.10^{-10}$	-

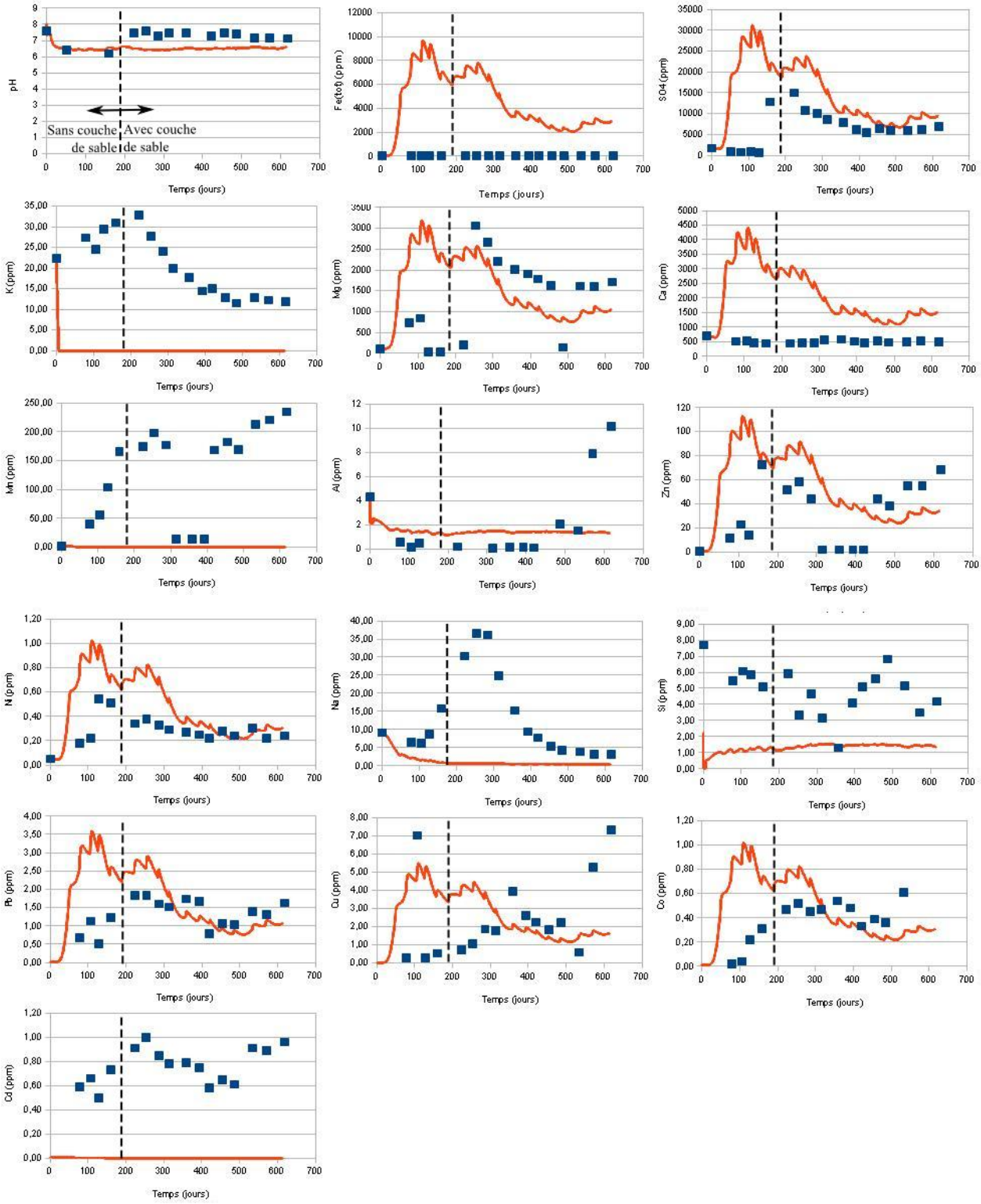


Figure A.8.6.1: Variations du pH et des concentrations de plusieurs métaux et autres éléments dans la petite colonne SOP au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation)

On observe à la figure A.8.6.1 une forte ressemblance avec le cas SNOP. Les valeurs du pH sont relativement bien reproduites par les simulations. On note une légère sous-estimation de celui-ci, le modèle donnant des valeurs autour de 6,7, là où l'on a mesuré des pH de 7,3 en moyenne.

Comme c'est le cas pour SNOP, les concentrations de fer ne sont pas correctement représentées. Le fer précipite normalement sous forme d'oxydes ou d'oxy-hydroxydes, mais ces formations secondaires n'ont pas pu être reproduites numériquement en raison des limitations du code (la ferrihydrite ou d'autres précipités du fer n'ont pas pu être intégrés, sous peine de voir les calculs diverger). Par conséquent, les concentrations de Fe(III) estimées par le modèle sont beaucoup plus importantes que les valeurs mesurées, lesquelles demeurent autour de 0 ppm. La plage de valeurs des pH et des Eh simulées est également présentée sur le diagramme Eh-pH du fer à la figure 8.7. Ceci indique que l'eau interstitielle se situe dans la zone de prédominance de $Fe(OH)_{3(s)}$ et que le fer devrait donc essentiellement se trouver sous forme précipitée dans la colonne SOP.

Les concentrations simulées de sulfates, Mg et Ca suivent les mêmes tendances que les concentrations de Fe ou de sulfates. Une augmentation en début d'essai, plus rapide et plus importante que celle observée expérimentalement, puis une diminution avant une stabilisation autour d'un palier à partir du cycle 7. Comme précédemment, on peut supposer que les différences observées au cours des premiers cycles correspondent à une phase d'équilibrage des propriétés chimiques. Par la suite, les simulations surestiment légèrement les concentrations de sulfates (7000 ppm contre 5000 ppm au pire) et de Ca (1000, voire 1500 ppm contre 500 ppm mesurés), sans doute à cause d'un paramètre d'activité (« area ») trop faible du gypse. Néanmoins, la tendance générale est respectée. On observe aussi la même tendance à l'augmentation des concentrations de sulfates en fin d'essai. Le modèle numérique sous-estime par contre les concentrations de Mg (1000 ppm contre 1700 ppm), mais là encore, les tendances générales sont bien reproduites.

On constate que Min3P ne simule pas très bien la dissolution des silicates : les concentrations de K, Al, ou Na diminuent rapidement jusqu'à 0 ppm, alors qu'expérimentalement, les concentrations résiduelles sont autour de 10 ppm, 2 ppm et 5 ppm respectivement. Le modèle ne reproduit pas du tout le pic de concentration observé entre les cycles 4 et 10.

Les concentrations des éléments orphelins inclus dans le modèle de substitution (Zn, Pb, Co, Ni et Cu) sont assez bien reproduites. On retrouve les mêmes tendances et les mêmes ordres de grandeur. Dans certains cas, le modèle n'est pas en mesure de reproduire parfaitement le comportement observé dans les colonnes ; par exemple, on observe au cours des cycles 9 à 12 des concentrations de Zn très faibles, alors que le modèle donne des valeurs beaucoup plus élevées. Il pourrait s'agir d'erreurs de mesure ou de précipitations secondaires dans la colonne. On observe de façon nette sur ces éléments une tendance à l'augmentation sur les derniers cycles (comme pour les sulfates). Il semblerait donc que le milieu tende vers une accélération de l'oxydation. A l'inverse, les métaux non inclus dans le modèle de substitution (Mn ou Cd) ne sont pas bien reproduits par le modèle : leurs concentrations baissent rapidement jusqu'à 0 ppm, alors que les mesures indiquent plutôt une augmentation.

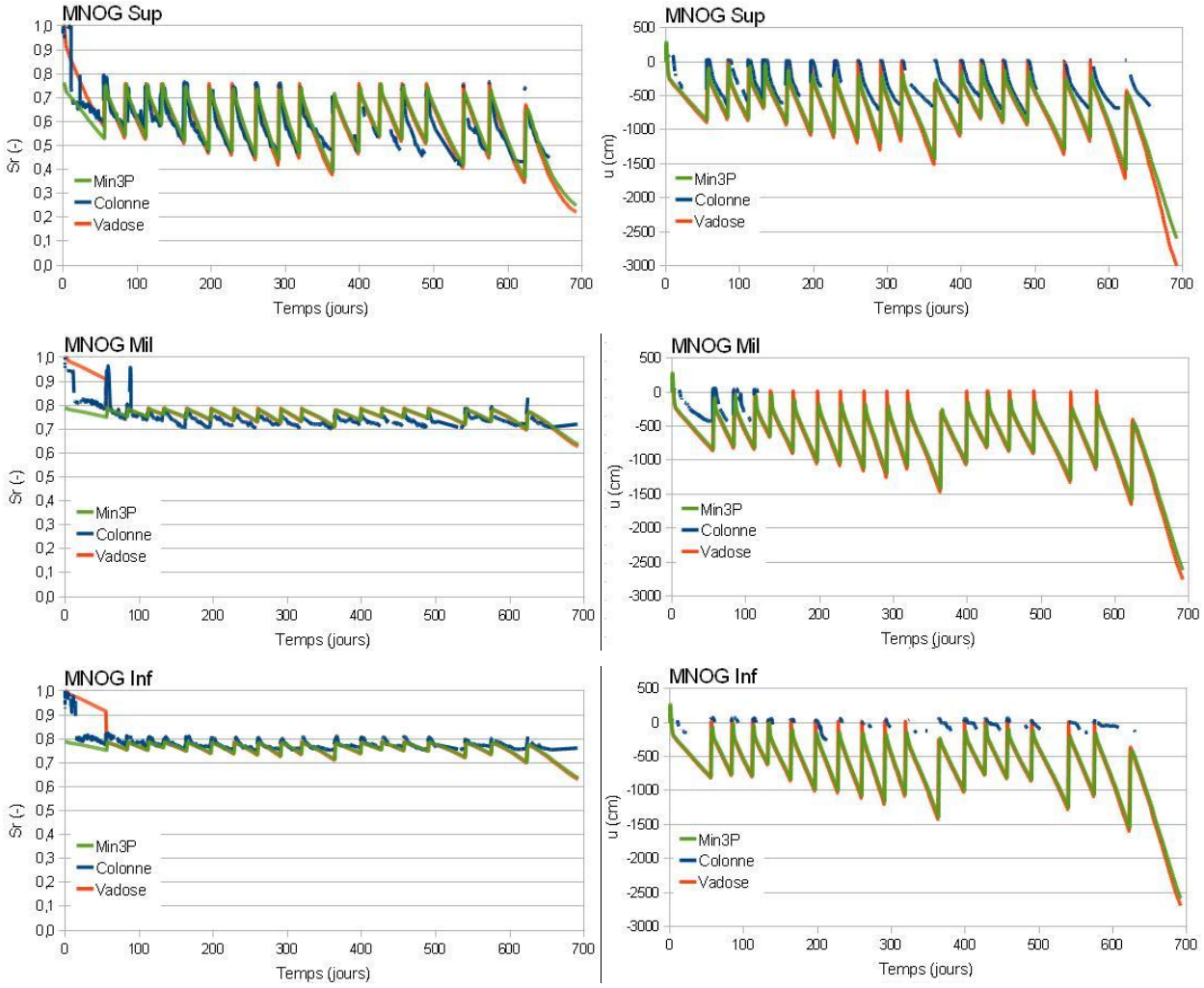
L'équation (ajustée) employée pour modéliser la génération des principaux métaux est la suivante :

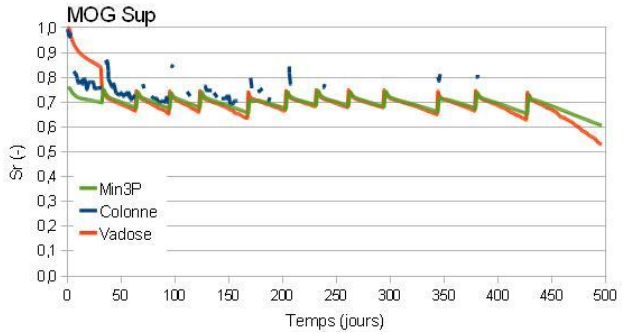
$$FeS_2 + H_2O + 3{,}5O_2 \rightarrow Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 2H^+ + 0{,}0001Pb^{2+} + 0{,}01Zn^{2+} + 0{,}0001Co^{2+} + 0.0001Ni^{2+} + 0{,}0005Cu^{2+} \quad (8.3)$$

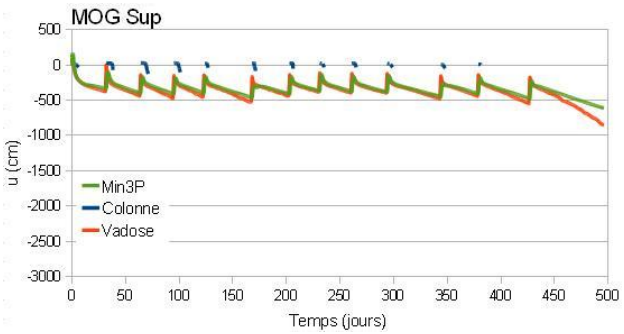
En résumé, les simulations du comportement géochimique dans la petite colonne SOP au moyen du code Min3P permet d'affirmer que :

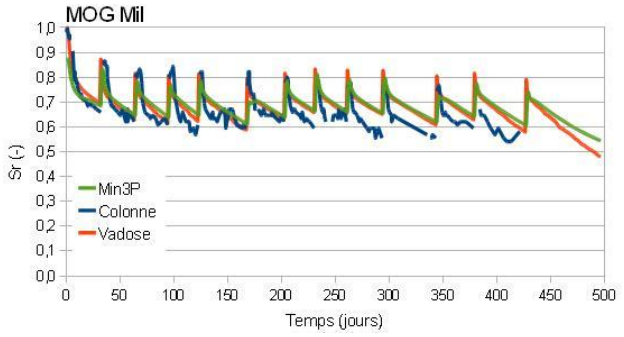
- les résidus SO semblent contenir de la dolomite (environ 3%).
- le code Min3P gère relativement mal la question des précipités secondaires à des pH proches de la neutralité (notamment la ferrihydrite).
- le modèle de substitution appliqué aux résidus SO donne de bons résultats.

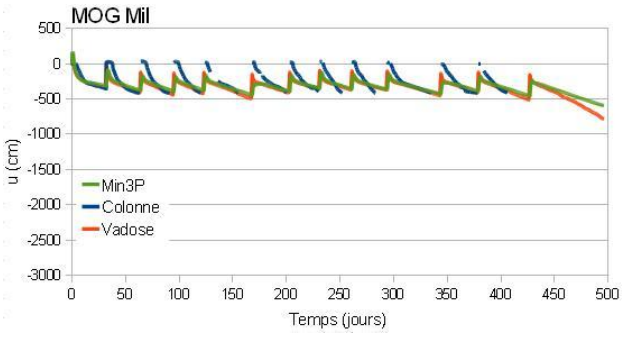
ANNEXE 8.7 – Comparaison des résultats des simulations des essais en grande colonne avec Min3P et les résultats obtenus au laboratoire et avec Vadose/W

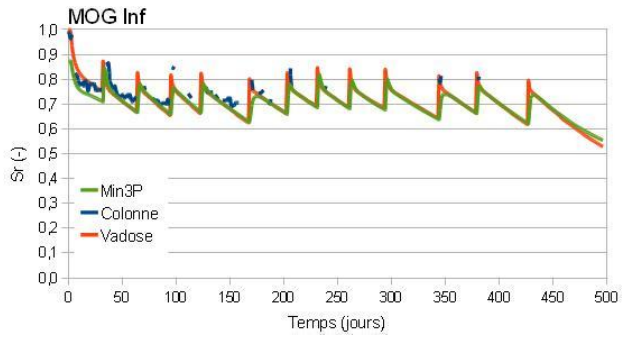


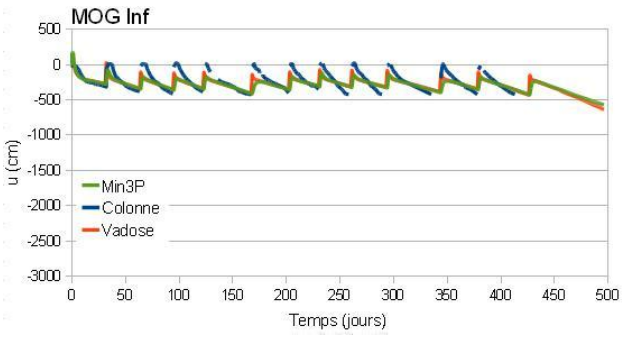

MOG Sup
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

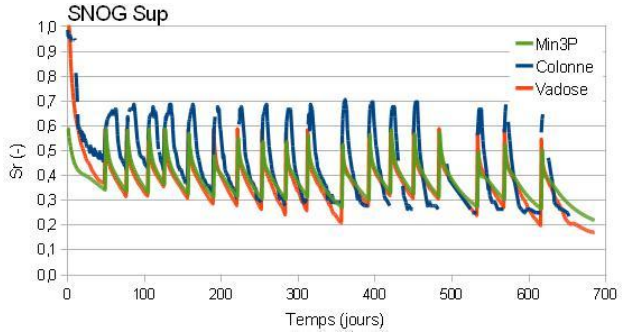

MOG Sup
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

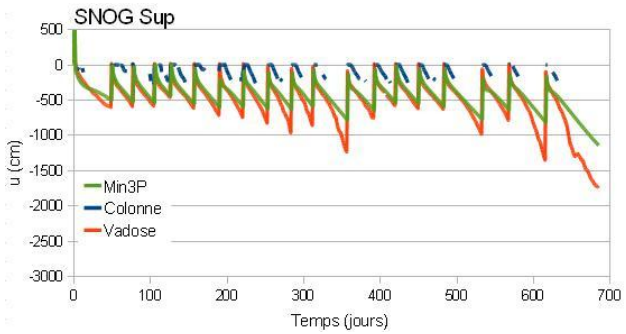

MOG Mil
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

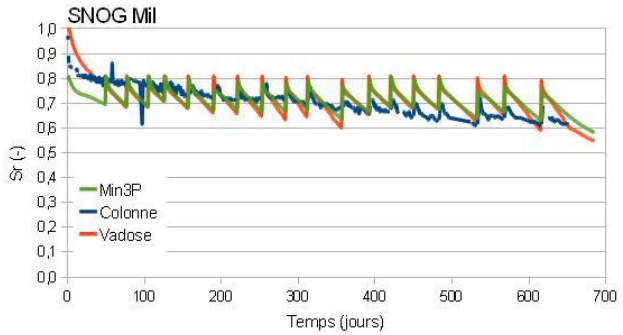

MOG Mil
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

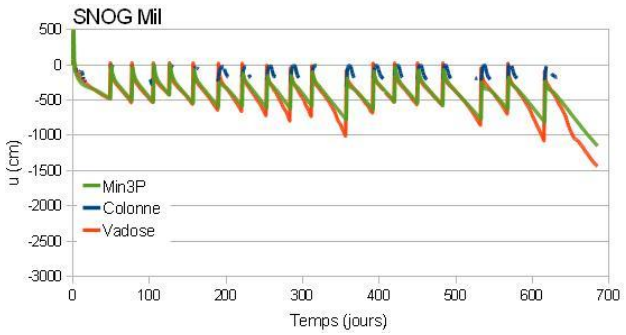

MOG Inf
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

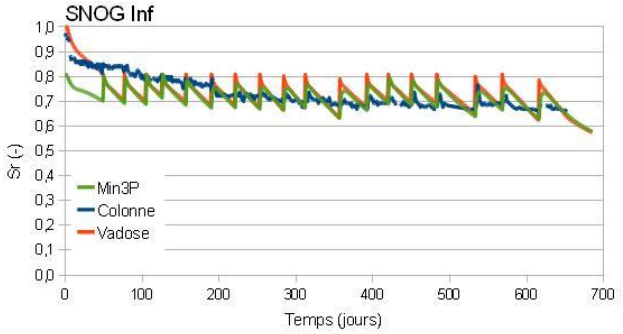

MOG Inf
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

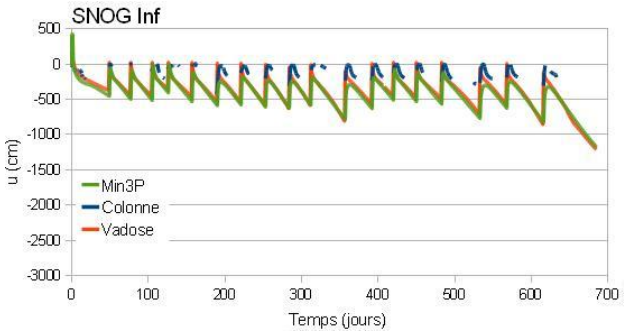

SNOG Sup
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

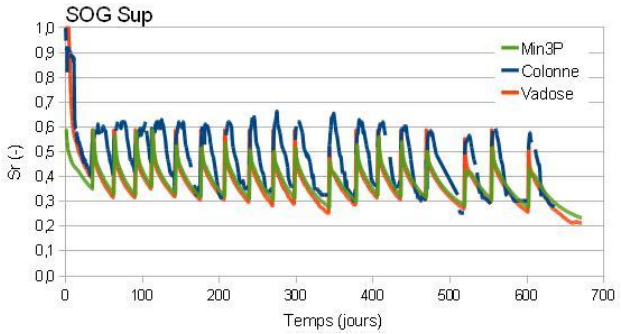

SNOG Sup
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

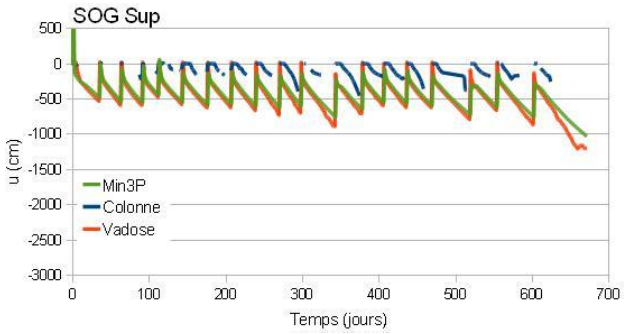

SNOG Mil
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

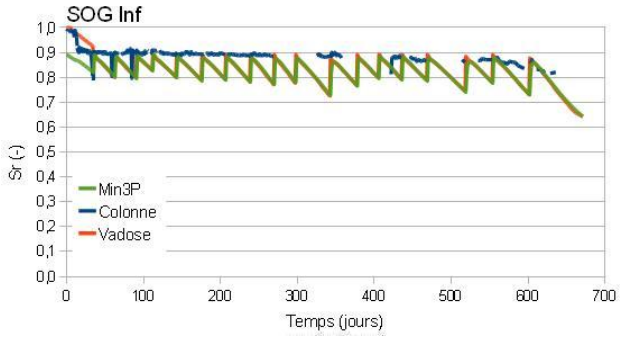

SNOG Mil
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

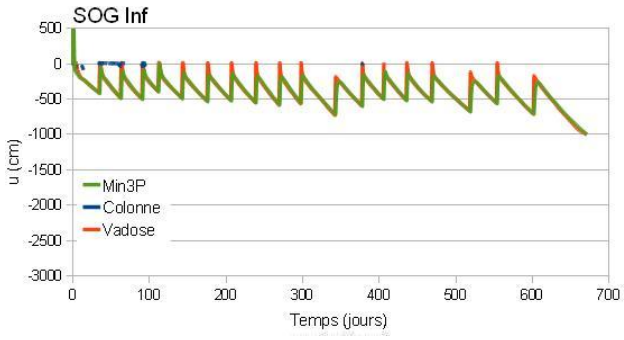

SNOG Inf
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

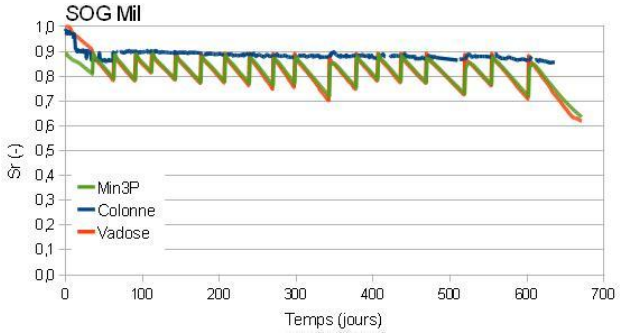

SNOG Inf
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

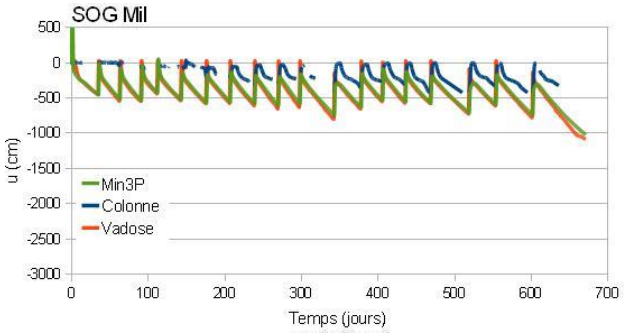

SOG Sup
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose


SOG Sup
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose


SOG Inf
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose


SOG Inf
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose


SOG Mil
Sr (-)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose


SOG Mil
u (cm)
Temps (jours)
Min3P
Colonne
Vadose

ANNEXE 8.8 – Simulation des essais dans la colonne MOG avec le code Min3P

Le modèle MOG est quelque peu différent des autres modèles de grandes colonnes. Comme les résidus ne contiennent pas de minéraux sulfureux détectables, il est possible de simuler l'essai en colonne en une seule et même analyse. On considère donc une seule étape de modélisation, avec résidus et couverture. La qualité de l'eau d'infiltration est la même que celle utilisée au sommet des petites colonnes. La pression partielle d'oxygène au sommet du modèle est égale à 0,21 (= 276 g/m^3).

Les paramètres minéralogiques des résidus Goldex utilisés dans les simulations de la colonne MOG sont identiques à ceux décrits plus hauts (voir tableau 8.8) et ceux des résidus MO sont les mêmes que dans la colonne MOP (tableau 8.5).

Les résultats sont présentés à la figure A.8.8.1. On constate tout d'abord que le modèle surestime le pH de plus d'une unité ; la valeur simulée, après s'être maintenue autour de 5, augmente au cours des deux derniers cycles. Dans les expériences, il reste plus faible (légèrement au-dessus de 4), et constant jusqu'à la fin de l'essai. On suppose ici que de la pyrite résiduelle doit être présente dans les résidus MO et qu'elle n'aura pas été détectée au DRX. La quantité de résidus utilisée dans la colonne MOG est beaucoup plus importante que dans la colonne MOP, ce qui explique que toute la pyrite n'aura pas forcément pu être consommée à la fin de l'essai. Cette hypothèse semble confirmée par les concentrations de sulfates qui se maintiennent autour de 2500 ppm, alors qu'elles diminuent à partir du cycle 14 dans les simulations (elles passent sous 1500 ppm à la fin des calculs). Il y aurait donc une oxydation dans les résidus MO.

Le modèle Min3P surestime les concentrations de fer. En raison de l'oxydation qui semble se poursuivre, les concentrations réelles déjà libérées pourraient être plus importantes que celles mesurées, avec une partie qui demeure dans les résidus sous forme précipitée. Dans le modèle, les concentrations diminuent au gré des ajouts d'eau et de la dilution.

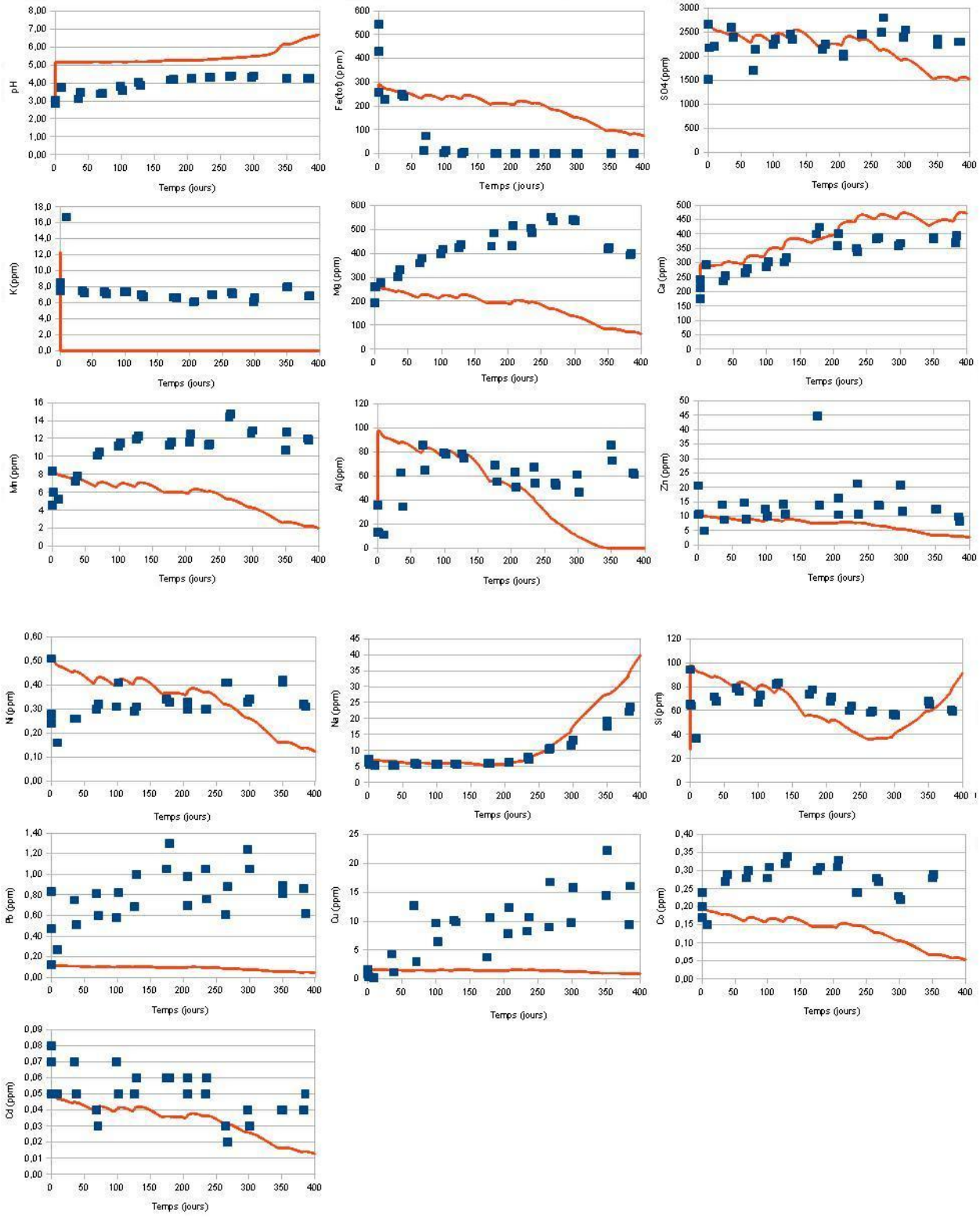


Figure A.8.8.1: Variations du pH et des concentrations de plusieurs éléments dans la colonne MOG au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation)

Le modèle reproduit assez bien les concentrations de Ca. Les tendances et amplitudes sont les mêmes que celles mesurées au laboratoire, avec une augmentation de 200 à 400 ppm au cours des 6 premiers cycles, puis une stabilisation autour de cette valeur. Le calcium provient essentiellement de la dissolution de l'anorthite et du gypse. La fraction de Ca provenant de la dissolution de la calcite et de la dolomite dans la couverture de résidus Goldex est faible (concentrations deux ordres de grandeur plus faibles que celles mesurées à la base des colonnes).

Les concentrations de Na sont bien reproduites par la simulation. Ainsi, les concentrations initiales autour de 5 ppm augmentent à partir du cycle 7 jusqu'à 40 ppm environ (alors qu'on mesure près de 25 ppm à la fin des essais de laboratoire).

Ce modèle, qui prend en compte directement la couverture, est capable de bien reproduire les écoulements. Contrairement au cas MNOG, le front de mouillage n'est plus en avance, mais en phase avec les résultats des essais.

La libération des silicates est, comme dans les autres modèles, assez mal reproduite. Les concentrations simulées de K et Mg tendent rapidement vers 0 ppm alors que l'on mesure des concentrations non nulles à peu près constantes dans les essais. Les concentrations de Si sont bien représentées par le modèle numérique, avec une diminution progressive des concentrations au cours de l'essai puis une augmentation sur les derniers cycles.

Les éléments orphelins (Zn, Ni, Pb, Cu, Co, Cd, Mn) voient leurs concentrations baisser graduellement dans les simulations, alors qu'en réalité, on mesure des concentrations à peu près constantes. C'est un autre indice de la présence de pyrite (ou d'autres sulfures) dans le milieu.

Au vu des résultats présentés ci-dessus, on peut donc déduire que :

- une petite quantité de pyrite serait encore présente dans les résidus MO, bien qu'elle n'ait pas été détectée au DRX.
- le code Min3P est capable de bien reproduire les écoulements d'eau et les effets de mélange des éléments solubles non réactifs.

ANNEXE 8.9 – Simulation des essais dans la colonne SOG avec le code Min3P

Les paramètres minéralogiques de la moraine utilisée dans la simulation SOG sont présentés au tableau 8.10. La concentration d'oxygène imposée est de 16%, ce qui est très proche des 15% mesurés dans les essais en colonnes. Les paramètres des résidus SO sont présentés dans le tableau 8.7.

Les résultats de modélisation sur la colonne SOG sont présentés à la figure A.8.9.1. Ils sont similaires au cas SNOG. Le pH simulé est stable (autour de 6,8) tout au long de l'essai, ce qui reproduit bien les résultats de laboratoire pour lesquels on a mesuré des pH compris entre 6,5 et 7,8.

Les concentrations de sulfates, Mg et Ca modélisées sont proches des valeurs expérimentales. Contrairement au cas SNOG, on ne note pas de diminution des concentrations mesurées de Mg, ce qui laisse supposer que les résidus SO contiennent d'avantage de dolomite que les résidus SNO.

La dissolution des silicates n'est pas bien prise en compte et les concentrations simulées de K, Al ou Si sont rapidement ramenées à 0 ppm alors qu'on mesure des valeurs de 20 ppm, 2 ppm et 8 ppm respectivement.

Le cas de Na est intéressant dans la mesure où l'on observe la même tendance générale entre les résultats modélisés et mesurés, mais avec un décalage de quelques cycles. Les concentrations initiales sont relativement constantes avant de diminuer vers des valeurs très faibles. La diminution débute dans les simulations au cycle 4, et au cycle 8 dans les essais. Cette avance est liée au fait qu'on impose la condition frontière d’infiltration d’eau directement au sommet des résidus plutôt qu'au sommet d'une couverture. On en déduit que l'eau ajoutée au sommet de la grande colonne SOG met environ 4 cycles à traverser la couverture de moraine (voir aussi 8.4.3).

Le comportement des éléments de substitution Ni, Pb et Co est bien reproduit, mais les concentrations de Zn et Cu sont largement surestimées (environ 4x).

On peut donc conclure que le modèle Min3P permet de reproduire correctement les principaux aspects du comportement géochimique dans la colonne SOG.

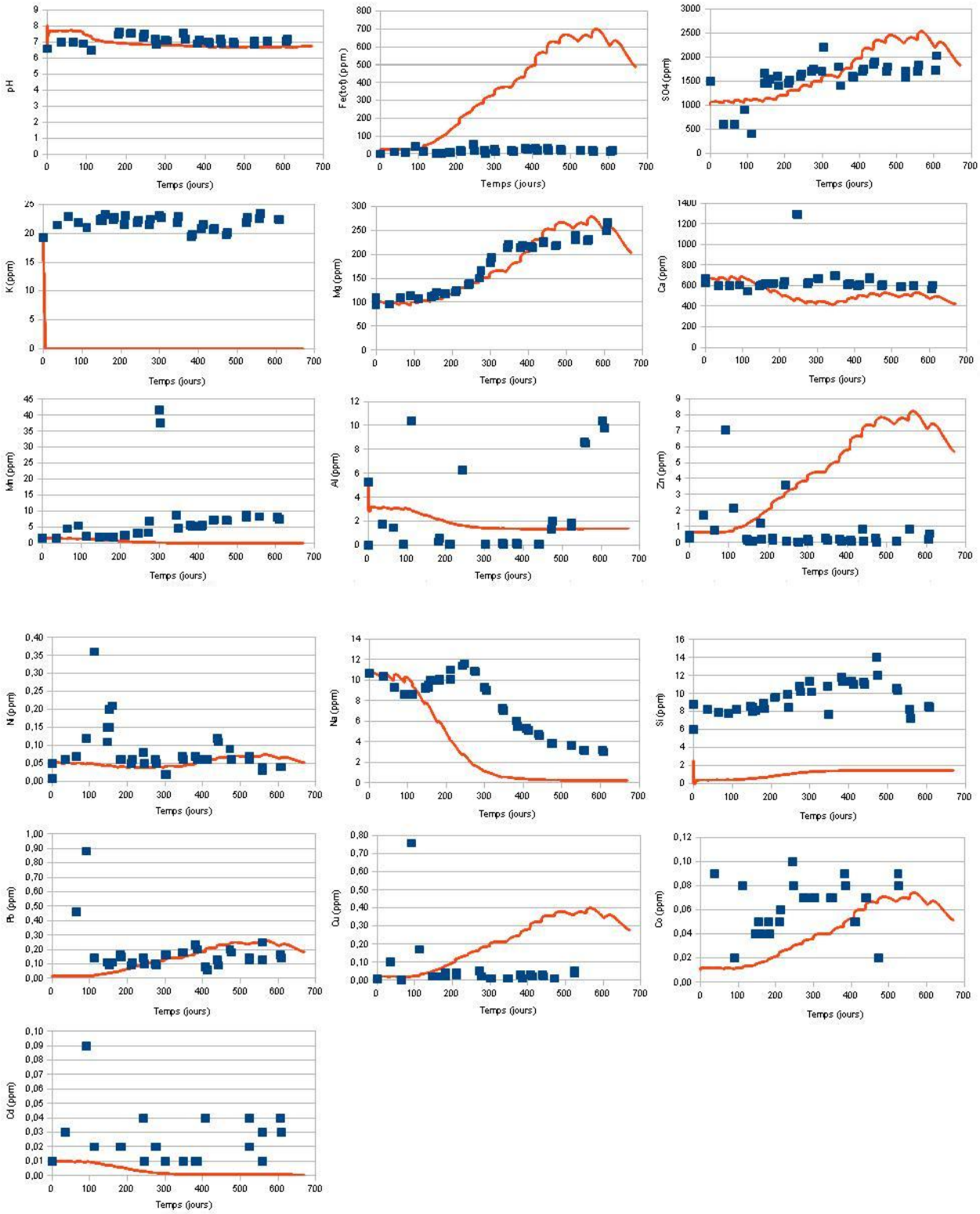


Figure A.8.9.1: Variations du pH et des concentrations de plusieurs éléments dans la colonne SOG au cours des cycles de mouillage-drainage (points : mesures ; ligne : simulation)

ANNEXE 8.10 – Analyse de sensibilité et étude paramétrique des simulations avec Min3P

L'analyse de sensibilité vise à compléter l'évaluation de l'influence du type de matériaux et des conditions hydrogéologiques (fait dans le chapitre 7) en mettant l'emphase sur l'influence de certaines caractéristiques des simulations, tels la taille du maillage, les conditions limites d'entrée (infiltration) et l'épaisseur de la couverture

On se base ici sur quelques modèles types, généralement celui de la colonne MNOG. Quelques exemples parmi les plus représentatifs seront comparés.

A.8.10.1 Maillage

On analyse le modèle de la colonne MNOG pour lequel on compare les résultats simulés avec Min3P obtenus avec un maillage comportant des éléments de 5 cm de hauteur (modèle de base), de 10 cm et de 1 cm. Quelques résultats types sont présentés à la figure A.8.10.1.

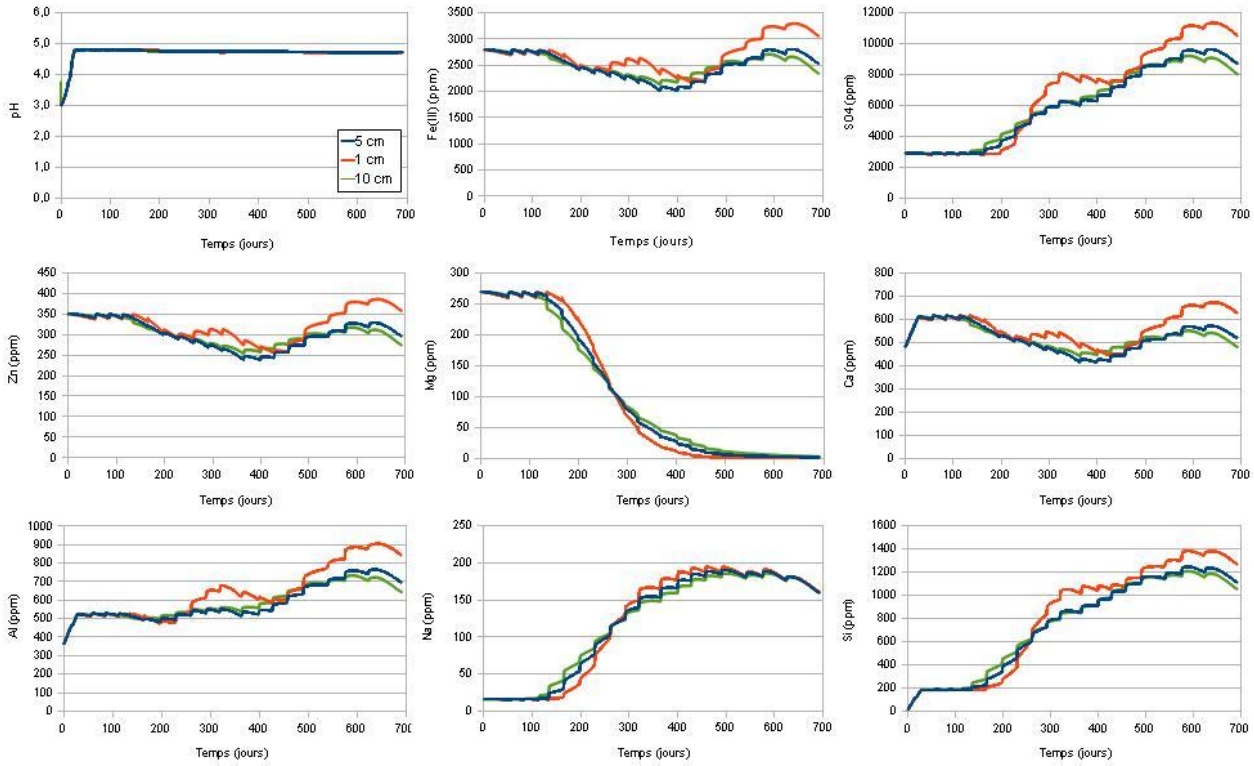


Figure A.8.10.1: Variations du pH et des concentrations de divers éléments pour des simulations menées avec Min3P avec des éléments d'une hauteur de 1 cm, 5 cm et 10 cm

On constate sur la figure A.8.10.1 que le choix du maillage peut avoir une certaine influence sur les résultats, mais que celle-ci est généralement limitée. On voit ainsi que les tendances et les valeurs des concentrations simulées sont très semblables pour les maillages de 1 cm, 5 cm ou 10 cm. Un maillage plus fin semble cependant induire un léger retard dans l'écoulement (environ 1 cycle) et augmenter sensiblement la réactivité des minéraux (dissolution et oxydation).

Compte tenu des faibles différences obtenues, et au regard des autres incertitudes, ces résultats justifient l'utilisation d'un maillage de 10 cm de hauteur pour les modèles de terrain, ce qui permet de diviser par deux le nombre d'éléments, et ainsi d'augmenter la vitesse des calculs (sans trop affecter la précision des résultats).

A.8.10.2 Simulations en une ou deux étapes

La méthode employée pour simuler le comportement géochimique dans les grandes colonnes lorsque les résidus et les matériaux de la couverture ont une minéralogie très différente (en particulier lorsque les résidus contiennent des sulfures) a été décrite en détail plus haut. On réalise dans ce cas deux étapes de simulation : la première pour simuler l'écoulement et la chimie de l'eau interstitielle jusqu'à l'interface, avec les matériaux de la couverture sur toute la hauteur, et la seconde uniquement constitué de résidus réactifs pour simuler leur comportement géochimique propre.

Il a déjà été constaté que le fait d'appliquer directement la condition frontière supérieure au sommet des résidus (sans couverture) plutôt qu'au sommet de la couverture entraînait un passage plus rapide du front de mouillage. Afin d'évaluer si le décalage dans les concentrations est bien lié à ce phénomène, la colonne MOG est ici simulée selon cette approche en deux étapes.

Quelques exemples de résultats sont présentés à la figure A.8.10.2. On constate que les concentrations obtenues dans les deux simulations sont similaires, tant dans leurs amplitudes que leurs tendances, mais que les courbes sont décalées dans le temps. A valeurs égales, le temps de retard de la simulation à deux étapes (deux couches) semble être d'environ 2 à 3 cycles. On en déduit donc que le temps que met le front de mouillage pour traverser la couverture de résidus Goldex dans la colonne MOG est d'environ 3 cycles.

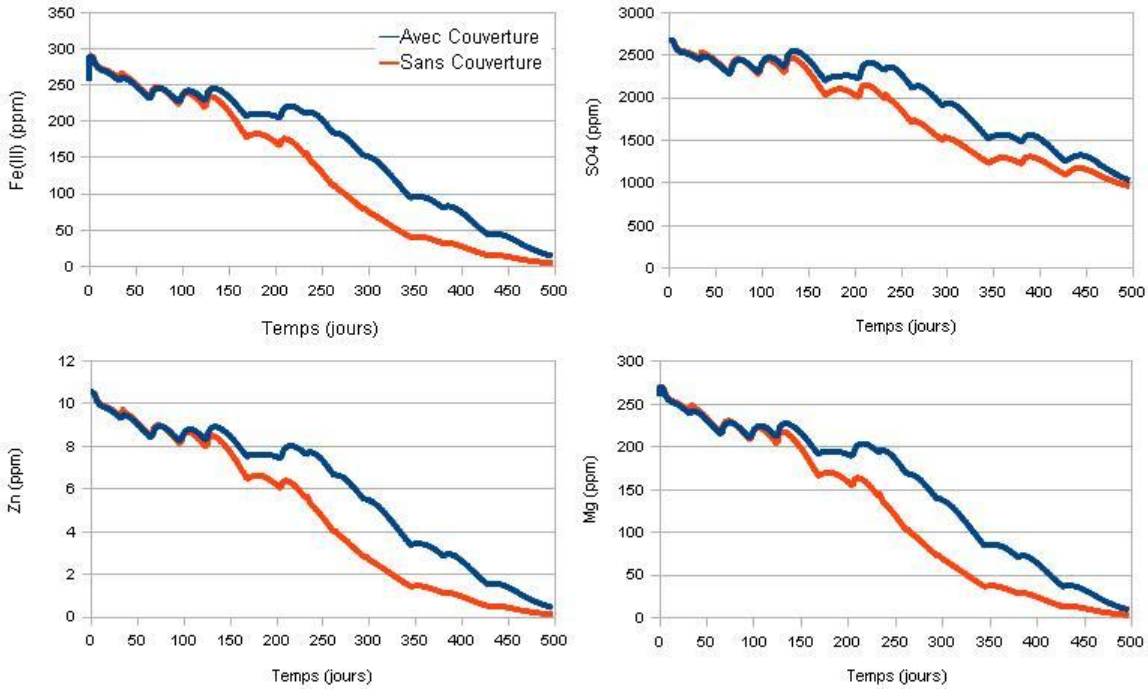


Figure A.8.10.2: Concentrations en fer, sulfates, zinc et magnésium à la base de la colonne MOG selon que la simulation est réalisée en une étape (résidus et couverture) ou en deux étapes (voir détails dans le texte)

A.8.9.3 Hystérésis

Dans les simulations, un modèle de la CRE avec hystérésis a été employé pour mieux simuler le comportement des matériaux. Le code Min3P été modifié pour prendre en compte ce phénomène (voir section 8.1.1 et annexe 8.1). Afin d'évaluer l'influence de l'hystérésis sur les résultats des modèles géochimiques, on reprend le modèle MNOG, tel que décrit plus haut, avec une satiation maximale θ_{sat} fixée à 1 (en d'autres termes, les résidus Manitou se resaturent complètement à chaque cycle de mouillage). Les résultats sont présentés à la figure A.8.10.3. On y constate l'importance d'inclure le phénomène d'hystérésis. Lorsque celui-ci n'est pas pris en compte, le degré de saturation S_r est plus élevé et l'oxydation des résidus est moins importante. Les résultats indiquent que la progression de l'oxygène est, dans ce cas, limitée aux premiers centimètres des résidus car les résidus sont beaucoup plus saturés. Tous les éléments liés à l'oxydation de la pyrite (comme le fer, les sulfates ou le zinc) voient leurs concentrations diminuer (pratiquement jusqu'à 0 ppm). Dans les essais, on a constaté une augmentation de ces concentrations. Les autres

éléments, provenant notamment de la dissolution de l'albite dans la couverture de résidus Goldex, sont dilués au cours de leur traversée des résidus. Les concentrations de Na en particulier, augmentent plus doucement que dans le cas avec hystérésis.

Ces résultats montrent qu'il est crucial de prendre en compte le phénomène d'hystérésis de la CRE dans les modèles pour bien simuler le comportement des résidus et la génération d'eaux acides contaminées.

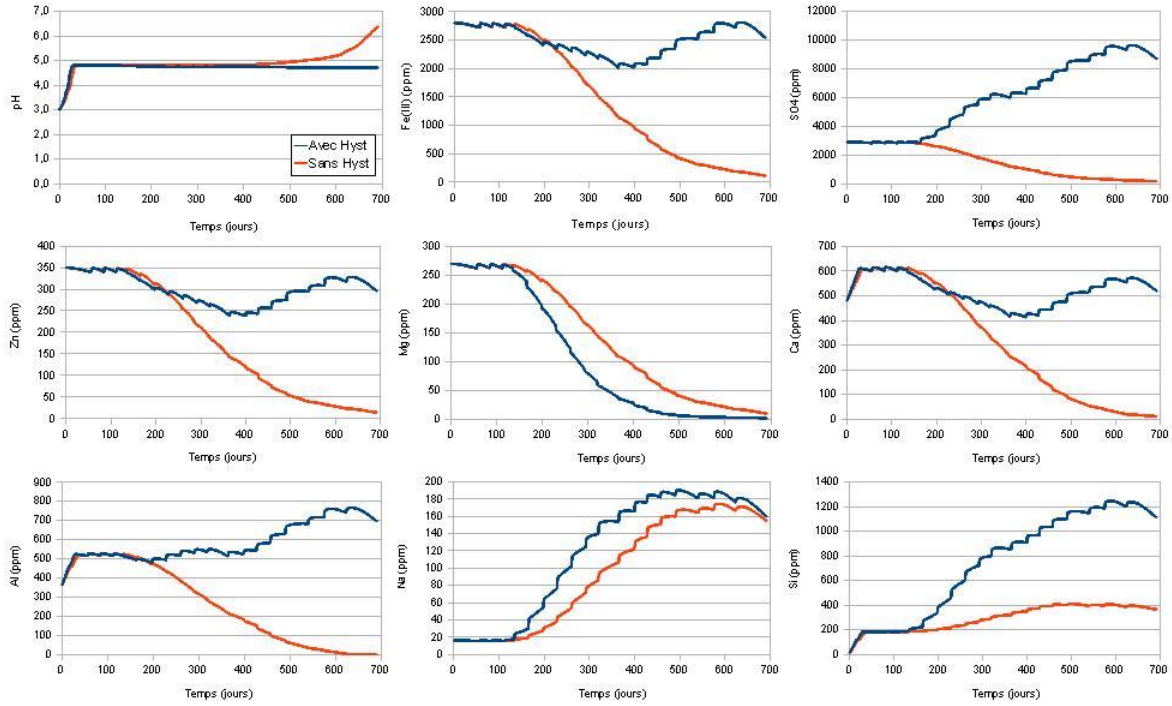


Figure A.8.10.3: Variation du pH et des concentrations de certains éléments dans les simulations de la colonne MNOG avec et sans effet d'hystérésis (pour la CRE des résidus Manitou)

A.8.10.4 Epaisseur de la couverture et chimie de l'eau d'infiltration

A la section 8.5, diverses méthodes de restauration sont évaluées, et en particulier des couvertures d'épaisseurs différentes. Jusqu'ici, la géochimie des colonnes a été modélisée en deux parties. La première simulation permet de déterminer la qualité de l'eau pénétrant dans les résidus réactifs sous-jacents. On se demande ici si un tel modèle devra être réalisé à chaque fois ou si la chimie de l'eau à la base de la couverture est indépendante de son épaisseur. Pour répondre à cette

question, on a repris le modèle numérique MNOG (avec seulement les résidus Goldex) et la qualité de l'eau à la base de la couverture a été comparée pour des recouvrements de 1 m, 2 m et 4 m. Les résultats sont présentés à la figure A.8.10.4. On constate que l'épaisseur de la couverture peut avoir un effet important sur les résultats des modèles géochimiques. L'eau à la base de la couverture n'aura pas la même composition selon qu'elle soit de 1 m, 2 m, ou 4 m. Deux principaux cas se présentent. Si les éléments ne sont pas libérés par les matériaux de la couverture (comme c'est le cas pour le fer, les sulfates ou encore le zinc), alors la différence réside essentiellement dans le temps que prend la dilution pour entraîner les contaminants et ramener les concentrations aux valeurs de l'eau d'infiltration. On ne constate alors qu'un retard, car les concentrations tendent vers les mêmes valeurs. Si par contre les matériaux de la couverture libèrent les éléments analysés (comme Na ou Si), alors les concentrations augmentent avec l'épaisseur de la couverture (et donc le temps de résidence dans ces matériaux). Les concentrations de certains éléments peuvent ainsi être multipliées par un facteur allant jusqu'à 6 (voir figure A.8.10.4).

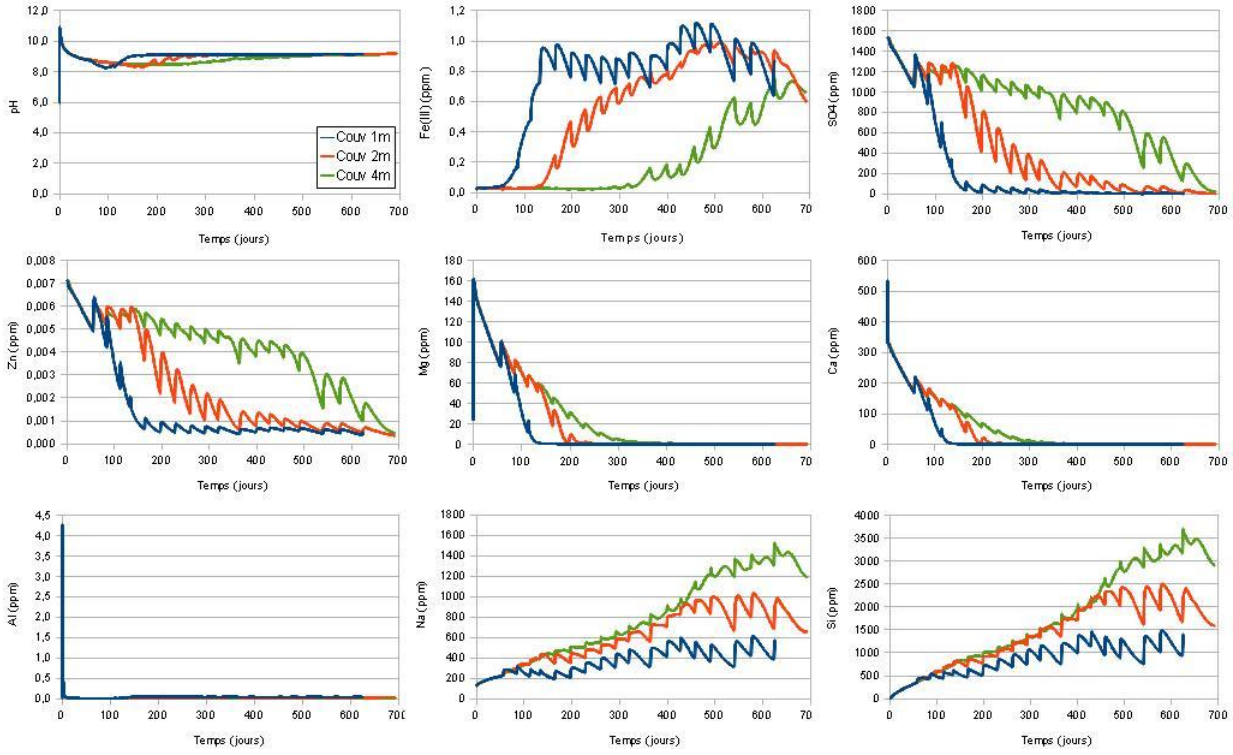


Figure A.8.10.4: Evolution de la qualité de l'eau simulée à la base d'une couverture monocouche de résidus Goldex de 1 m, 2 m et 4 m d'épaisseur au cours du temps

Ces résultats semblent donc indiquer qu'il est nécessaire d'évaluer la chimie de l'eau s'infiltrant dans les résidus après avoir traversé la couverture, selon son épaisseur. On note aussi que la couverture de résidus Goldex ne semble pas libérer de Ca et de Mg et que la calcite et la dolomite qu'elle contient se dissolvent peu (ou pas). On en déduit que le pouvoir tampon des résidus Goldex sur les résidus sous-jacents est très limité.

Il semble donc nécessaire d'évaluer la chimie de l'eau s'infiltrant dans les résidus pour chaque configuration de recouvrement. Néanmoins, on peut se demander si celle-ci, bien que différente, a une influence sur la qualité de l'eau interstitielle au sein des résidus eux-mêmes. Pour cela, on simule la colonne MNOG, avec le même modèle que précédemment, en changeant la composition de l'eau au sommet des résidus. Au lieu d'employer la composition de l'eau ayant traversé la couverture de résidus Goldex, on utilise celle de l'eau déminéralisée (voir tableau 8.3). La pression partielle d'oxygène au sommet du modèle est la même que dans les simulations précédentes, soit 15%. Les résultats sont présentés à la figure A.8.10.6.

On constate que les différences entre les deux simulations sont faibles. Les écarts les plus importants sont observés pour les concentrations de Na et de Si, et, dans une moindre mesure, pour Ca et Al. Mais on retrouve essentiellement les mêmes résultats que ceux de la figure A.8.10.5, avec la contribution principale de la couverture de résidus Goldex attribuable à la quantité élevée d'ions Na^+ produits. Les courbes des variations des concentrations de fer, de sulfates et d'autres métaux sont parfaitement superposées.

Afin de simplifier les simulations et de faciliter les comparaisons entre les simulations, on appliquera par la suite une eau d'infiltration dont la composition sera celle de l'eau déionisée comme condition frontière supérieure géochimique. On retiendra néanmoins que les concentrations de Na simulées ne seront pas nécessairement représentatives des conditions réelles sur le terrain. Cette approche est partiellement validée par les observations réalisées sur la colonne MNOG (pour laquelle les premiers cycles ont été réalisés avec de l'eau de procédé, sans que cela ne semble avoir d'influence sur la qualité du lixiviat ; voir section 5.5.1).

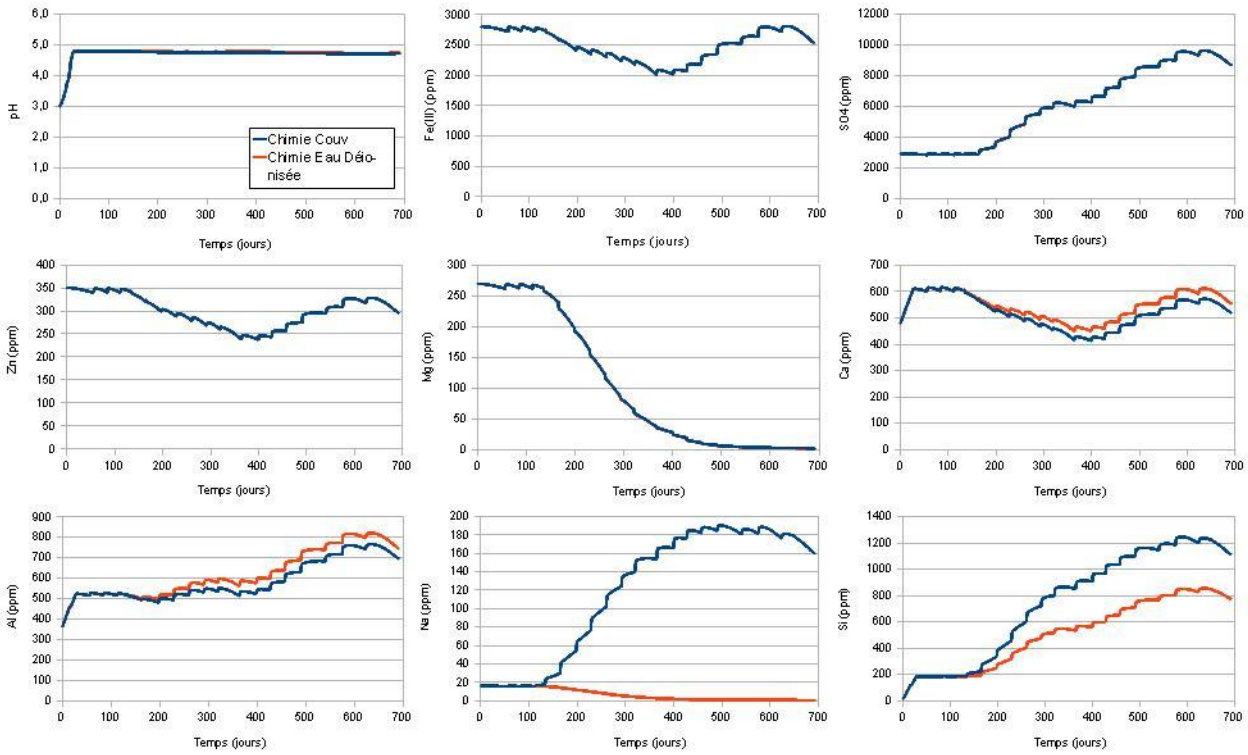


Figure A.8.10.6: Variation du pH et des concentrations de certains éléments dans les simulations de la colonne MNOG, selon la chimie de l'eau d'infiltration dans les résidus

ANNEXE 8.11 – Réponses hydrogéologiques des simulations des conditions de terrain avec Min3P

La première étape des simulations consiste à s'assurer que les réponses hydrologiques sont bien reproduites par Min3P. Pour cela, les résultats des modèles ont été comparés à leur équivalent sous Vadose/W (voir chapitre 7). Un exemple de résultat est présenté à la figure A.8.11.1.

On constate que les résultats obtenus avec Min3P (avec les modifications des conditions frontières), sont proches des calculs effectués avec Vadose/W. Les variations de S_r ne sont pas tout à fait identiques en raison de la façon dont les conditions frontières ont été appliquées (simplification sous Min3P, voir section 8.1.5), mais les tendances et les amplitudes sont globalement bien reproduites sur l'année et les différences sont de l'ordre de moins de 1%. Les résultats sont comparables pour les autres simulations. On en conclut que Min3P reproduit de façon satisfaisante le régime d'écoulement dans les résidus ainsi que leur degré de saturation.

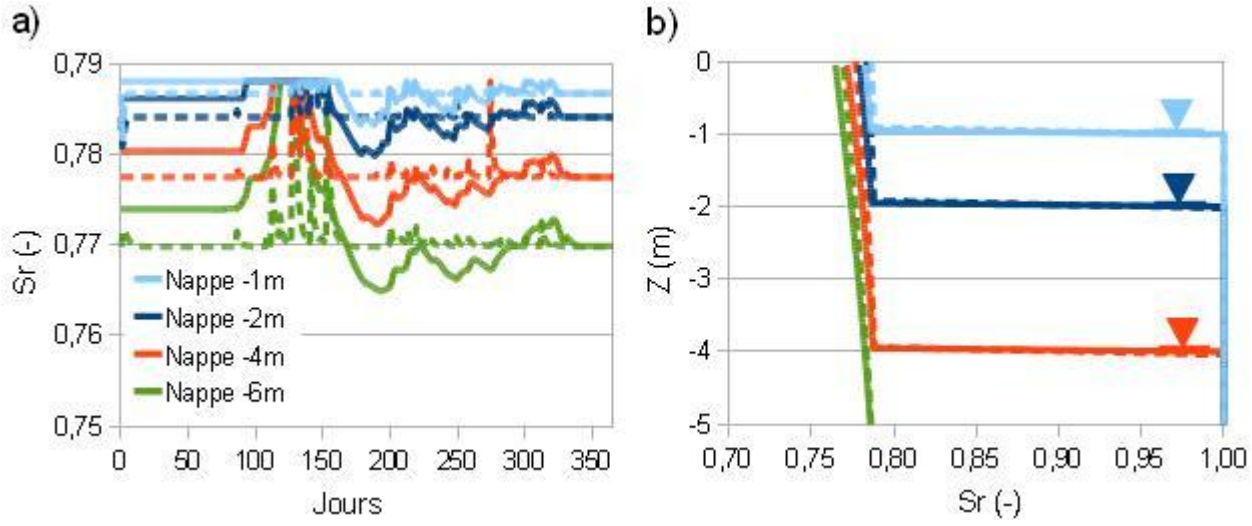


Figure A.8.11.1: a : variation des degrés de saturation, 20 cm sous la surface des résidus, pour quatre modèles de couverture monocouche de 1 m d'épaisseur (résidus M3 et couverture G2), au cours d'une année, simulés avec Vadose (traits pleins) et Min3P (pointillés) ; b : profils du degré de saturation dans ces mêmes modèles pour le jour le plus sec de l'année (188ème jour). Noter l'échelle des deux figures