POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

Affiliée à l'Université de Montréal

et

l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue

Le comportement géochimique et la valorisation potentielle des stériles du gisement Ashram

WASSIM ZARROUK

Département des génies civil, géologique et des mines

Mémoire présenté en vue de l'obtention du diplôme de *Maîtrise ès sciences appliquées*

Génie minéral

Juillet 2025

© Wassim Zarrouk, 2025.

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

Affiliée à l'Université de Montréal

et

l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue

Ce mémoire intitulé :

Le comportement géochimique et la valorisation potentielle des stériles du gisement Ashram

Présenté par **Wassim ZARROUK**

pour un mémoire en vue de l'obtention du diplôme de *Maîtrise ès sciences appliquées*

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

M. ROSA Éric, Ph.D., président

M. PLANTE Benoît, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. LEGAULT Marc, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

Mme. COUDERT Lucie, Ph.D., membre

DÉDICACE

À ma conjointe.

À toute ma famille.

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier sincèrement mon directeur de recherche, Benoît Plante, pour sa confiance, son encadrement rigoureux et sa disponibilité tout au long de ce projet. Merci de m'avoir offert cette opportunité et de m'avoir guidé avec bienveillance, tout en respectant mon autonomie. Je suis reconnaissant d'avoir pu bénéficier de ton expertise et de ton écoute dans un environnement aussi stimulant.

Je remercie également mon co-directeur, Marc Legault, pour ses précieux conseils, sa rigueur scientifique et son implication constante dans le suivi du projet. Ta vision terrain et ton esprit critique ont grandement enrichi mes réflexions et ma démarche.

Un immense merci à l'ensemble du personnel de l'URSTM, dont le soutien technique et logistique a été essentiel à la réalisation de mes analyses. Vous avez toujours su répondre présent, que ce soit pour les longues journées au laboratoire ou les questions de dernière minute. Merci de votre professionnalisme et de votre générosité.

Je tiens aussi à exprimer toute ma gratitude à ma conjointe Emna, pour son amour, sa patience et son soutien indéfectible pendant ces années de maîtrise. Ta présence m'a été précieuse, dans les moments de doute comme dans les petites victoires.

Je souhaite également remercier du fond du cœur ma famille, mes parents Sameh et Khalifa, ma soeur Siwar et mon frère Wael, pour leur encouragement constant, leur confiance en moi et leur soutien moral à distance. Leurs messages, leurs appels et leur fierté m'ont donné la force de persévérer jusqu'au bout.

Enfin, je remercie chaleureusement mes collègues et amies de laboratoire, qui m'ont accompagné tout au long de cette aventure. Merci pour votre aide précieuse dans les expérimentations, vos conseils pratiques, vos encouragements et votre bonne humeur, qui ont rendu les longues journées de travail beaucoup plus agréables.

RÉSUMÉ

Les éléments des terres rares (ETR) jouent un rôle essentiel dans de nombreuses technologies modernes, telles que les énergies renouvelables, les appareils électroniques et les systèmes de défense. Bien que ces éléments soient indispensables, leur extraction et leur traitement posent des défis environnementaux significatifs en raison de la génération de résidus. Face à une demande mondiale croissante, les recherches sur la gestion durable des stériles miniers qui contiennent des teneurs significatives en ETR prennent une importance cruciale, en particulier dans des régions comme le Québec, qui abrite des gisements prometteurs.

Ce mémoire porte sur le comportement géochimique et la valorisation potentielle des stériles du gisement Ashram, situé dans le complexe Eldor au Québec, Canada. Ce gisement se distingue par sa richesse en ETR, contenus principalement dans les lithologies carbonatitiques. Les stériles miniers, issus de l'extraction des ETR, présentent des défis environnementaux majeurs, notamment en lien avec la formation potentielle de drainage minier acide (DMA) et de drainage neutre contaminé (DNC).

Une caractérisation détaillée des stériles a été réalisée à travers des analyses physiques, chimiques et minéralogiques, complétées par des tests cinétiques en colonne et des calculs thermodynamiques utilisant Visual MINTEQ. Ces approches ont permis d'évaluer la réactivité des minéraux porteurs d'ETR et leur capacité de libération sous des conditions environnementales spécifiques. Les résultats montrent que les carbonates présents jouent un rôle crucial dans la neutralisation des acides générés, tout en influençant la mobilité des métaux et des ETR.

Les essais en colonnes ont également permis de tester différents scénarios de restauration minière, notamment en examinant les réactions géochimiques associées à l'oxydation des sulfures, à la dissolution des carbonates, et à la précipitation de minéraux secondaires. Ces études ont mis en évidence des variations importantes dans le comportement des différents types de stériles, mettant en lumière les implications pour la gestion environnementale et la récupération potentielle des ETR à partir des stériles.

En conclusion, cette recherche apporte des connaissances essentielles pour prédire le comportement environnemental des stériles et propose des stratégies pour leur gestion durable, tout en explorant des opportunités de valorisation des ETR ou de réutilisation des stériles en restauration dans un contexte de développement durable.

ABSTRACT

Rare earth elements (REEs) play an essential role in many modern technologies, such as renewable energies, electronic devices and defense systems. Although these elements are indispensable, their extraction and processing pose significant environmental challenges due to the generation of mine residues. In the face of growing global demand, research into the sustainable management of mine waste rock containing significant levels of REE is of crucial importance, particularly in regions such as Quebec, home to promising deposits.

This dissertation focuses on the geochemical behavior and potential beneficiation of waste rock from the Ashram deposit, located in the Eldor complex in Quebec, Canada. This deposit is characterized by its richness in REEs, mainly contained in carbonatitic lithologies. The waste rock resulting from the extraction of REE presents major environmental challenges, notably the possible formation of acid mine drainage (AMD) and neutral mine drainage (NMD).

A detailed characterization of the waste rock was carried out through physical, chemical and mineralogical analyses, complemented by kinetic column tests and thermodynamic calculations using Visual MINTEQ. These approaches enabled us to assess the reactivity of REE-bearing minerals and their release capacity under specific environmental conditions. The results show that the carbonates present play a crucial role in neutralizing acid generation, while also reducing the mobility of metals and REEs through the formation of secondary mineral phases

Column tests were also used to test different mining reclamation scenarios, notably by examining the geochemical reactions associated with sulfide oxidation, carbonate dissolution and secondary mineral precipitation. These studies revealed significant variations in the behavior of different types of waste rock, highlighting implications for environmental management and the potential recovery of REE from waste rock.

In conclusion, this research provides essential knowledge for predicting the environmental behavior of waste rock and proposes strategies for its sustainable management, while exploring opportunities for REE recovery in a context of sustainable development.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE III

REMERCIEMENTS IV

RÉSUMÉ V

ABSTRACT VI

TABLE DES MATIÈRES VII

LISTE DES TABLEAUX XII

LISTE DES FIGURES XIV

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS XVIII

CHAPITRE 1 INTRODUCTION 1

1.1 Mise en contexte 1

1.2 Problématique 2

1.3 Hypothèses de la recherche 3

1.4 Objectif de la recherche 4

1.5 Structure du document 4

CHAPITRE 2 REVUE DE LA LITTÉRATURE 5

2.1 Définition et utilité des ETRs 5

2.1.1 Évolution de l'extraction et de la production des ETR 6

2.1.2 Dynamique actuelles du marché mondial des ETR 8

2.1.3 Compétition mondiale et potentiel géologique de l'extraction des ETR 8

2.2 Gisement d'ETR au Canada et Québec 15

2.2.1 Les gisements associés aux complexes des carbonatites 15

2.2.2 Les gisements primaires associés aux roches ignées alcalines 15

2.2.3 Les gisements primaires associés aux pegmatites granites, migmatites et skarns 16

2.2.4 Les gisements secondaires associés aux paléoplacers 16

2.2.5 Les gisements secondaires associés aux argiles à l'adsorption ionique 17

2.2.6 Les gisements primaires d'oxydes de Fe-Cu-Au 17

2.3 Localisation et histoire du complexe Eldor 18

2.3.1 Travaux effectués par Commerce Ressources 19

2.3.2 Cadre géologique régional et local du gisement Ashram 20

2.3.3 Minéralisation du gisement Ashram 23

2.3.4 Gestion des rejets 25

2.3.5 Réactivité des ETR dans les carbonatites 27

2.3.5.1 Réactivité des carbonates dans les carbonatites 27

2.3.5.2 Réactivité des minéraux porteurs d'ETR 28

2.3.5.3 Réactivité des silicates 30

2.3.5.4 Réactivité dans les phosphates 31

2.5 Traitement des minéraux porteurs d'ETR et valorisation de stérile 31

2.5.1 Séparation magnétique 33

2.5.2 Séparation gravimétrique 34

2.5.3 Séparation par flottation 35

2.6 Comportement des ETR dans l'environnement 36

2.6.1 Impact sur l'environnement 36

2.6.2 Autres considérations 38

2.7 Drainage neutre contaminé 40

2.7.1 Processus et formation de DNC 40

2.7.2 Prévention et gestion 40

2.7.3 Les essais de sorption 41

2.8 Prédiction de drainage minier et essais au laboratoire 43

2.8.1 Essai statique 43

2.8.2 Potentiel de génération d'acide 44

2.8.3 Potentiel de neutralisation 44

2.9 Essais cinétiques 45

2.9.1 Essais en mini cellule d'altération 45

2.9.2 Cellules humides 46

2.9.3 Essais en colonne 46

CHAPITRE 3 MATÉRIEL ET MÉTHODE 50

3.1 Matériaux à l'étude 50

3.2 Matériaux utilisés pour les essais en laboratoire 51

3.2.1 Essais de laboratoire 51

3.2.2 Préparation des échantillons 52

3.2.3 Distribution granulométrique 53

3.2.4 Analyse chimique 53

3.2.5 Analyse de soufre et carbone 55

3.2.6 Analyse minéralogique au synchrotron 55

3.2.7 Minéralogie quantitative au microscope électronique à balayage 56

3.3 Essais cinétiques 56

3.4 Visual MINTEQ 59

CHAPITRE 4 ARTICLE 1: GEOCHEMICAL BEHAVIOR AND RISK MANAGEMENT OF WASTE ROCK FROM THE ASHRAM RARE EARTH DEPOSIT 61

4.1 Abstract 61

4.2 Introduction 62

4.3 Ashram Deposit 63

4.4 Materials and Methods 64
4.4.1 Sampling 67
4.4.2 Characterization Methods 67
4.4.3 Thermodynamical equilibrium calculations 68
4.5 Results and discussion 69
4.5.1 Physical and chemical characterization 69
4.5.2 Mineralogical composition of the Ashram lithologies 75
4.5.3 Water quality leachates from kinetic column tests 81
4.5.4 Mineralogical evolution during Ashram waste rock weathering 85
4.5.5 REE speciation and solubility controls 88
4.5.6 Release rates 94
4.6 Reclamation scenarios and risk management 97
4.7 Conclusion 98
4.8 References 99
CHAPITRE 5 DISCUSSION 102
5.1 Prédiction du drainage minier 102
5.2 Caractérisations physiques, chimiques et minéralogiques 104
5.3 Interprétation des résultats minéralogiques 104
5.3.1 DRX Synchrotron 104
5.3.2 MEB MLA 106
5.3.3 Réconciliation minéralogique 109
5.4 Valorisation potentielle des stériles du gisement Ashram 127
5.4.1 Justifications de la valorisation 127
5.4.2 Synthèse des phases valorisables identifiées 127

5.4.3 Proposition de schéma de traitement simplifié 128

5.4.4 Discussion sur la faisabilité 129

5.5 Les radionucléides 130

CHAPITRE 6 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS 134

6.1 Conclusions 134

6.2 Recommandations 135

RÉFÉRENCES 137

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1 Production minière mondiale et réserves estimées en ETR selon USGS (2025) 9

Tableau 2.2 Caractéristiques des principaux gisements d'ETR dans le monde (Zhao, 2017)..... 12

Tableau 2.3 Constantes du produit de solubilité des composés d'ETR (Edahbi et al., 2019). 29

Tableau 2.4 Les principaux facteurs contrôlant la réactivité des carbonates d'ETR (Edahbi et al., 2019)..... 29

Tableau 2.5 Résumé des différents types d'essai cinétique au laboratoire (Bouzahzah et al., 2014) 48

Table 4.1 Physical and chemical characterization of Ashram samples..... 70

Table 4.2 Mineralogical characterization of the kinetic cell materials by SEM MLA 77

Tableau 4.3 REE mobility in Ashram samples during column testing 92

Tableau 4.4 Release rates of REE, LREE, HREE, Zn, and Cu..... 97

Tableau 5.1 Caractérisation minéralogiques (DRX Synchrotron) des échantillons analysés 105

Tableau 5.2 Caractérisation minéralogique des échantillons MEB-MLA analysées..... 107

Tableau 5.3 Résultats de la réconciliation minéralogique..... 110

Tableau 5.4 Répartition des sulfures entre les phases libérées et les phases enclavées dans les lithologies étudiées 113

Tableau 5.5 Distribution élémentaire des minéraux porteurs de F 115

Tableau 5.6 Répartition des minéraux fluorés entre les phases libérées et les phases enclavées dans les lithologies étudiées 118

Tableau 5.7 Distribution élémentaire des minéraux porteurs de Nb..... 119

Tableau 5.8 Répartition des minéraux porteurs de niobium entre les phases libérées et les phases enclavées dans les lithologies étudiées..... 121

Tableau 5.9 Distribution élémentaire des minéraux porteurs de Ta 122

Tableau 5.10 Répartition des minéraux porteurs de tantale entre les phases libérées et les phases enclavées dans les lithologies étudiées..... 125

Tableau 5.11 Résultats des analyses radionucléides en Bq/L 132

LISTE DES FIGURES

Figure 2.1 Position des éléments de terres rares dans le tableau périodique (Charles et al., 2021) 5

Figure 2.2 Répartition mondiale actuelle des projets relatifs aux ETR, y compris les mines en activité et les projets avancés (Liu et al., 2023) 11

Figure 2.3 Carte de localisation générale de gisement Ashram (Commerce Ressources, 2012) .. 19

Figure 2.4 Carte géologique régionale montrant la localisation du gisement Ashram (rectangle) (Gagnon et al., 2015b) 21

Figure 2.5 A) Carte géologique simplifiée du complexe de carbonatite d'Eldor au niveau de 100 m, basée sur les données issues des carottes de forage. B) Coupe géologique simplifié selon le transect X-X' illustré en A), incluant les traces des forages utilisés pour construire la section (Beland & Williams-Jones, 2021) 23

Figure 2.6 Modélisation 3D de la répartition des zones à haute et basse teneur du gisement Ashram. À gauche : vue en coupe longitudinale orientée vers le nord, illustrant la distribution verticale des zones à hautes et basse teneur ainsi que la zone enrichie en MHREO (terres rares moyennes et lourdes). À droite : vue en plan, montrant la disposition spatiale des différentes zones à l'intérieur du gisement (Gagnon et al., 2015b) 25

Figure 2.7 Relation entre le rayon ionique et la valence des ETR et des autres éléments métalliques (Lipin et al., 1989) 27

Figure 2.8 Schéma bloc du procédé de traitement du gisement Ashram (Commerce Ressources, 2024) 32

Figure 2.9 Schéma de la flottation directe des minéraux d'ETR (Verret, 2006) 36

Figure 2.10 Carte des projets majeurs d'ETR au Canada 39

Figure 2.11 : Solubilité de certains hydroxydes métalliques à 25°C (Cravotta III, 2008) 42

Figure 2.12 Relation entre le pHpzc et la capacité de sorption (Michaud et al., 2017; Plante et al., 2014) 43

Figure 3.1 Distribution des différentes lithologies reçus par la compagnie 50

Figure 3.2 Schéma de préparation des échantillons 53

Figure 3.3 Schéma des essais en colonne 57

Figure 3.4 Schéma des configurations expérimentales des colonnes, (a) colonne mélange, (b) colonne stratifiée, (c) colonne ennoyée, (d) colonne avec une couche appauvrie en ETR en bas 59

Figure 4.1 Regional geology of the New Quebec Orogen showing Ashram deposit (Clark & Wares, 2006) 64

Figure 4.2 Schematic representation of the experimental column configurations, (a) mixed column, (b) stratified column, (c) flooded column, (d) column with a REE-depleted layer at the bottom 66

Figure 4.3 NASC-normalized REE patterns of studied lithologies 75

Figure 4.4 MEB MLA images showing different mineral phases associated to REE for Ashram samples; a: breccia (REE bearing minerals: monazite-(Ce)); b: fenite (REE bearing minerals: bastnaesite-(Ce)) 78

Figure 4.5 The liberation degree of REE-bearing minerals in Ashram lithologies as determined by MLA-SEM 79

Figure 4.6 Deportment of Ce (a), Nd (b), and La (c) in REE-bearing minerals of the four lithologies 80

Figure 4.7 Evolution of pH (a), conductivity (b), and alkalinity (c) from kinetic tests on all lithologies 81

Figure 4.8 Zn (a), Cu (b), F (c), Ca (d), Ba (e), S (f), Sr (g) and REE (h) concentrations form kinetic tests 84

Figure 4.9. Cumulative loads from the kinetic tests on the Ashram samples; a: REE vs time; b: Ca+Mg+Mn+Ba+Sr+F vs time; c: sulfate vs time 85

Figure 4.10 PCA results: (a) Mixed column, (b) Fenite-base stratified column, (c) Flooded column, (d) Carbonatite-base stratified column 87

Figure 4.11 Depletion curves of S, Sr, Ba, Ca, and REE within mixed column (a), stratified column (b), flooded column (c), and column with a depleted layer in REE (d) 88

Figure 4.12. Saturation indices of fluorite, barite and REE-carbonates: (a) Mixed column; (b) Fenite-base stratified column; (c) Flooded column; (d) Carbonatite-base stratified column 90

Figure 4.13 Effect of pH on selective precipitation of REE hydroxides and REE carbonates 91

Figure 4.14 Effect of pH on selective precipitation of REE fluoride 91

Figure 4.15 Effect of pH on REE distribution 94

Figure 4.16 Cu and Zn cumulative loadings 95

Figure 4.17 REE (a), HREE (b), LREE (c), Ce (d), Nd (e), and La (f) cumulative loads 96

Figure 5.1 Courbe d'oxydation-neutralisation pour les échantillons de gisement Ashram 103

Figure 5.2 Image BSE-MEB de la carbonatite montrant des grains de pyrite associés à la gangue silicatée (Qz = quartz) et la parisite (Pst) (a) ainsi qu'une brèche illustrant des cristaux de chalcopyrite (Cpy) porteur d'ETR encapsulés dans une matrice quartzeuse (Qz) (b). 112

Figure 5.3 Degré de libération des minéraux sulfureux, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché 113

Figure 5.4 Distribution élémentaire de fluor dans les quatre lithologies 116

Figure 5.5 Degré de libération de la fluorite, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché. 116

Figure 5.6 Distribution élémentaire de niobium dans les quatre lithologies 119

Figure 5.7 Degré de libération des minéraux porteurs de niobium, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché 120

Figure 5.8 Distribution élémentaire de tantale dans les quatre lithologies 123

Figure 5.9 Degré de libération des minéraux porteurs de tantale, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché. 124

Figure 5.10 Distribution élémentaire de thorium dans les quatre lithologies 126

Figure 5.11. Degré de libération des minéraux porteurs du thorium, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché 127

Figure 5.12 Esquisse proposée pour la valorisation des stériles d'Ashram 129

Figure 5.13 Évolution de la concentration en uranium (mg/L) dans les lixiviats au cours des essais en colonnes 133

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

ABA Acid-Base Accounting

AMD Acid mine drainage

ASTM American society for testing and materials

CEAEQ Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec

CEC Capacité d'échange cationique

CND Contaminated neutral drainage

D10 The value of the particle diameter at 10 % in the cumulative distribution

D50 The value of the particle diameter at 50% in the cumulative distribution

D90 the value of the particle diameter at 90% in the cumulative distribution

DMA Drainage minier acide

DNC Drainage neutre contaminé

EDS Energy dispersive spectroscopy

Eh Potentiel d'oxydo-réduction par rapport à l'électrode normale à hydrogène

ETR Éléments des terres rares

FRX Fluorescence des rayons X

CLS Canadian Light Source

Gs Densité relative ($g.cm^{-3}$)

HREE Heavy earth elements

I Force ionique (mol/L)

I.S. Indice de saturation

ICP-AES Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy

ICP-MS Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

LDM Limite de détection minimale

LREE Light earth element

M Concentration molaire (mol/L)

MEB Microscope Électronique à Balayage

NPGA Non potentiellement générateur d'acide

PA Potentiel d'acidité

pH potentiel d'hydrogène

Potentiel de neutralisation

PNN Potentiel net de neutralisation

Ppm Partie par million

MLA Mineral liberation analysis

REE Rare earth element

S/C Soufre/Carbon

SEM Scanning electron microscope

TREO Oxydes de terres rares totales

UQAT Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue

WHIMS Wet High Intensity Magnetic Separation

XRF X-ray fluorescence

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

1.1 Mise en contexte

Au cours des dernières années, le développement rapide de l'industrialisation et de l'économie mondiale s'est manifesté par une croissance exponentielle de tous les indicateurs d'activité humaine, de prospérité et d'impact environnemental (Steffen et al., 2015). La population mondiale, la proportion de personnes vivant en milieu urbain, le revenu moyen, le niveau de vie, ainsi que la consommation d'énergie et de matières premières ont tous suivi des tendances similaires. Cela a stimulé un intérêt pour l'exploration minière, qui constitue la première phase du cycle minier. Les activités d'exploration englobent la prospection, les études géochimiques, l'évaluation des réserves géologiques, le forage et l'excavation de gisements minéraux (Peres Menezes, 2004). En conséquence de cette expansion minière, les pays riches en matières premières ont vu leurs activités d'exploitation minière s'accroître (Bebbington et al., 2008). Les entreprises minières s'avèrent souvent être des partenaires solides pour les communautés locales dans lesquelles elles s'installent. Néanmoins, face à l'épuisement des gisements de haute qualité, l'approche actuelle consiste à exploiter des gisements de grande taille mais de faible teneur, ce qui entraîne la production de grandes quantités de rejets solides et liquides (roches stériles, résidus de traitement, effluents miniers). Ces rejets, généralement dépourvus de valeur commerciale, sont soit stockés à la surface, soit réinjectés sous terre comme remblai de soutènement (Belem et Benzaazoua, 2008). L'eau de pluie et la fonte des neiges, en s'infiltrant dans ces rejets miniers, peuvent se contaminer par les réactions géochimiques qui se produisent au contact de l'eau et de l'oxygène (Bussiere, 2007). Cette situation a conduit les gouvernements à adopter des lois pour contrôler les risques de pollution liés à l'activité minière. La réglementation minière impose aux entreprises de fournir des garanties financières couvrant l'ensemble des coûts associés à la phase post-exploitation (Aubertin et al., 2002). D'autres juridictions adoptent des approches similaires, mais les exigences exactes peuvent varier selon les lois et les contextes réglementaires locaux (Everingham et al., 2022). Par conséquent, la législation minière est devenue de plus en plus stricte, exigeant aux entreprises du secteur qu'elles préservent l'environnement (Plante, 2010).

Dans le contexte où les roches stériles et les résidus miniers contenant des minéraux sulfureux sont soumis à l'environnement oxydant atmosphérique, une réaction d'oxydation de ces sulfures peut se produire (Aubertin et al., 2002). Cette réaction peut entraîner la formation de ce que l'on appelle

un drainage minier acide (DMA) (Bussiere, 2007), représentant l'un des défis environnementaux majeurs associés à l'industrie minière. Toutefois, lorsqu'il y a présence de minéraux neutralisants (carbonates, silicates) en quantité adéquate pour contrer les effets de l'acidité, le drainage maintient un pH plus ou moins neutre (Bouzahzah et al., 2014). Même en dépit de la neutralité du pH, l'oxydation des sulfures peut conduire à la libération de certains métaux qui demeurent en solution. Cela peut engendrer la formation d'un drainage neutre mais contaminé en métalloïdes, ou drainage neutre contaminé (DNC) (Plante et al., 2014).

Actuellement, un certain nombre de projets miniers visant l'exploitation des ETR sont en cours d'élaboration au Canada (canada, 2022) (P. ex. Strange Lake, Nechalacho, Ashram). Par conséquent, une attention particulière doit être portée sur l'étude du comportement géochimique des rejets miniers issus de l'extraction des ETR, afin d'anticiper les potentielles conséquences environnementales.

1.2 Problématique

En présence de sulfures dans les rejets miniers, la formation de drainage minier acide (DMA) ou de drainage neutre contaminé (DNC) peut être observée. Le DMA résulte de l'oxydation des sulfures en interaction avec l'eau et l'air, entraînant une baisse du pH et la libération de métaux et de sulfates (Blowes et al., 2005) Ainsi, les eaux issues de l'exploitation minière se caractérisent par un pH bas et des concentrations supérieures aux critères en métaux et sulfates. Des tests prédictifs permettent d'évaluer le potentiel de génération d'acide des matériaux, en se basant sur les réactions d'oxydation des sulfures et de neutralisation de l'acide qui se produiront. L'acidité est généralement produite par l'oxydation des sulfures, souvent de la pyrite et de la pyrrhotite, et peut être neutralisée par la dissolution de minéraux neutralisants tels que les carbonates et les silicates.

Même lorsque le potentiel de neutralisation l'emporte sur le potentiel d'acidification, des concentrations suprérieures aux critères en métaux peuvent subsister. Il s'agit alors de DNC où le pH des eaux minières reste proche de la neutralité. Le DNC peut se produire lorsque la neutralisation est suffisamment efficace pour prévenir un cas de DMA, mais que certains métaux/métalloïdes (par exemple As, Mo, Ni, Sn, Zn) restent en solution et ne sont pas entièrement précipités (Plante et al., 2014). Un DNC est un type d'effluent qui se caractérise par un pH oscillant entre neutre et légèrement basique (6-9), et des concentrations en métaux et métalloïdes dépassant les seuils réglementaires actuellement en vigueur (Nordstrom et al., 2015).

Un autre phénomène important à considérer en DNC est la sorption des métaux dissous à la surface d'autres minéraux. Ce processus peut induire un effet de latence, car la sorption retient les métaux dissous et la libération de métaux ne survient qu'une fois les sites de sorption saturés. Le DNC peut également résulter d'une légère diminution du pH, restant proche de la neutralité, mais suffisante pour solubiliser certains minéraux. Les tests prédictifs sont bien adaptés aux cas de DMA, mais ne prennent pas en compte l'effet retard potentiellement causé par la sorption (Plante et al., 2011). Des techniques innovantes sont actuellement en développement pour combler ce manque (Marmier et al., 2025a, 2025b; Michaud et al., 2017; Plante et al., 2015).

1.3 Hypothèses de la recherche

Les hypothèses de cette recherche sont les suivantes : (1) les stériles issus du gisement Ashram, composés principalement de carbonates et de silicates, pourraient ne pas générer DMA en raison de leur capacité neutralisante, mais pourraient néanmoins entrainer la formation d'un DNC. La dissolution des carbonates contenus dans les stériles est susceptible de maintenir un pH proche de la neutralité ou légèrement basique, ce qui pourrait faciliter la mobilisation de certains métaux et métalloïdes tels que le zinc, le fer, le manganèse et l'arsenic. Ces éléments, une fois libérés suite à des réactions d'oxydation et de dissolution, risqueraient alors de dépasser les seuils réglementaires de concentration en solution autorisées par les normes en vigueur. Il est également hypothétisé que les essais en colonnes permettront de simuler de manière réaliste le comportement géochimique des stériles dans des conditions environnementales similaires à celle du site Cependant, il convient de noter que la durée prévue pour ces essais pourrait constituer une limitation pour évaluer pleinement l'effet potentiel de saturation des sites d'adsorption, un phénomène généralement observé sur le plus long terme (Benjamin et Leckie, 1981). Ces essais pourraient montrer que l'apport en matériaux neutralisant, tels que les carbonates, pourrait réduire la mobilité des métaux dissous en favorisant la précipitation des phases secondaires.

De plus, (2) l'application de scénarios de restauration, tels que l'entreposage stratifié des lithologies, mélangé, ennoyé ou d'autres scénarios d'entreposage, pourrait réduire significativement la lixiviation des contaminants en limitant l'exposition des stériles aux conditions environnementales défavorables. Ces approches d'entreposage, associées à une gestion proactive des matériaux neutralisants, permettraient non seulement de minimiser les impacts

environnementaux à long terme, mais aussi de stabiliser durablement les conditions géochimiques des lixiviats, tout en optimisant les coûts de restauration.

1.4 Objectif de la recherche

L'objectif principal de ce projet est de prédire le comportement géochimique des stériles miniers, en mettant l'accent non seulement sur les ETR, mais également sur d'autres éléments d'intérêt environnemental tels que l'arsenic, le zinc, l'uranium, le thorium, et le plomb du projet Ashram. Pour cette recherche, les échantillons proviennent du projet minier Ashram détenu par la société Commerce Ressources. Le projet Ashram est encore en phase d'évaluation économique préliminaire, ce qui le rend idéal pour des études de prédiction. Les futurs rejets miniers peuvent être qualifiés comme probablement non générateurs de DMA, étant donné la présence substantielle de carbonates dans le gisement. Par conséquent, il est approprié de mener des tests pour prédire le potentiel de DNC. Pour répondre à l'objectif général tout en tenant compte des spécificités du projet minier, plusieurs objectifs spécifiques ont été établis :

1. Évaluer le potentiel de génération de DNC des stériles au moyen d'essais cinétiques en colonne pour répondre à l'hypothèse (1);
2. Étudier la potentielle valorisation des stériles du gisement Ashram à travers l'évaluation de différents scénarios de restauration minière au moyen des colonnes pour répondre à l'hypothèse (2).

1.5 Structure du document

Le présent mémoire adopte une structure basée sur la rédaction d'un article scientifique, ce qui diffère du format classique. Il débute par une introduction générale présentant le contexte du projet, en précisant les objectifs de recherche et les enjeux environnementaux liés à la gestion des stériles miniers. Le chapitre 2 est consacré à la revue de littérature, permettant de situer les connaissances actuelles dans le domaine. Le chapitre 3 présente l'article rédigé selon les normes de la revue scientifique (Geochemical Exploration). Le chapitre 4 propose une discussion, complémentaire incluant des résultats pertinents qui n'ont pas été développés dans l'article. Enfin, une conclusion générale accompagnée de recommandations vient clore le mémoire.

CHAPITRE 2 Revue de la littérature

Malgré l'omniprésence des ETR dans de nombreux produits industriels et de consommation, leur nature demeure largement obscure pour le grand public. Cette section propose une revue détaillée sur les ETR, en abordant leurs propriétés, leurs applications industrielles ainsi que les principaux enjeux économiques et géopolitiques liés à leur marché. De plus, le gisement Ashram sera présenté en détail, en précisant son contexte géologique, la réactivité des minéraux porteurs d'ETR ainsi que les procédés de traitement possibles et les options de valorisation des stériles. Enfin, cette revue examine le comportement environnemental des ETR, en particulier le phénomène du DNC, ses mécanismes de formation et les essais permettant d'en prédire les impacts potentiels.

2.1 Définition et utilité des ETRs

Le terme « éléments des terres rares » fait référence à un ensemble de dix-sept métaux ayant des caractéristiques physico-chimiques similaires comprenant les lanthanides, le scandium et l'yttrium, qui sont souvent localisés ensemble dans les minerais à différentes concentrations. Les lanthanides, définis de manière exhaustive comme ETR, incorporent les éléments avec des numéros atomiques de 57 à 71 (figure 2.1).

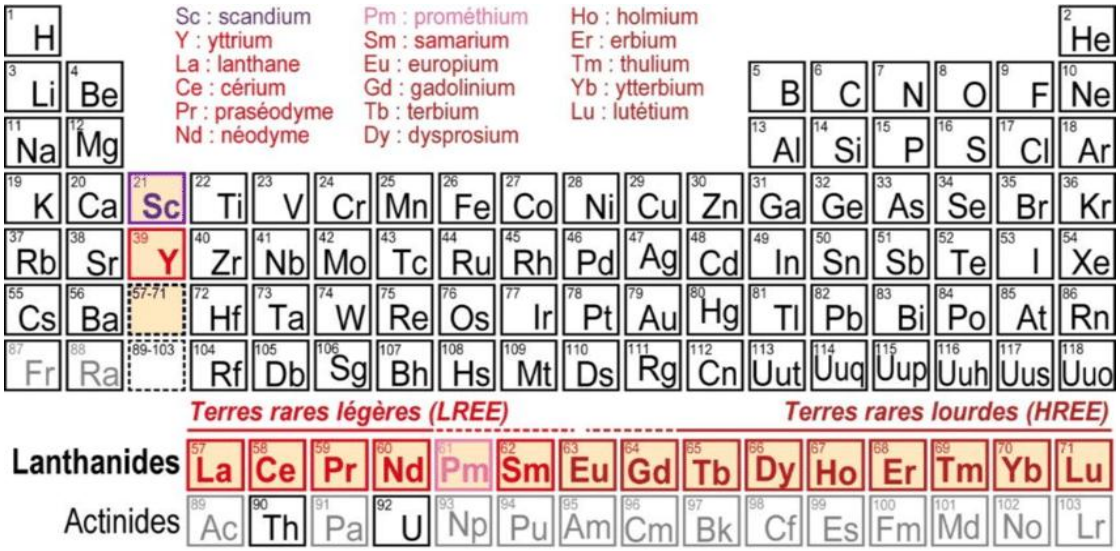

Figure 2.1 Position des éléments de terres rares dans le tableau périodique (Charles et al., 2021)

Malgré leur dénomination, ces éléments ne sont pas rares, étant dispersés à faibles concentrations dans plus de trente-quatre pays sur cinq continents (Champagne, 2014; Zhanheng, 2011). Certains, comme le cérium, sont même aussi abondants que le cuivre (Champagne, 2014; USGS, 2010). Tous ces éléments, à l'exception du prométhium, sont plus abondants que l'argent ou l'or (Halka et Nordstrom, 2019) et sont généralement trouvés dans les minéraux d'apatite, de bastnaésite, d'eudialyte, de loparite, de monazite, et de xénotime. Cependant, les concentrations de terres rares dans les roches sont souvent trop faibles pour être économiquement exploitées (Balaram, 2019; Champagne, 2014). Leur caractéristique de « rareté » provient plutôt des défis technologiques liés à leur extraction et leur purification, compte tenu du manque d'opérations d'extraction et d'usines de traitement en mesure de répondre à la demande mondiale (Champagne, 2014; Opare et al., 2021). De plus, ce ne sont pas des « terres » mais plutôt des métaux qui apparaissent naturellement sous forme d'oxydes ayant une apparence terreuse (Lorenz et Bertau, 2020).

Chaque élément de ce groupe de métaux présente des propriétés physiques et chimiques uniques qui les rendent essentiels pour une multitude d'applications électroniques, optiques, magnétiques et catalytiques dans les industries de haute technologie, des énergies renouvelables et militaires (Champagne, 2014). Par exemple, les ETR sont utilisés comme aimants puissants dans les véhicules hybrides, les éoliennes et les téléphones portables (Dushyantha et al., 2020; Goonan, 2011), et sont indispensables dans diverses applications militaires, comme les missiles et les systèmes d'armes à guidage de précision (Champagne, 2014; Dushyantha et al., 2020).

Alors que des petites quantités d'ETR peuvent suffire pour le fonctionnement de certains objets et applications, d'autres produits en requièrent des quantités significatives (Champagne, 2014). Par exemple, la quantité d'ETR contenue dans une batterie de Toyota Prius peut être estimée à 2.5 kg (Binnemans et al., 2013), de 180 kg de néodyme pour le moteur électrique (Widmer et al., 2015), et plusieurs autres ETR dans diverses composantes. Une éolienne peut contenir jusqu'à 600 kg de NdFeB (néodyme-fer-bore) utilisé comme aimant puissant (Champagne, 2014; Hoenderdaal et al., 2013).

2.1.1 Évolution de l'extraction et de la production des ETR

L'exploitation des ETR a débuté en Suède vers la fin du 19e siècle pour la fabrication des manchons dans l'industrie de l'éclairage incandescent (Champagne, 2014; Charles et al., 2021). Pendant longtemps, leur exploitation est restée marginale et s'est déplacée vers l'Inde et le Brésil avant

1950, avec des volumes de production n'excédant pas quelques milliers de tonnes par an (Champagne, 2014). C'est dans les années 1950 que l'extraction de ces métaux a pris de l'ampleur en Australie et aux États-Unis, stimulée par la découverte que ces éléments rendaient possible la télévision en couleur (Champagne, 2014). Les États-Unis sont devenus le principal fournisseur d'ETR des décennies 1960 à 1980 (Castor et Hedrick, 2006; Champagne, 2014). Au cours de cette période, la production d'ETR à progresser de manière constante, en parallèle avec la demande croissante engendrée par le développement de technologies modernes (Hansen, 2020). C'est à cette époque que la Chine a reconnu le potentiel considérable de ses propres réserves d'ETR (Champagne, 2014). Par conséquent, vers la fin des années 1970, des mines spécialisées dans l'exploitation de ces métaux ont commencé à émerger en Chine, et sa production a augmenté rapidement à partir de 1985, atteignant un quasi-monopole mondial (Bâlgăr, 2021; Rasmussen, 2021; Zampa, 2021).

La prominence de la Chine dans l'approvisionnement en ETR est le résultat de mesures stratégiques délibérées. En effet, en 1992, le dirigeant chinois Deng Xiaoping déclarait: « the middle East has oil, China has rare earths » (Champagne, 2014; Chang, 2019), encapsulant ainsi l'aspiration du pays à contrôler une part significative du marché mondiale des ETR. Ce secteur a été identifié comme stratégiquement crucial pour le développement économique du pays, et des mesures de protection ont été mises en place, telles que l'interdiction d'investissement étrangers dans l'exploitation des ETR (Mancheri et al., 2019). Les coûts de production et de main-d'œuvre relativement faibles en Chine, combinés à des réglementations environnementales moins rigoureuses ou même inexistantes, ont contribué à faire de la Chine le plus grand exportateur d'ETR, évinçant la plupart des autres producteurs (Zhao et al., 2021). La production chinoise a été caractérisé par une surproduction et des prix de vente extrêmement bas. Au cours des deux dernières décennies, la production chinoise a triplée, atteignant plus de 105 000 tonnes par an en 2017 (Champagne, 2014; Chen et al., 2021).

Ainsi, selon les données les plus récentes (USGS, 2025), les principaux producteurs mondiaux des ETR sont la chine (69,2%), les États-Unis (11,5%), le Myanmar (7,9%), l'Australie, la Thaïlande, et le Nigeria chacun (3,3%), l'Inde (0,7%) et la Russie (0,6%), alors le reste du monde (0,3%) contribuent marginalement à la production mondiale.

2.1.2 Dynamique actuelles du marché mondial des ETR

De 2000 à 2009, le monopole chinois sur les ETR n'a pas soulevé d'inquiétudes majeures parmi les décideurs politiques et industriels étrangers, étant donné que la production était suffisante pour répondre à la demande mondiale (Stegen, 2015). Cependant, en 2010, la Chine a pris la décision stratégique de réduire ses exportations pour préserver ses ressources et protéger son environnement (Mancheri et al., 2019). Selon les données les plus récentes de l'USGS (2025), la chine détient environ 48,9% des réserves mondiales d'ETR, tout en demeurant le principal producteur à l'échelle mondiale.

Au lieu de fournir des ETR à bas prix à d'autres pays industriels, la Chine a maintenant adopté une stratégie visant à attirer les industries dépendantes des ETR sur son territoire (Medeiros et Trebat, 2017). Cela permet des transferts de technologie et la possibilité de produire des biens à forte valeur ajoutée (Champagne, 2014). L'accès aux ETR est devenu une question épineuse, obligeant de nombreuses industries étrangères à se délocaliser en Chine, où les prix locaux plus bas leur permettent de maintenir leur compétitivité (Gavin, 2013; Yu, 2017). Effectivement, la réduction des exportations chinoises, combinée à une demande mondiale croissante, a entraîné une augmentation du prix des ETR (Champagne, 2014; Stegen, 2015). Ces prix varient en fonction de la demande spécifique de chaque élément, de leur pureté et de leur disponibilité (Bagdonas et al., 2022).

Selon une étude récente, chaque année, le marché des ETR, qui est en pleine croissance à cause d'une demande élevée, a besoin d'environ 168 000 tonnes de ces matériaux (Shuai et al., 2023). Une autre étude réalisée montre que, de 2018 à 2030, la quantité totale d'ETR demandés atteindra 315 000 tonnes. Cela représenterait 22% de tout ce qui est produit dans le monde pendant ces années (Li et al., 2019). Les principaux consommateurs des ETR incluent la Chine (80% de la consommation mondiale) (Seaman, 2019), les États-Unis, le Japon, Hong Kong, la Corée du Sud et plusieurs pays d'Europe (Yu et al., 2022). Le Canada en importe également plusieurs centaines de tonnes par an (Menezes, 2022).

2.1.3 Compétition mondiale et potentiel géologique de l'extraction des ETR

La cessation des exportations massives d'ETR par la Chine, combinée à des défis dans les domaines de la substitution et de la récupération, a éveillé l'intérêt des exploitants miniers et des gouvernements, qui y voient une source potentielle de revenus (Champagne, 2014). La production

de ces métaux n'est pas directement proportionnelle aux réserves détectées par pays (Champagne, 2014). En effet, la Chine n'est pas le seul pays à posséder des réserves d'ETR (Champagne, 2014). Le tableau 2.1 montre la production d'ETR par rapport aux réserves pour les pays les plus importants en matière d'exploitation de ces minéraux. Selon les données de USGS (2025), le tableau ci-dessous résume la production annuelle en 2023 et 2024 et les réserves minérales, c'est-à-dire la part des gisements identifiées (mise à jour jusqu'en 2025) qui peut être exploitée avec la technologie actuellement disponible.

Tableau 2.1 Production minière mondiale et réserves estimées en ETR selon USGS (2025)

Pays	Production minière (Mt) en 2023 et 2024		Réserves en ETR (Mt)
Canada	-	-	830000
États-Unis	41600	45000	1900000
Chine	255000	270000	44000000
Australie	16000	13000	5700000
L'inde	2900	2900	6900000
Russie	2500	2500	3800000
Thaïlande	3600	13000	4500
Nigeria	7200	13000	-
Burma	43000	31000	-
Reste du monde	1440	1100	>90,000,000

Les réserves minérales mondiales sont estimées à environ >90,000,000 millions de tonnes (USGS, 2025), dont 86,6% sont localisées en Chine, en Europe de l'Est, aux États-Unis, en Inde, en Australie, au Brésil et au Vietnam (Balaram, 2019). Le Canada et, par extension, le Québec, n'apparait pas parmi les principaux pays producteurs, l'USGS (2025) n'indique aucune production commerciale significative. En revanche, les réserves canadiennes sont estimées à environ 830000 Mt d'oxydes de terres rares, ce qui place le pays parmi les détenteurs de ressources

potentielles importantes. De ce fait, les ressources y restent prometteuses, avec plusieurs gisements encore à l'étape de l'exploration qui pourraient, à moyen terme, entrer en phase d'exploitation. Par conséquent, l'enjeu d'approvisionnement en ETR ne réside pas dans une pénurie de ressources, mais plutôt dans une accessibilité restreinte à cette matière pour les industries (Champagne, 2014; Li et al., 2020).

Face à cette situation, une compétition émerge entre les pays possédant des réserves potentielles pour les exploiter rapidement (Etemad, 2020). L'inquiétude est en effet grandissante chez les pays dont l'industrie est fortement dépendante des ETR, suite au monopole de la Chine. En effet, ce pays principal fournisseur a significativement réduit ses exportations, passant de 60 000 tonnes en 2007 à 30 000 tonnes en 2011 (Champagne, 2014; Mancheri et al., 2019), alors que la demande mondiale continue de croître en parallèle avec le développement de nouvelles technologies (Mancheri et al., 2019). C'est dans ce contexte que les ETR sont classés parmi les métaux critiques dans plusieurs pays incluant les États-Unis et l'Union européenne, en raison de leur approvisionnement incertain et de leur importance cruciale pour les énergies vertes et le secteur de haute technologie (Cherepovitsyn et Solovyova, 2022). L'Union européenne a même indiqué que sans ces éléments, elle ne pourra pas atteindre son objectif défini dans son agenda 2020, qui exige que 20% de la consommation d'énergie sur son territoire provienne d'énergies renouvelables (Alves Dias et al., 2020; Gavin, 2013). Pour le Canada et le Québec, les ETR sont considérées comme un levier stratégique, ils soutiennent la transition vers des technologies plus vertes tout en offrant une nouvelle voie de création de richesse et de diversification économique (Dalpé-Mainville et al., 2021). L'accès incertain à ces matériaux suscite également des inquiétudes au sein des entreprises d'équipements militaires (Salim et al., 2022). Le manque d'ETR, essentiels dans de nombreuses applications, pourrait entraîner des conséquences significatives sur la sécurité nationale (Salim et al., 2022). La projection de l'approvisionnement en ETR prévoit une diversification géographique des sites miniers, notamment en dehors de la Chine (Ilankoon et al., 2022). Compte tenu du faible taux de récupération de ces éléments à partir de produits manufacturés, estimé à moins de 1%, l'industrie a limité la capacité de compter sur les flux de recyclage comme source fiable de matériaux (Champagne, 2014; Stein et al., 2022). De ce fait, une augmentation du nombre de projets miniers est observable à l'échelle globale, signe d'un mouvement vers une extraction accrue de ces éléments (Church et Crawford, 2020). Des initiatives d'extraction des ETR ont atteint des phases avancées dans plusieurs régions, y compris l'Australie,

l'Inde, les États-Unis, le Groenland et l'Afrique du Sud, qui devraient contribuer de manière significative à l'approvisionnement mondial dans un futur proche (Schmid, 2019). La figure 2.4 dépeint les mines principales, actives ou en phase exploratoire avancée en 2021, susceptibles de répondre à la demande mondiale à court terme.

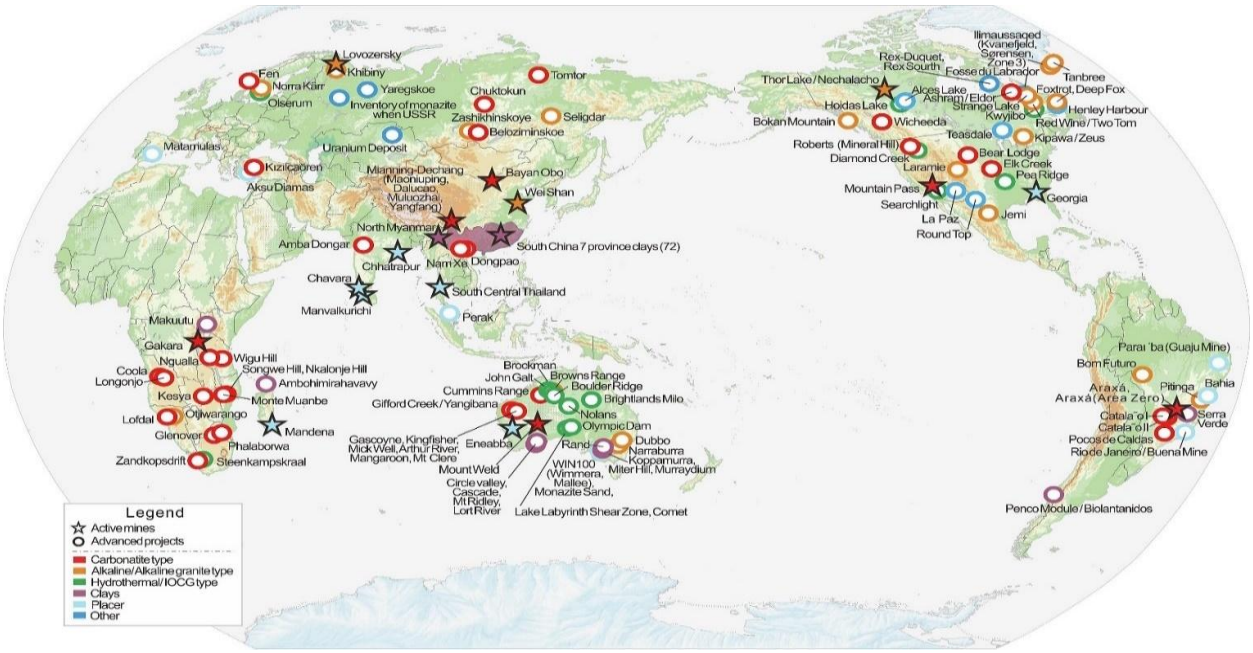

Figure 2.2 Répartition mondiale actuelle des projets relatifs aux ETR, y compris les mines en activité et les projets avancés (Liu et al., 2023)

La figure 2.2, et le tableau 2.2 démontrent que le Canada se positionne parmi un éventail diversifié de concurrents en lice pour l'exploitation des ETR. Un nombre considérable de ces projets (Tableau 2.2) se trouve en phase de développement ou est déjà opérationnel. Par conséquent, il est possible que l'approvisionnement futur de ces éléments soit assuré par la Chine, ainsi que divers projets hors du territoire chinois.

Tableau 2.2 Caractéristiques des principaux gisements d'ETR dans le monde (Zhao, 2017)

	Propriétaire	Pays	Phase	Ressource		Province	Reference
				Tonnage (Mt)	TREO (%)		
Carbonatites							
Ashram	Commerce Ressources	Canada	Évaluation économique primaire	219,8	1,88	Québec	(Boulanger, 2021) (Commerce Ressources 2012)
Mountain Pass	MolyCorp Inc.	États-Unis	En Exploitation	16,7	7,89	Californie	(Tracy, 2020)
Mount Weld	Lynas Corp Ltd.	Australie	En Exploitation	23,2	7,5	Carton d'Yilgarn	(Spandler et al., 2020)
Bear Lodge	Rare Element Ressource Ltd.	États-Unis	Développement	31,8	2,58	Wyoming	(Andersen et al., 2019)
Ngualla	Peak Ressources	Tanzanie	Développement	214	2,15	Rift Est Africain	(Witt et al., 2019)

Tableau 2.2 Caractéristique des principaux gisements d'ETR dans le monde (suite)

	Propriétaire	Pays	Phase	Ressource		Province	Reference
				Tonnage (Mt)	TREO (%)		
Songwe Hill	Mkango Ressources Ltd.	Malawi	Étude de faisabilité	51,1	1,62	Province Alcaline de Chilwa	(Pell et al., 2019)
Maoniuping	Chinalco Rare Earth Co., Ltd.	Chine	En exploitation	40	5	Province du Sichuan	
Roches Alcalines							
Zandkopsdrift	Frontier Rare Earths Ltd.	Afrique du Sud	Étude de faisabilité	31	1,89	Province Métamorphique de Namaqua-Natal	(Harper et al., 2015)
Nechalacho	Vital Metals	Canada	Développement	160	1,38	Yellowknife	(Marion, 2020)

Tableau 2.2 Caractéristique des principaux gisements d'ETR dans le monde (suite)

	Propriétaire	Pays	Phase	Ressource		Province	Reference
				Tonnage (Mt)	TREO (%)		
Bokan mountain	Uncore Rare metals	États-Unis	Evaluation économique primaire	6,99	0,6	Alaska	(Barakos et Mischo, 2021)
Kvanefjeld	Groenland minerals	Groenland	Etude de faisabilité	437	1,1	Gradar	(Thrane et al., 2014)
Norra Karr	Tasman Metals Ltd.	Suède	Etude de faisabilité	23,5	0,59	Ceinture Orogénique	(Barakos et Mischo, 2021)
Round Top	Texas Rare Earth Ressources Corp.	État-Unis	Etude de faisabilité	905	0,06	Texas	(Ilankoon et al., 2022)

2.2 Gisement d'ETR au Canada et Québec

Les dépôts d'ETR peuvent être caractérisés selon les mécanismes qui ont conduit à leur minéralisation (Zhao, 2017). Ces mécanismes comprennent les processus primaires, tels que les processus magmatiques et/ou hydrothermaux, et les processus secondaires (Lusty et Walters, 2010), ou encore ils peuvent être classifiés en fonction des entités géologiques qui abritent la minéralisation (Simandl, 2014). Cette classification prend en compte l'association génétique (primaire vs secondaire) et lithologique des dépôts (Jaireth et al., 2014; Sappin et Beaudoin, 2015). À titre d'exemple, au Québec, Sappin et Beaudoin (2015) ont proposé une classification regroupant les gisements d'ETR en deux grands groupes : les minéralisations primaires, associées aux complexes de carbonatite, aux roches ignées peralcalines ou non associées à des roches ignées alcalines, et les minéralisations secondaires, retrouvées dans les paléocers ou dans des argiles à adsorption ionique.

2.2.1 Les gisements associés aux complexes des carbonatites

Les carbonatites, qualifiées comme des roches ignées de nature intrusive ou extrusive, sont caractérisées par une teneur en minéraux carbonatés supérieure à 50% (Zhao, 2017). Ces formations géologiques se retrouvent typiquement dans des environnements d'extension tectonique, associées à des failles intra-plaques ou des zones de rift (Simandl, 2015; Simandl et Paradis, 2018). Les carbonatites, ainsi que les roches alcalines associées, sont notoirement reconnues pour leur riche concentration en ETR à valeur économique (Mariano, 1989). Les terres rares légères sont couramment extraites des dépôts associés à ces carbonatites (Simandl, 2014). Ces éléments sont surtout présents dans les gisements contenant des minéraux tels que la bastnaésite (ETR)CO_3F et la monazite (ETR, Th)PO_4, illustrés par des sites comme le complexe Eldor (Ashram), Niobec et Oka au Québec, Bayan Obo en Mongolie intérieure (Chine), ou Mountain Pass en Californie, États-Unis (Liu et al., 2023). En plus de ces gisements notamment Ashram, Niobec et Oka présentent également une minéralisation significative en niobium, souvent associée à la pyrochlore.

2.2.2 Les gisements primaires associés aux roches ignées alcalines

Les roches ignées alcalines se distinguent par une concentration accrue en oxydes de sodium et de potassium (Na_2O+K_2O) par rapport à l'oxyde d'aluminium (Al_2O_3) (Zhao, 2017). Ces formations

cristallisent principalement dans des environnements continentaux en extension, anorogéniques, en liaison avec des structures crustales majeurs (Jaireth et al., 2014). Les gisements associés à ces intrusions alcalines affichent une forte teneur en terres rares lourdes (Castor et Hedrick, 2006). De nombreux exemples de ces dépôts peuvent être trouvés au Canada, par exemple le gisement de Nechalacho dans les territoires du Nord-Ouest, le gisement de Hoidas en Saskatchewan, le gisement de Kvanefjeld associés au complexe intrusif d'llimaussaq, au Groenland, ainsi que dans la péninsule de Kola, avec des gisements issus du complexe intrusif de lovozero.

2.2.3 Les gisements primaires associés aux pegmatites granites, migmatites et skarns

Les pegmatites, les granites et les migmatites sont formées lors des événements syn- à tardi-tectoniques. À titre d'exemple, le gisement de Strange Lake au Québec illustre ce type de formation, bien qu'il présente des caractéristiques particulières, il existe d'autres gisement comparable à l'échelle mondiale notamment Norra Karr (suède) et Kvanefjeld (Groenland), également connu pour leur enrichissement en ETR dans des contextes granitiques ou pegmatitiques (Ferré et al., 2002). Ces roches se cristallisent dans des environnements orogéniques continentaux pendant les phases de métamorphismes de haut grade et d'anatexie crustale (Ferré et al., 2002). En ce qui concerne les skarns, ils se développent dans des contextes orogéniques où des intrusions felsiques sont injectées dans des roches sédimentaires carbonatées (Sappin et al., 2015). Les gisements associés à ces formations sont généralement caractérisés par des tonnages et des concentrations faibles en minéraux enrichis en éléments des ETR (Chakhmouradian et Zaitsev, 2012).

2.2.4 Les gisements secondaires associés aux paléoplacers

Les placers et paléoplacers correspondent à des accumulations alluviales provenant de l'érosion de divers types de roches (granites, roches métamorphiques et/ ou sédimentaires) où se concentrent des minéraux lourds qui résistent à l'altération chimique et à l'abrasion (Robertson et Gould, 1983). Les placers et paléoplacers constituent une source de métaux précieux, d'uranium (U), de zirconium (Zr), d'oxydes de titane (Ti), de minéraux porteurs de tantale (Ta) et de niobium (Nb), ainsi que de minéraux porteurs d'ETR (Simandl, 2014). Parmi les dépôts les plus connus, le gisement de Mount Weld en Australie ainsi que le gisement de Kerala en Inde, tous les deux reconnus pour leurs paléoplacers riches en ETR, principalement extraits comme sous-produits

(Castor et Hedrick, 2006). L'exploitation de ces gisements repose principalement sur la gestion des déchets radioactifs issus du traitement du minerai (Haque et al., 2014). À titre d'exemple, les minéraux principaux renfermant les ETR dans les placers et paléoplacers sont le xénotime YPO_4, la monazite (ETR, Th)PO_4 et le zircon $ZrSiO_4$ (Kanazawa et Kamitani, 2006).

2.2.5 Les gisements secondaires associés aux argiles à l'adsorption ionique

Les accumulations d'argiles à adsorption ionique, qui peuvent s'étendre sur une épaisseur allant jusqu'à 20 mètres (Simandl, 2014), sont le produit de processus d'altération biochimique intense dans des climats subtropicaux chauds et humides, mais peuvent également se former dans les environnements marins profonds (Sappin et al., 2015). Ces dépôts incluent notamment les gisements de la province de Jiangxi en Chine (comme ceux de Longnan ou Ganzhou), considérés comme les plus grands réservoirs mondiaux de terres rares lourdes, ainsi que le gisement Serra Verde au Brésil (Sappin et al., 2015). Cependant, en raison de leur accessibilité et de leur facilité de traitement, ces dépôts sont économiquement viables (Sappin et al., 2015). Plus spécifiquement, l'extraction des ETR peut être réalisée sur place ou par lixiviation à l'aide de solutions de chlorure de sodium ou de sulfate d'ammonium (Simandl, 2014). L'exploitation de ces dépôts associés aux argiles a engendré d'importants dommages environnementaux en Chine, tels que la déforestation et la pollution atmosphérique (Yang et al., 2013). En effet, l'extraction de ces gisements implique le déplacement de la couverture superficielle (sol et végétation) entraînant une déforestation massive, et la création de bassins de résidus miniers et de tas de déchets rocheux (Yang et al., 2013). Actuellement, la demande en ETR lourds s'accroît plus rapidement que ce que les argiles cationiques peuvent offrir pour répondre aux besoins du développement industriel.

2.2.6 Les gisements primaires d'oxydes de Fe-Cu-Au

Les gisements d'oxydes de Fe-Cu-Au (IOCG) représentent une catégorie de dépôt à faible teneur en sulfures, contenant une proportion significative (plus de 20%) de magnétite pauvre en Ti et /ou d'hématite d'origine hydrothermale, parmi les types des dépôts les plus connus, l'exemple du gisement Kwijibo au Québec et celui d'Olympique Dam en Australie (Corriveau, 2007; Sappin et Beaudoin, 2015). Ces minéraux se retrouvent sous différentes formes telles que brèches, veines, minéralisations disséminées et lentilles massives (Corriveau, 2007). Leur formation a généralement lieu dans les contextes géologiques de rifts tardi- à post- orogénique, dans des environnements intra-cratoniques, intra-arcs et arrière-arcs en extension, ainsi qu'au niveau des failles et des

contacts géologiques (Corriveau, 2007). Dans ce cas, la zone brèchique renferme entre 3000 et 5000 ppm d'oxydes de terres rares, tandis que la zone centrale, composée principalement d'hématite et de quartz, est encore plus riche (Reynolds, 2000). Les minéraux porteurs majeurs d'ETR dans ces gisements d'oxydes de Fe-Cu-Au- (ETR) sont la bastnaésite (ETR)CO_3F, la fluorencite (ETR)$Al_3(PO_4)_2(OH)_6$, et la synchysite (ETR)$Ca(CO_3)_2F$ (Simandl, 2014).

De ce fait, la recherche se tourne vers d'autres sources potentielles d'ETR, comme les boues des fonds marins, qui pourraient représenter une ressource d'ETR conséquente, en raison de leur forte affinité pour les oxy-hydroxydes de fer et la phillipsite $(K, Na, Ca)_{1-2}(Si, Al)_8O_{16}.6H_2O$ (Kato et al., 2011). D'autres sources d'ETR existent également, comme les oxydes de fer-titane (ilménite) et les phosphates (apatite, monazite, et xénotime). Bien que ces gisements ne soient généralement pas économiquement viables pour l'extraction d'ETR, ils peuvent être exploités pour l'ilménite $FeTiO_3$, les phosphates, et le zircon (Chakhmouradian et Zaitsev, 2012).

2.3 Localisation et histoire du complexe Eldor

Le site à l'étude correspond au gisement Ashram du complexe Eldor, situé dans le nord du Québec et développé par la société Commerce Ressources Corp. Cette partie présente une vue d'ensemble de la découverte du complexe de carbonatite d'Eldor et de son gisement d'ETR d'Ashram, ainsi que les recherches antérieures menées à leur sujet.

Le gisement Ashram, situé dans le nord du Québec, à environ 130 km au sud de Kuujjuaq, fait partie du complexe de carbonatite d'Eldor, une formation géologique d'intérêt stratégique explorée par Commerce Resources Corp. Découvert en 1981 par la société Eldor Resources Ltd. (Beland et Williams-Jones, 2021), ce complexe s'étend sur environ 7 km par 3 km, à proximité de Kuujjuaq, et se développe au sein des formations rocheuses de la Fosse du Labrador (Beland et Williams-Jones, 2021). Cette dernière correspond à l'avant-pays de l'orogène du Nouveau-Québec, une ceinture paléoprotérozoïque de plis et de chevauchements formée sur la bordure est de la province du Supérieur (Clark et Wares, 2006; Gagnon et al., 2015b). La découverte initiale fut liée à une campagne régionale d'échantillonnage lacustre et sédimentaire ciblant l'uranium, suivie par des levés radiométriques aéroportés ayant mis en évidence des anomalies enrichies en niobium, tantale et ETR. Bien que l'âge précis d'intrusion du complexe reste inconnu, il est postérieur à 1870 ± 4 Ma, soit l'âge U-Pb d'une rhyodacite recoupée par la carbonatite (Machado et al., 1997). Certains auteurs suggèrent une relation contemporaine entre cette intrusion et la Formation d'Aulneau,

composée de tufs dolomitiques et interprétée comme résultant de dépôts volcaniques et sédimentaires intercalés dans un environnement marin peu profond (Clark et Wares, 2006).

Malgré son importance économique potentielle, le complexe d'Eldor a fait l'objet d'un nombre limité d'études scientifiques (Beland et Williams-Jones, 2021). Les travaux existants se sont principalement concentrés sur l'évaluation de son potentiel minéralogique, notamment sur la minéralisation en Nb-Ta associée à des phases telles que la pyrochlore, ainsi que sur la minéralisation en ETR, qui se trouve majoritairement dans des minéraux spécifiques comme la monazite, la bastnaésite et la parisite $(ETR)_2Ca(CO3)_3F_2$ (Birkett et Clark, 1991; Mitchell et Smith, 2017).

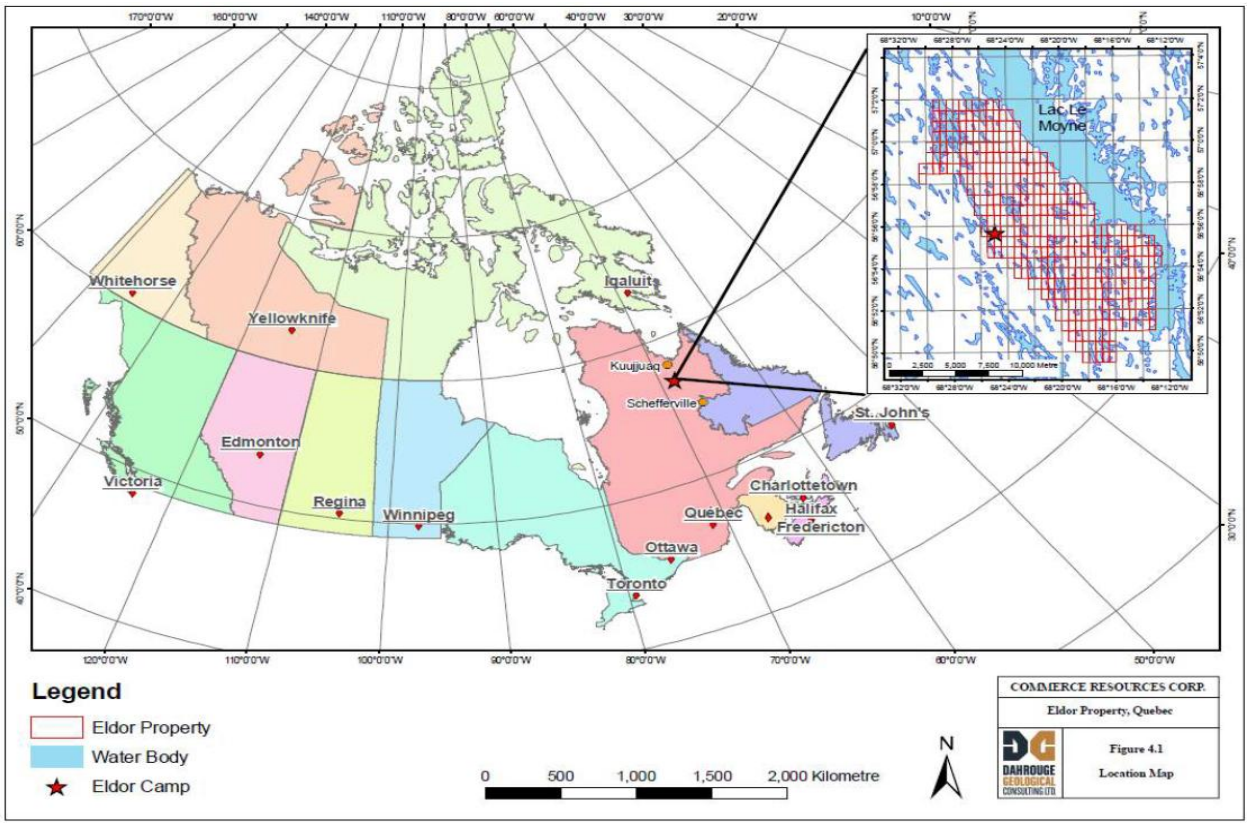

Figure 2.3 Carte de localisation générale de gisement Ashram (Commerce Ressources, 2012)

2.3.1 Travaux effectués par Commerce Ressources

Jusqu'en 2007, peu de travaux d'exploration minière avaient été réalisés sur le complexe de carbonatite d'Eldor. Cette année-là, la société Commerce Resources Corp (Beland et Williams-Jones, 2021), acquiert la propriété et oriente ses recherches vers le niobium et le tantale, à partir

d'indices géologiques historiques (Beland et Williams-Jones, 2021). Deux ans plus tard, la découverte d'une minéralisation en ETR à proximité du centre du complexe entraîne un changement de priorité, dans un contexte où la demande mondiale pour les ETR augmente rapidement (Beland et al., 2021). Cette zone centrale prend alors le nom de gisement d'Ashram, sur lequel Commerce Resources Corp. a réalisé plusieurs campagnes de forage au diamant afin d'évaluer son potentiel (Beland et Williams-Jones, 2021). En 2012, une estimation basée sur 45 trous totalisant 16 km de forages a permis de définir une ressource mesurée et indiquée de 29,3 millions de tonnes (Mt) à 1,90 % en oxydes de terres rares totaux (TREO), ainsi qu'une ressource présumée de 219,8 Mt à 1,88 % TREO, en considérant une teneur de coupure de 1,25 % (Beland et Williams-Jones, 2021; Gagnon et al., 2015a). Le gisement présente une composition typique des carbonatites, avec un enrichissement dominant en terres rares légères. Toutefois, une zone enrichie en terres rares moyennes à lourdes (MHREO) a été identifiée, ce qui constitue une caractéristique rare pour ce type de gisement et lui confère un intérêt économique accru (Beland et Williams-Jones, 2021). D'après les données disponibles en 2016, plus de 170 trous représentant plus de 25 km de carottes ont été réalisés. En 2017, un partenariat a été établi avec Saville Resources Corp. pour explorer la minéralisation en Nb dans les secteurs périphériques du complexe Eldor (Beland, 2021).

2.3.2 Cadre géologique régional et local du gisement Ashram

Le gisement d'Ashram est situé dans le complexe d'Eldor, qui occupe une position centrale dans l'orogène paléoprotérozoïque du Nouveau Québec, au centre-est de la région (Beland et Williams-Jones, 2021). Cet orogène est interprété comme la marge occidentale de la partie sud-est de la Province de Churchill, flanquée à l'ouest par la province archéenne du Supérieur et au sud par la province protérozoïque de Grenville (Beland et Williams-Jones, 2021). Le complexe de carbonatite d'Eldor se distingue par sa forme elliptique, mesurant environ 7 km de long et 3 km de large (Clark et Wares, 2006). La séquence d'intrusions de carbonatites au sein du complexe d'Eldor a conduit à la mise en place de différents types de carbonatite (Clark et Wares, 2006). Ces unités sont divisées en trois phases évolutives : précoce (calcio-carbonatite ou carbonatite à calcite), moyenne (magnesiocarbonatite ou carbonatite à dolomite) et tardive (ferro-carbonatite ou carbonatite à ferro-dolomite). La carbonatite de la phase intermédiaire est associée à une minéralisation de pyrochlore et de colombite (Ta-Nb), tandis que la carbonatite de la phase tardive abrite la minéralisation d'ETR

du gisement Ashram (Gagnon et al., 2015a). Cette distinction entre les phases carbonatitiques et les minéralisations associées permet de clarifier la distribution respective des métaux stratégiques du complexe d'Eldor. Elle évite de confondre la minéralisation en niobium-tantale, principalement portée par la pyrochlore et la columbite, avec celle en ETR, hébergée surtout par la monazite, la bastnaésite et la parisite.

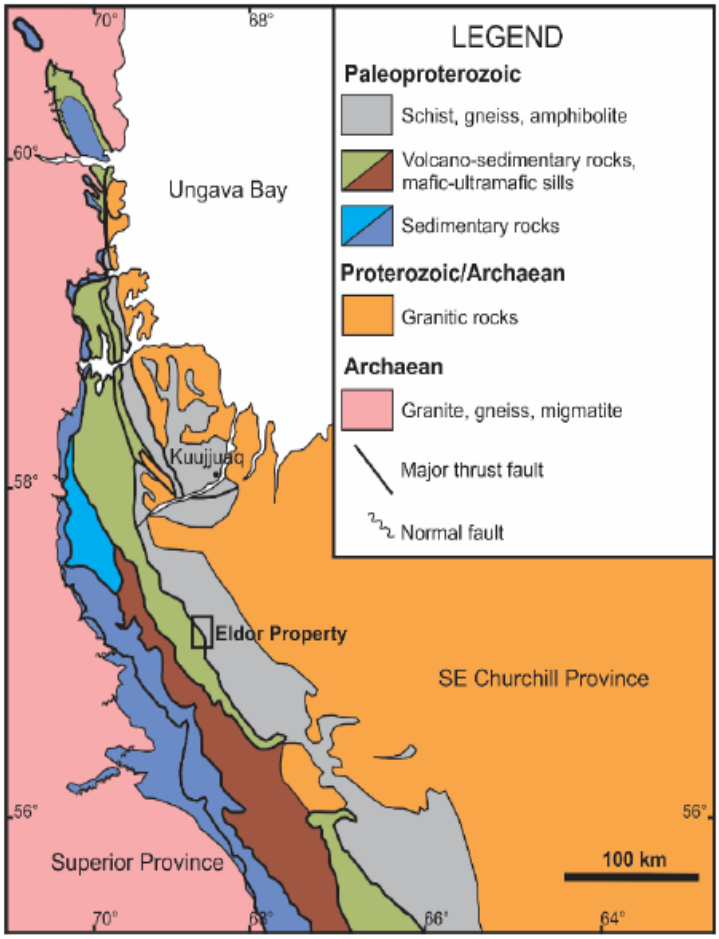

Figure 2.4 Carte géologique régionale montrant la localisation du gisement Ashram (rectangle) (Gagnon et al., 2015b)

Les travaux réalisés jusqu'à présent sur le complexe d'Eldor ont permis d'identifier plusieurs unités de carbonatite dans la zone du « Rim », située en périphérie du gisement Ashram. Cette zone est constituée de deux unités de carbonatite à calcite (1 et 2) et d'une unité de carbonatite à dolomite, cette dernière recoupant les précédents et représentant l'unité la plus récente (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). Les assemblages minéralogiques dominants sont constitués

principalement de carbonates. Outre ces derniers, d'autres minéraux sont également présents, tels que l'apatite $Ca_5(PO_4)_3$, la phlogopite $KMg_3(AlSi_3O_{10})OH_2$, la magnétite Fe_3O_4, le pyrochlore $(Na,Ca)_2Nb_2O_6(OH,F)$, ainsi que localement de la fluorite CaF_2 et de la fersmite $CaNb2O_6$. Le gisement Ashram lui-même est subdivisé en trois zones principales de minéralisation, désignées zones A, B et BD, accompagnées d'une brèche faiblement minéralisée (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). Les types de roches « fénite » sont des roches de paroi/roche encaissante qui ont été métasomatisées par des fluides riches en K et en Na provenant de la carbonatite intrusive (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). Elles peuvent être identifiées à l'œil nu malgré leur aspect hétérogène. Elles sont généralement à grain fin, mais peuvent être à grain moyen dans de rares cas, et présentent une couleur grise foncé/brun, bleue ou verte en fonction de la minéralogie spécifique (phlogopite, Na-amphibole ou pyroxène, respectivement) (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). Les fénites sont presque toujours recoupées par de multiples veinules de carbonatite entourées d'un halo d'altération intense de phlogopite (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). Le lamprophyre peuvent être définies de manière vague comme des roches ultra-potassiques généralement composées de 50% ou plus de phlogopite d'origine magmatique (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). Elles sont souvent foliées, ce qui leur donne un aspect schisteux, contiennent des veines de calcite/dolomite et parfois des porphyroblastes d'albite ou de quartz. L'unité est typiquement petite, allant de plusieurs centimètres à plusieurs mètres de largeur, et recoupe toutes les lithologies du complexe de carbonatite d'Eldor (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017).

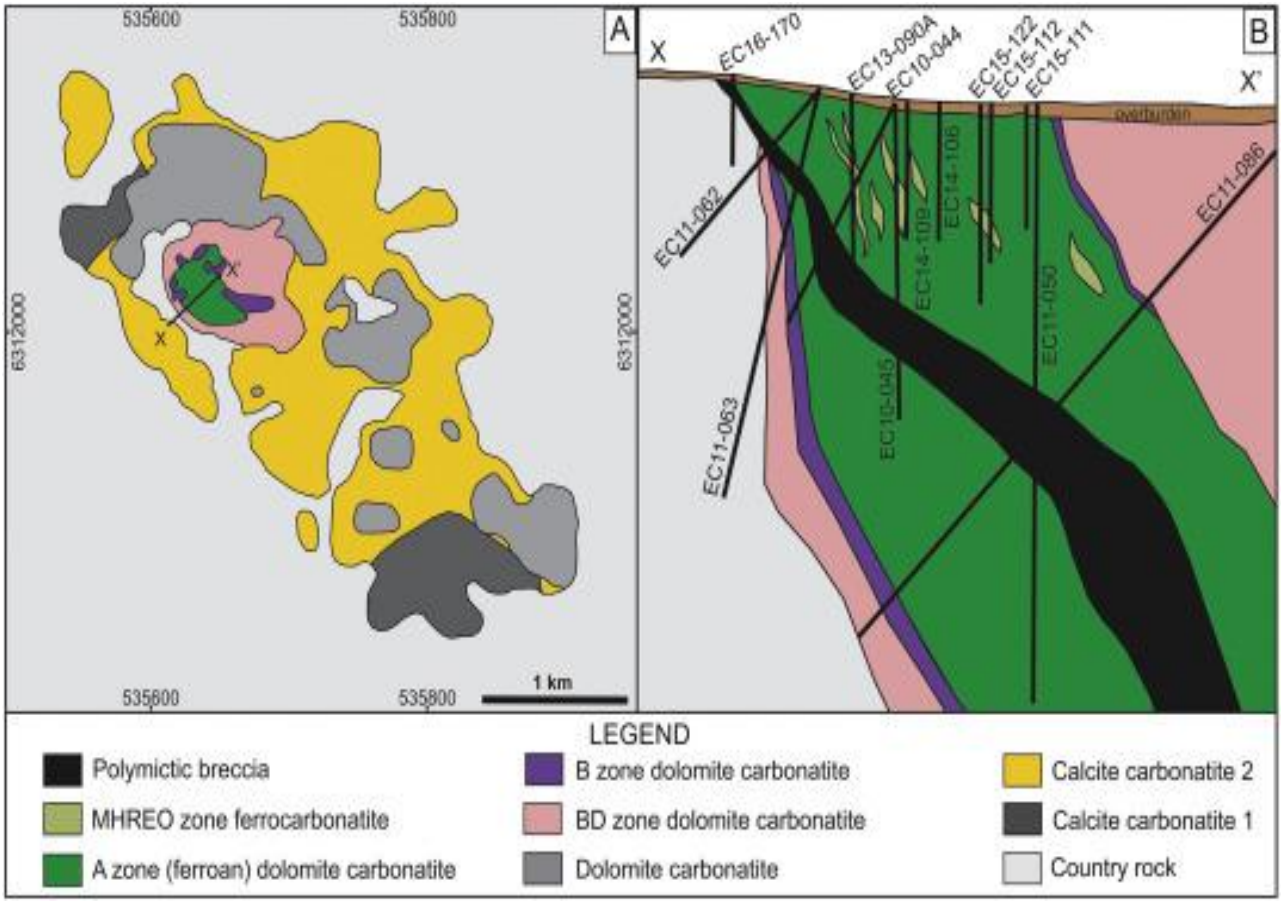

Figure 2.5 A) Carte géologique simplifiée du complexe de carbonatite d'Eldor au niveau de 100 m, basée sur les données issues des carottes de forage. B) Coupe géologique simplifié selon le transect X-X' illustré en A), incluant les traces des forages utilisés pour construire la section (Beland et Williams-Jones, 2021)

2.3.3 Minéralisation du gisement Ashram

Les ETR d'Ashram sont associés à la phase tardive de carbonatite qui est encaissée dans la calcio-carbonatite de la phase précoce et des unités de « glimmérite » qui sont un type de fénite associées. Le gisement est orienté NE-SO et adopte une forme elliptique mesurant environ 700 mètres de long par 500 mètres de large, avec une profondeur estimée à 600 mètres (Gagnon et al., 2015b). La composition minéralogique du gisement est caractérisée par sa simplicité, incluant principalement des minéraux d'ETR tels que la monazite-bastnaésite-xénotime (Gagnon et al., 2015b). Sur la base de la concentration totale en oxydes de terres rares (TREO), le gisement d'Ashram peut être divisé en trois zones minéralisées principales : les zones A et B présentent les concentrations les plus

élevées, avec des teneurs en TREO allant de 1,5% à 3% (Gagnon et al., 2015b), tandis que la zone BD présente les concentrations les plus faibles, inférieure à 1% de TREO (Gagnon et al., 2015b). Une zone particulière désignée MHREO, située près de la surface et au centre du gisement, se distingue par un enrichissement important en ETR intermédiaires et lourds, et est considérée comme faisant partie de la zone A (Gagnon et al., 2015b).

La minéralisation en ETR du gisement d'Ashram est principalement constituée de monazite, de flourocarbonates d'ETR (tels que la bastnaésite, la parisite et la synchysite, bien que ces derniers soient présents dans des proportions moindres) et, plus rarement, de xénotime (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). La monazite se présente sous forme d'excroissances dans l'apatite ou en association avec des assemblages de quartz et de rutile (Beland et Williams-Jones, 2021; Gagnon et al., 2015a; Mitchell et Smith, 2017). La bastnaésite, en revanche, se caractérise par une morphologie fibreuse et occupe des cavités dans les dolomies, apparaît sous forme de veines composées de grains xénomorphes en association avec des minéraux Y-Nb-Ti et d'agrégat au sein de fluorites (Beland et Williams-Jones, 2021; Gagnon et al., 2015a; Mitchell et Smith, 2017). Le xénotime représente la phase hôte dominante pour les terres rares lourdes, se présentant sous forme de grains xénomorphes à hypidiomorphes dans des amas de quartz, des veines de ferro-carbonatite en tant que minéral accessoire, souvent associés à des monazites et/ou des bastnaésites disséminées (Beland et Williams-Jones, 2021; Gagnon et al., 2015a; Mitchell et Smith, 2017).

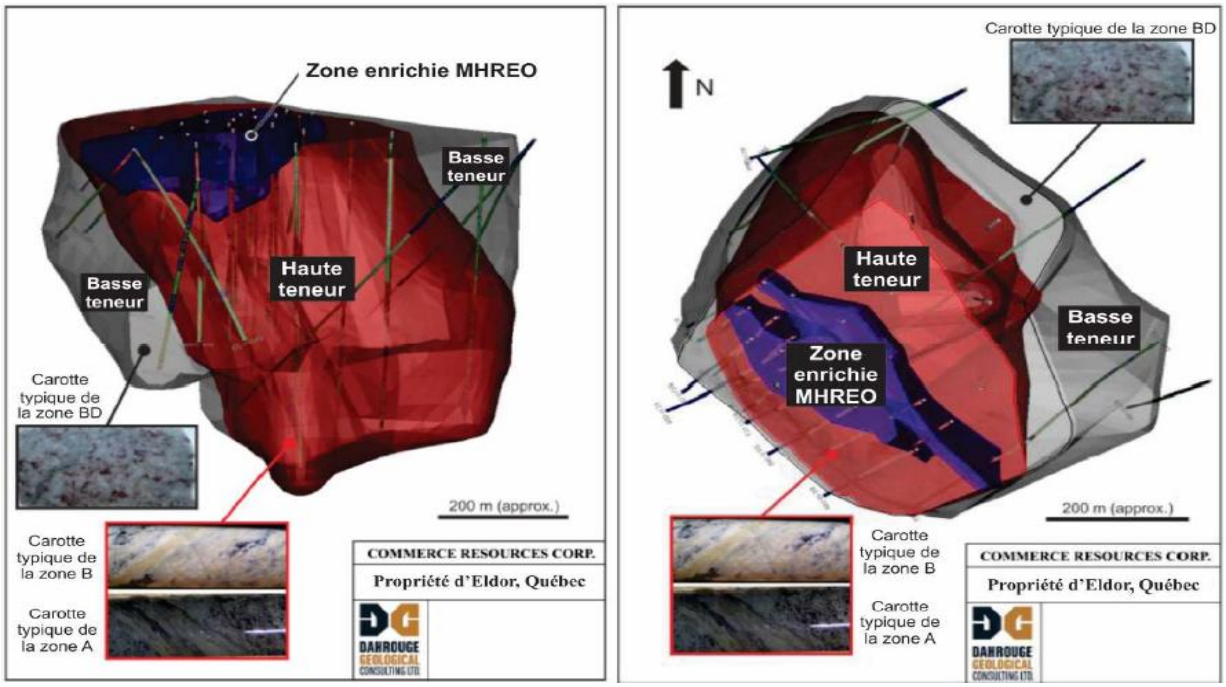

Figure 2.6 Modélisation 3D de la répartition des zones à haute et basse teneur du gisement Ashram. À gauche : vue en coupe longitudinale orientée vers le nord, illustrant la distribution verticale des zones à hautes et basse teneur ainsi que la zone enrichie en MHREO (terres rares moyennes et lourdes). À droite : vue en plan, montrant la disposition spatiale des différentes zones à l'intérieur du gisement (Gagnon et al., 2015b)

2.3.4 Gestion des rejets

Les résidus générés par l'usine de traitement et l'usine de craquage seront stockés et confinés dans une vallée ou une dépression naturelle sèche à proximité de la zone minière (Gagnon et al., 2015a). Cette vallée sera barrée et aménagée de manière stratégique pour tenir compte des contraintes environnementales locales (Gagnon et al., 2015b). L'eau décantée du bassin de polissage sera réutilisée dans l'usine de traitement, contribuant ainsi à la réduction de la consommation d'eau fraîche (Gagnon et al., 2015b). Les résidus issus de l'usine de traitement et de craquage ne sont pas considérés comme générateurs d'acide et ne contiendront pas d'éléments nocifs ni de métaux lourds qui nécessiteraient l'installation d'une usine de traitement à la chaux (Gagnon et al., 2015b).

De plus, selon le rapport d'étude économiques préliminaire (Gagnon et al., 2015b), ces résidus ne sont pas jugés radioactifs, car la radioactivité du thorium, seul élément radioactif présent, demeure conforme aux normes en vigueur (Gagnon et al., 2015b).

Les dépôts des ETR sont classés comme des dépôts de faible teneur (de l'ordre de quelques %) (Chakhmouradian et Zaitsev, 2012; Nadeau et al., 2015). L'acidité résultant de l'oxydation des sulfures présents dans les résidus miniers des mines des ETR non associés aux carbonatites peut constituer un enjeu environnemental important. En revanche, dans les gisements liés aux carbonatites, la présence abondante des carbonates permet généralement de neutraliser efficacement l'acidité générée par cette oxydation. Toutefois, cette neutralisation peut aussi favoriser la dissolution de diverses phases minéralogiques, incluant les minéraux porteurs des ETR (Lim et al., 2016). Cette dissolution est susceptible de générer des eaux de drainage minier contaminées par des ETR et d'autres éléments toxiques tels que Fe, Mn, Mg, Cd, Ni, ou As (Edahbi et al., 2019). Les concentrations des éléments libérés peuvent dépasser les normes environnementales. Les connaissances sur la libération des ETR à partir des rejets miniers sont très limitées (Edahbi et al., 2019). Pour prédire la qualité des eaux de drainage minier futures, une meilleure compréhension de la réactivité des minéraux porteurs des ETR est nécessaire (Edahbi et al., 2019).

La géochimie des ETR est étroitement liée à la nature des minéraux hôtes dans lesquels ils se trouvent. Dans certains minéraux tels que la monazite, la bastnaésite ou la parisite, les ETR constituent des composantes majeures de la structure cristalline. Dans d'autres cas, ils sont incorporés par substitution isomorphe au sein de la matrice cristalline de minéraux tels que les silicates, carbonates et phosphates en fonction de leur rayon ionique et de la charge des ions (figure 2.7) (Edahbi et al., 2019). Les ETR lessivés en solution se présentent sous trois formes : (i) associées à des particules en suspension, (ii) associées à des microparticules de type colloïdal et (iii) sous forme d'ions libres et/ou dissous (Sholkovitz, 1995). Par conséquent, les particules fines joueront un rôle clé dans le transport des ETR (Edahbi et al., 2019). Pour parvenir à cette compréhension, une étude approfondie de la géochimie des ETR nécessite (1) une compréhension de la géochimie de leurs minéraux porteurs, (2) l'identification des facteurs contrôlant leur réactivité, et (3) la détermination des processus principaux régissant la mobilité des ETR (Costis et al., 2021; Edahbi et al., 2019).

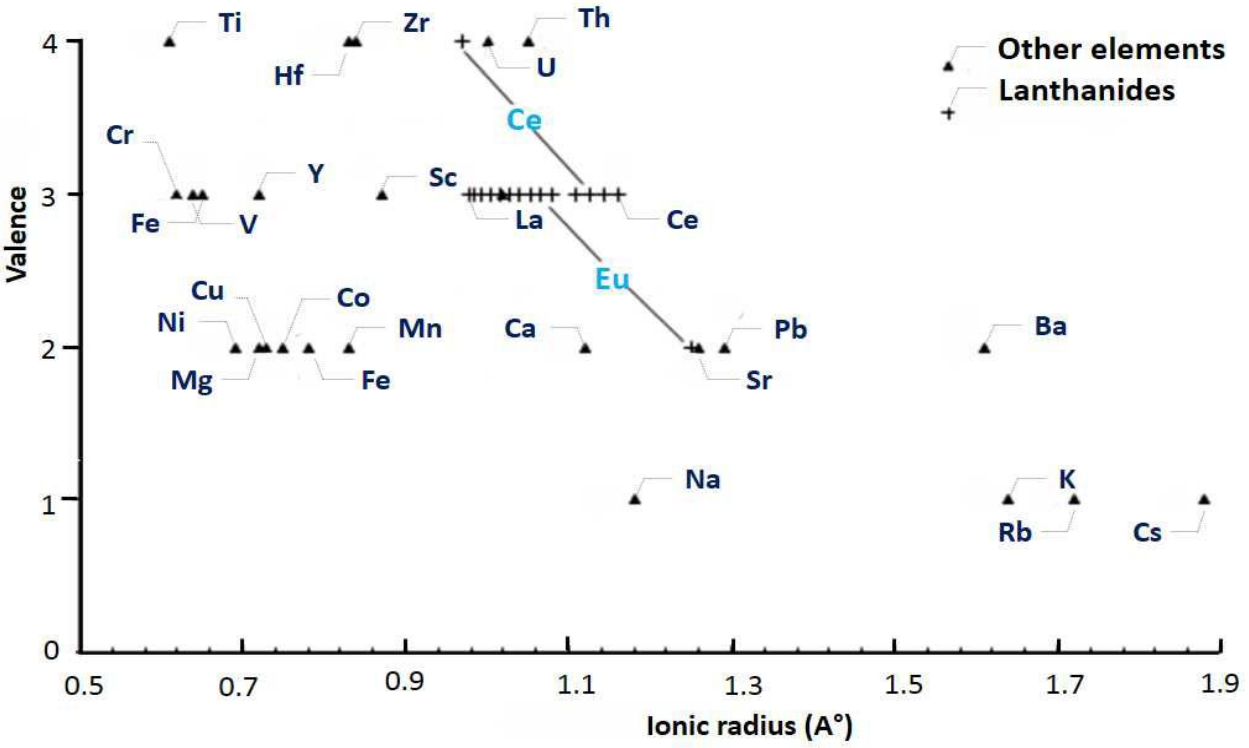

Figure 2.7 Relation entre le rayon ionique et la valence des ETR et des autres éléments métalliques (Lipin et al., 1989)

2.3.5 Réactivité des ETR dans les carbonatites

2.3.5.1 Réactivité des carbonates dans les carbonatites

Au cours de leur processus de formation, les carbonates peuvent être associés à différents éléments de terres rares (ETR). Ces carbonates se caractérisent par une porosité élevée et de grandes capacités de sorption (Einsele, 2000). Il est reconnu que les minéraux de carbonates courants tels que la calcite $CaCO_3$, la dolomite $CaMg(CO_3)_2$ ou l'ankérite $Ca(Fe^{2+}, Mg, Mn)(CO_3)_2$, présentent une réactivité chimique plus élevée que les silicates, phosphates ou oxy-hydroxydes, suivant une séquence réactionnelle décroissante de réactivité établie comme suit : calcite > dolomite > Mg-ankérite > ankérite > sidérite (Blowes et al., 1994). Toutefois, cette séquence concerne principalement les carbonates non porteurs d'ETR, qui participent aux réactions de neutralisation, sans nécessairement contenir des ETR. Les principaux facteurs influençant la dissolution des carbonates en conditions naturelles sont la pression partielle de CO_2, le pH, la température et la présence de matières organiques (Prigiobbe et Mazzotti, 2013). Bien que les carbonatites soient

généralement riches en minéraux capables de neutraliser l'acidité, l'oxydation des minéraux sulfureux présents en faibles proportions (1 à 2%) peut localement abaisser le pH et favoriser, dans certaines conditions, la dissolution partielle des phases carbonatées porteuses d'ETR. Ce phénomène reste toutefois limité dans les systèmes dominés par une forte capacité de neutralisation (> 50% de carbonates).

2.3.5.2 Réactivité des minéraux porteurs d'ETR

Outre les carbonates, les minéraux carbonatés porteurs d'ETR, tels que la bastnaésite ou la parisite, peuvent présenter un comportement géochimique distinct, et leur contribution à la neutralisation est négligeable dans le cadre des scénarios environnementaux, notamment lorsqu'ils sont exclus du concentré final (Edahbi et al., 2019). Diverses configurations de systèmes carbonatés ont été identifiées, à savoir les systèmes homogènes fermés, les systèmes homogènes ouverts, les systèmes hétérogènes fermés, et les systèmes hétérogènes ouverts (Appelo et Postma, 2004).

La réactivité des minéraux carbonatés porteurs d'ETR est variable, les carbonates d'ETR (bastnaésite, parisite, synchysite) sont relativement sensibles aux processus de dissolution, particulièrement en présence d'acides générés par l'oxydation des sulfures (Edahbi et al., 2019). Les phosphates d'ETR (monazite, xénotime), en revanche sont beaucoup plus résistants à l'altération chimique. Cette faible réactivité explique leur persistance dans de nombreux gisements secondaires, notamment dans des dépôts de type paléoplacers (sables enrichis en monazite-xénotime) (Edahbi et al., 2019).

En conditions météoriques, il est donc probable que les ETR relâchés dans l'environnement proviennent principalement de la dissolution des carbonates d'ETR, tandis que les phosphates restent stables (Edahbi et al., 2019). La dissolution de ces phases minérales peut se dérouler selon les équations chimiques suivantes (Edahbi et al., 2019) :

(ETR, Ba, Ca, Sr, Th, U, F) $CO_3 + H_2O + CO_2 \rightarrow ETR^{3+} + Ba^{+} + Ca^{2+} + Sr^{2+} + F^{-} + Th^{4+} + U^{6+} + 2HCO_3^{-}$ (2.1) (Edahbi et al., 2019)

(ETR, Ba, Ca, Sr, Th, U, F) $CO_3 + H_2SO_4 \rightarrow ETR^{3+} + SO_4^{2-} + Ba^{+} + Ca^{2+} + Sr^{2+} + F^{-}\ Th^{4+} + U^{6+} + 2HCO_3^{-}$ (2.2) (Edahbi et al., 2019)

Ces réactions mettent en évidence que la dissolution des carbonates d'ETR produit en solution des ions de calcium, de baryum, de strontium et d'ETR, ainsi que des contaminants traces de thorium

et d'uranium (Edahbi et al., 2019). L'acide généré par l'oxydation des sulfures est complètement neutralisé par les carbonates présents en grandes quantités dans les carbonatites, y compris ceux contenant des ETR, ce qui permet de maintenir un pH proche de la neutralité à légèrement alcalin, favorisant ainsi la précipitation des ETR sous forme de fluorures ($ETRF_3$), de chlorures ($ETRCl_3$), et d'oxy-sels tels que les phosphates ($ETRPO_4$) et les sulfates ($ETRO_4$), caractérisés par une faible solubilité alcaline (Edahbi et al., 2019).

Tableau 2.3 Constantes du produit de solubilité des composés d'ETR (Edahbi et al., 2019).

Composition	Formule	K_{sp}	Reference
ETR carbonate	$ETR_2(CO_3)_3$	$10^{-28.25}$-$10^{-35.77}$	(Firsching et al., 1986)
Fluor d'yttrium	YF_3	$8.62*10^{-21}$	(David et al., 2000)
Hydroxyde d'yttrium	$Y(OH)_3$	10^{-22}	(David et al., 2000)
ETR phosphate	$ETRPO_4$	10^{-24}	(Firsching et al., 1993)

Tableau 2.4 Les principaux facteurs contrôlant la réactivité des carbonates d'ETR (Edahbi et al., 2019)

Paramètre	Impact sur les carbonates	Reference
Pression partielle dans le cas d'un système fermé	L'augmentation de la PCO_2 favorise la dissolution des carbonates et donc une production importante d'alcalinité	(Prigiobbe et Mazzotti, 2013) (Tavares et al., 2015)

Tableau 2.4 Les principaux facteurs contrôlant la réactivité des carbonates d'ETR (suite)

pH	La vitesse de dissolution des carbonates est inversement proportionnelle au pH	(Arvidson et al., 2003) (Alkattan et al., 1998)
Température	La solubilité des carbonates diminue avec l'augmentation de la température	(Arvidson et al., 2002) (Zendah et al., 2013) (Peng et al., 2015)
Matière organique	La présence de CO_2, d'acides fulviques et humiques peut augmenter de manière significative la dissolution des carbonates.	(Bennett et al., 1988) (Koriko et al., 2007) (Tamir et al., 2013)

2.3.5.3 Réactivité des silicates

Comparée aux carbonates, la dissolution des silicates est minime à un pH presque neutre, mais devient importante lorsque le pH diminue (Gruber et al., 2016; Lammers et al., 2017). La dissolution des minéraux silicates est généralement incongruente et est influencée par le pH, la structure minérale, la composition minéralogique, les facteurs environnementaux externes et la température (Sherlock et al., 1995). Par exemple, les équations ci-dessous, montrent que la dissolution de l'anorthite, un feldspath plagioclase, peut-être cohérente ou incohérente (Edahbi et al., 2019). Dans le contexte précis du gisement Ashram, la contribution des silicates (principalement feldspaths et micas) à la libération des ETR est cependant très faible, étant donné leur teneur très limitée en ETR (Edahbi et al., 2019). Les silicates typiquement enrichis en ETR, comme l'allanite, ne sont pas représentés de manière significative dans les échantillons étudiés (Edahbi et al., 2019; Mitchell et Smith, 2017).

$(Ca, ETR)Al_2Si_2O_8 + 2H^+ + 6H_2O \rightarrow Ca^{2+} + 2Al^{3+}\ 2\ H_4SiO_4 + ETR^{3+} + 6OH^-$ (2.3) (Edahbi et al., 2019)

$(Ca, ETR)Al_{12}Si_2O_8 + 2H^+ + H_2O \rightarrow Ca^{2+} + ETR^{3+} + Al_2Si_2O_5(OH)_4$ (2.4) (Edahbi et al., 2019)

2.3.5.4 Réactivité dans les phosphates

D'autres minéraux phosphates susceptibles de libérer des niveaux significatifs d'ETR, notamment La, Ce, Pr et Nd, sont l'apatite $Ca_5(PO_4)_3F$, la monazite et le xénotime (Edahbi et al., 2019). L'apatite est la source la plus importante de phosphore et de fluor dans la croûte terrestre (Edahbi et al., 2019). L'apatite est particulièrement importante dans ce contexte puisqu'elle peut contenir jusqu'à 1,5% d'oxydes d'ETR (Mitchell et Smith, 2017). Leur dissolution dans les systèmes naturels libère du fluor, des ETR, du calcium et du phosphore (Ben Cherifa et al., 2001; Bilal et al., 1998). Ces phosphates sont beaucoup moins solubles dans les acides dilués que dans les acides forts (hypergènes) (Ben Cherifa et al., 2001). Le processus chimique de dissolution de l'apatite est décrit par les équations suivantes (Edahbi et al., 2019) :

$(Ca, ETR)_5(PO_4)_3F + 5H_2SO_4 \rightarrow 5(Ca, ETR)\ SO_4 + 3H_3PO_4^- + HF$ (2.5) (Edahbi et al., 2019)

$2(Ca, ETR)_5(PO_4)_3F + 15H_2O \rightarrow 10Ca^{2+} + 10ETR^{3+} + 6PO_4^{3-} + 2F^- + 30OH^-$ (2.6) (Edahbi et al., 2019)

Dans des conditions pH-Eh favorables, les ETR précipitent et/ou co-précipitent sous forme de $ETRPO_4$ et $ETRF_3$. La concentration et la nature de l'acide (hypergène), la température, la présence d'autres composés chimiques dans la solution, en particulier du phosphate et du calcium, et la présence de bactéries contrôlent ce processus de dissolution (Edahbi et al., 2019). La dissolution de l'apatite peut être inhibée par la présence de plomb en raison de la précipitation rapide d'une phase de phosphate de plomb à la surface de l'apatite (mécanisme de passivation) (Dorozhkin, 2002; Miretzky et Fernandez-Cirelli, 2008). L'adsorption d'autres cations, comme le Zn, peut également se produire dans les sites de dissolution de l'hydroxyapatite ($Ca_5(PO_4)_3OH$), bloquant ainsi ces sites (Lingawi et al., 2011).

2.5 Traitement des minéraux porteurs d'ETR et valorisation de stérile

Le traitement des minerais vise à séparer les minéraux porteurs d'ETR des minéraux de gangue par des techniques physiques ou physicochimiques. La récupération d'autres minéraux de valeur, comme le fluor est parfois possible (Marsh, 2013). Toutes les méthodes de traitement exigent une étape de concassage et broyage préalable pour libérer les grains des phases minérales et permettre leur séparation. La finesse des grains de minéraux d'ETR nécessite généralement une réduction de

la taille des particules à moins de 74 microns (Jordens et al., 2013). Cependant, des exceptions existent, comme le site de Maoniuping où la bastnaésite se présente en grains de 2000 à 5000 microns (Li et Yang, 2014; Zhang et Edwards, 2012). Des techniques de séparation conventionnelles, telles que la séparation magnétique, gravimétrique, électrostatique et par flottation, sont ensuite employées pour séparer les grains des différents minéraux et obtenir un concentré de minéraux d'ETR (Jordens et al., 2013).

Afin d'illustrer le procédé de traitement du gisement Ashram, le schéma de procédé adopté dans ce travail (figure 2.8) est celui publié par Commerce Ressources Corp. en mars 2024. Ce schéma reflète l'état actuel d'avancement du projet, intégrant les plus récentes optimisations en matière de traitement hydro-métallurgique. En effet, le concentré de flottation, riche en monazite (30-35% TREO), est directement soumis à une cuisson acide, suivie d'une lixiviation aqueuse, d'un enlèvement du thorium et d'une précipitation des ETR. Ce procédé simplifié permet une récupération élevée de NdPr (>95%) et une réduction significative de la consommation en acide sulfurique. L'adoption de ce procédé de traitement récent est cohérente avec l'objectif de présenter un traitement représentatif des performances industrielles envisagées pour la valorisation du gisement.

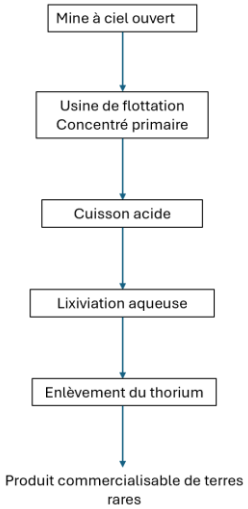

Figure 2.8 Schéma bloc du procédé de traitement du gisement Ashram (Commerce Ressources, 2024)

Par ailleurs, dans le contexte précis de la valorisation des stériles associés à l'exploitation du gisement Ashram certaine phases minérales pourraient également être concentrées par des méthodes physiques, qui seront détaillées dans les prochaines sections. En particulier, les minéraux contenant du niobium et du tantale (pyrochlore $(Na,Ca)_2Nb_2O_6(OH,F)$, columbite $(Fe,Mn)(Nb,Ta)_2O_6$, euxénite $(Y,Ca,Ce,U,Th)(Nb,Ta,Ti)_2O_6$) pourraient être récupérés par séparation gravimétrique ou magnétique. De même, des minéraux fluorés tels que la fluorite, la parisite, la monazite et la bastnaésite, présents en faibles concentrations dans les stériles, pourraient être récupérés par flottation. Cette stratégie de valorisation secondaire permettrait ainsi de tirer parti de minéraux économiques. Il convient aussi de noter que ce procédé de traitement actuel fait suite à plusieurs travaux de recherche et développement, notamment ceux réalisés en collaboration entre Commerce Ressources Corp., l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue et le Centre Technologique des Résidus Industriels (CTRI) en 2020 (Commerces Ressources, 2024). Ces travaux de recherche et développement visaient à optimiser la libération des minéraux et les performances de la flottation, notamment par l'utilisation de la fragmentation par impulsions électrique (HVEP) et du tamisage humide, afin de produire un concentré minéral de haute teneur (>30% TREO). Bien que ces études aient grandement contribué à l'amélioration du schéma de traitement, elles portaient principalement sur l'étape de préparation minérale en laboratoire et à l'échelle mini-pilote.

2.5.1 Séparation magnétique

La majorité des minéraux d'ETR actuellement exploités présentent un caractère paramagnétique, ce qui rend leur récupération possible grâce à des séparateurs magnétiques à haute intensité (SMHI) (Zhang et al., 2016). Toutefois, une étape préalable de séparation magnétique à faible intensité (LIMS) est souvent intégrée au procédé afin d'enlever les phases ferromagnétiques telles que la magnétite ou l'ilménite, sans entraîner de pertes significatives en ETR (Ait-Khouia et al., 2021; Boulanger, 2021). Dans la plupart des cas, la séparation magnétique seule ne permet pas d'atteindre des teneurs commercialement acceptables en ETR (Boulanger et al., 2016). Elle est donc généralement combinée à d'autres méthodes comme la séparation gravimétrique (Dobbins et al., 2009) ou, dans certains cas, à la flottation (Zhang et Edwards, 2012). Ce choix s'explique par le coût relativement faible de l'équipement magnétique, qui fonctionne sans réactifs chimiques et nécessite peu d'infrastructures de traitement (Nazari et al., 2022). Pour cette raison, même lorsque

le facteur d'enrichissement est limité, le retrait préalable de la fraction ferromagnétique est couramment pratiqué (Zhang et Edwards, 2012).

Les données disponibles sur les conditions opératoires des circuits industriels de SMHI pour les ETR demeurent limitées. Ces procédés sont le plus souvent appliqués en pulpe, à l'aide de systèmes à haut gradient de champ magnétique comme les séparateurs HGMS (High Gradient Magnetic Separator) ou WHIMS (Wet High Intensity Magnetic Separator) (Hu et al., 2023). Dans certaines situations, une étape de grillage thermique est envisagée afin de modifier les propriétés magnétiques des phases associées, ce qui favorise la séparation par augmentation de la susceptibilité magnétique des minéraux ciblés (Chan, 1992). Cependant, la récupération des ETR à grains fins constitue un défi technique, car l'efficacité de la séparation diminue à mesure que la taille des particules diminue, nécessitant des champs magnétiques plus intenses pour obtenir une bonne sélectivité (Dobbins et al., 2009).

2.5.2 Séparation gravimétrique

La densité relativement élevée des minéraux d'ETR (généralement entre 3,5 et 5,8 g/cm³) par rapport à celle de leur matrice hôte (souvent autour de 3,0 g/cm³ pour les silicates et carbonates) permet d'envisager la séparation gravimétrique comme méthode de concentration efficace (Ferron et al., 1991). Toutefois, cette technique présente des limites lorsqu'il s'agit de particules fines (Boulanger et al., 2016). Les spirales, notamment, ne sont efficaces que pour des grains bien libérés de taille supérieure à 0,5 mm (Boulanger et al., 2016). Leur efficacité décroît lorsque la différence de densité entre les minéraux de valeur et la gangue est faible, ce qui est le cas pour les dépôts où les ETR sont contenus dans des particules de moins de 100 µm, comme dans les minéraux de monazite et de xénotime (Boulanger et al., 2016). Dans les cas où les particules sont inférieures à 75 µm, il est nécessaire de recourir à des technologies plus performantes telles que les tables à secousses, les séparateurs hydrauliques ou les concentrateurs centrifuges comme les modèles Knelson, Falcon ou Kelsey (Jordens et al., 2013). Ces solutions ont été appliquées à l'échelle industrielle de façon limitée, avec comme exemple documenté l'utilisation de tables à secousses dans le projet de Maoniuping en Chine (Li et Yang, 2014). Les données restent toutefois rares pour d'autres gisements comme Mount Weld, bien que certaines opérations de déschlammage puissent contribuer à une forme de préconcentration sélective des minéraux porteurs d'ETR (Zhang et Edwards, 2012).

Au Canada, le projet Nechalacho constitue l'un des rares exemples à avoir envisagé l'emploi de la gravimétrie pour l'enrichissement des concentrés d'ETR. L'étude de faisabilité proposait l'utilisation de tables à secousses (Ciuculescu et al., 2013), mais des ajustements dans le procédé de flottation ont finalement permis d'atteindre les objectifs de récupération sans recourir à la gravimétrie (Marsh, 2013). Néanmoins, cette méthode reste pertinente dans certains contextes en raison de ses faibles coûts d'installation et d'opération.

2.5.3 Séparation par flottation

La flottation représente aujourd'hui la principale méthode industrielle pour concentrer les ETR. Le principe repose sur l'altération sélective de la surface des particules minérales à l'aide de réactifs spécifiques, appelés collecteurs, qui les rendent hydrophobes (Boulanger et al., 2016). Une fois ces particules modifiées, elles peuvent adhérer aux bulles d'air injectées dans la pulpe et remonter à la surface, où elles sont recueillies sous forme d'écume (Bulatovic, 2007). Afin d'augmenter la sélectivité du procédé, des déprimants sont également utilisés pour empêcher la flottation des minéraux de gangue indésirables. De plus, des moussants sont souvent ajoutés pour favoriser la formation de bulles de petite taille et stabiliser l'écume, améliorant ainsi la récupération (Bulatovic, 2007). Dans la majorité des cas, il s'agit d'une flottation directe ciblant les minéraux de terres eux-mêmes, comme la bastnaésite, la monazite ou le xénotime (Boulanger et al., 2016). À l'inverse, la flottation inverse, qui consisterait à éliminer les minéraux de gangue, est rarement envisagée en raison des faibles teneurs en ETR dans les minerais bruts, généralement inférieures à 10% (Schriner, 2016).

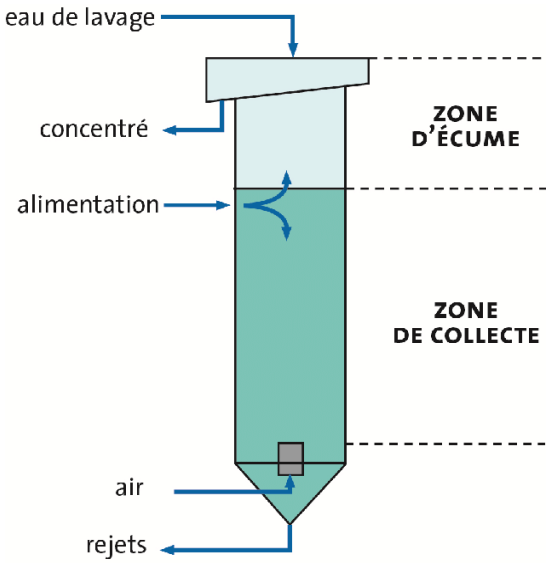

Figure 2.9 Schéma de la flottation directe des minéraux d'ETR (Verret, 2006)

Sur le plan industriel, de nombreux sites à travers le monde utilisent la flottation pour les ETR. C'est notamment le cas de plusieurs mines en Chine, de Mount Weld en Australie et de Mountain Pass aux États-Unis (Zhang et Edwards, 2012). Au Canada, plusieurs projets d'exploration, dont Ashram, Montviel, Strange Lake et Nechalacho, envisagent également cette technique pour la production de concentrés (Boulanger et al., 2016). Le succès du procédé dépend toutefois de nombreux paramètres opératoires, tels que le pH, la composition chimique et la concentration des réactifs, la fraction solide, la durée de conditionnement et la température (Boulanger et al., 2016). Chacune de ces variables doit être ajustée en fonction des associations minérales spécifiques pour maximiser l'efficacité de la séparation (Boulanger et al., 2016).

2.6 Comportement des ETR dans l'environnement

2.6.1 Impact sur l'environnement

Historiquement, l'exploitation de certains gisements d'ETR, comme celui de Mountain Pass (États-Unis) ou de Bayan Obo (Chine), a été associée à des impacts environnementaux importants, en particulier en raison de l'absence ou de la faiblesse des réglementations environnementales en vigueur à l'époque. Toutefois, les données environnementales actuelles sur les projets récents, tels que Nechalacho (Canada) ou Bear Lodge (États-Unis), montrent que les dépôts associés aux carbonatites ou aux intrusions alcalines présentent un faible potentiel de génération d'acidité, en raison de leur teneur très faible en sulfures et de leur pouvoir tampon lié aux carbonates (Van Gosen

et al., 2017). Par ailleurs, même si les concentrations de certains éléments traces comme le thorium, l'uranium, le cadmium ou le chrome peuvent dépasser les seuils environnementaux dans certains échantillons de rejets, les risques environnementaux aquatiques restent en général limités. Cependant, des précautions doivent être prises, notamment pour prévenir les risques liés à un éventuel relargage accidentel des rejets miniers (Van Gosen et al., 2017). D'après une analyse, l'année 1998 représente un point culminant en termes d'impacts environnementaux négatifs attribuables à l'activité minière des ETR en raison d'une forte augmentation de la production en Chine, accompagnée d'un encadrement environnemental encore limité à cette époque (Ali, 2014). En 2015, les États-Unis ont fermé leur dernière exploitation minière d'ETR, à Mountain Pass en Californie, à la suite d'un incident impliquant le rejet de près de 100 000 litres d'eau contaminée par la radioactivité (Edahbi et al., 2019). Par ailleurs, des études ultérieures ont mis en évidence les effets écologiques délétères considérables dans les zones minières chinoises, en particulier autour de la région minière de Bayan Obo, mettant en évidence l'ampleur des répercussions environnementales causées par l'exploitation minière des ETR (Edahbi et al., 2019).

Les teneurs atmosphériques en ETR, sous forme gazeuse ou spécifique (aérosols), ont été identifiées comme des sources significatives de perturbation de la qualité de l'air, induisant des altérations de la composition chimique de l'atmosphère à des échelles allant du local au global (Stille et al., 2009; Wang et al., 2004). Les conséquences de ces perturbations varient considérablement en fonction des dimensions spatiales et temporelles analysées, avec une incidence accrue dans les zones entourant les sites miniers. Les aérosols, définis par leur diamètre aérodynamique allant de quelques nanomètres à 10 micromètres, sont classés selon leur taille en particules fines et grossières (Wang et al., 2015; Wang et Liang, 2014a). Grâce à l'analyse de ces particules, il est possible de caractériser la distribution et la concentration des ETR en suspension dans l'air, ce qui permet d'évaluer l'impact de ces émissions sur l'environnement (Wang et al., 2015). En particulier, dans la région de la mine de Bayan Obo, les concentrations d'ETR associées aux grosses particules ont été mesurées entre 149,8 et 239,6 ng/m^3 pour toutes les particules, avec des variations saisonnières notables entre 2012 et mars 2013 (Wang et al., 2015). Un gradient de concentration marqué a également été observé le long de la direction prédominante du vent (Wang et al., 2015). Notons que l'exposition aux particules fines est corrélée à divers problèmes de santé, notamment des pathologies respiratoires et cardiovasculaires, ainsi que des affections

dermatologiques graves telles que la kératose et l'eczéma, et que l'exposition à l'ozone est un facteur de risque pour la santé (Cheng et al., 2013).

À l'heure actuelle, les données disponibles ne démontrent pas que les terres rares sont essentielles au développement des plantes (Edahbi et al., 2019). Cependant, leur application en tant qu'agents fertilisants peut induire des effets délétères sur la qualité du sol et le développement végétatif par le biais de mécanismes indirects, tels que la substitution du fer par le scandium, le remplacement des ions calcium et magnésium, ainsi que l'induction d'une carence en phosphate par leur précipitation sous forme de phosphates de terres rares (Sneller et al., 2000). De plus, la présence accrue des ETR dans les substrats du sol peut compromettre la biodisponibilité des nutriments essentiels à la croissance des plantes. Les résultats d'une étude portant sur l'effet des ETR sur la dynamique d'adsorption du phosphore dans divers sols agricoles chinois ont révélé une diminution de l'adsorption du phosphate en présence de faibles concentrations d'ETR comprise entre 0,1 et 10 mg/kg (Wang et Liang, 2014b). Par ailleurs, des éléments comme le thorium (Th), et l'uranium (U), souvent présents en traces dans les minéraux porteurs d'ETR, pourraient également contribuer à altérer la qualité chimique des sols, voire exercer une toxicité envers les organismes vivants, même à faible concentrations. Les travaux de Thomas et al. (2014) ont évalué l'impact de concentrations spécifiques de lanthane, de cérium et d'yttrium sur le développement de plusieurs espèces végétales, révélant une réduction significative de la biomasse pour *Asclepias syriaca L.* et *Desmodium canadense*, ce qui suggère des effets négatifs sur la croissance des plantes (Edahbi et al., 2019). La présente étude met également en évidence le problème écologique potentiel posé par l'accumulation progressive de ces éléments dans les écosystèmes (Thomas et al., 2014).

2.6.2 Autres considérations

L'extraction et le raffinage des ETR génèrent d'importants volumes de rejets solides et liquides, avec un risque avéré de dommages environnementaux (Edahbi et al., 2019). Parallèlement, La croissance de la demande en ETR devrait s'intensifier à l'avenir, en raison de leur utilisation essentielle dans divers domaines technologiques, ce qui laisse présager une augmentation des projets liés aux ETR à l'échelle mondiale dans les décennies à venir (Edahbi et al., 2019). Le Canada, par exemple, a vu naître plus de 200 initiatives de ce type (Edahbi et al., 2019). La figure 2.10 représente les projets majeurs d'ETR au Canada. Dans le contexte du développement durable, combiné aux impératifs d'acceptabilité sociale et de respect des réglementations

environnementales, il devient impératif pour les projets miniers de procéder à une évaluation exhaustive des impacts écologiques potentiels liés à l'exploitation des gisements d'ETR (Edahbi et al., 2019). La rentabilité d'un tel projet est intrinsèquement liée à la capacité de résoudre les problèmes environnementaux connexes, tels que la gestion des rejets, la réhabilitation des sites et le traitement de l'eau (Edahbi et al., 2019). Toutefois, les études sur l'impact des opérations d'extraction des ETR sur l'air, l'eau, le sol, la flore et la santé humaine sont encore peu nombreuses (Edahbi et al., 2019). En outre, des recherches supplémentaires sont nécessaires pour combler les lacunes importantes dans notre compréhension des ETR, en particulier en ce qui concerne leurs impacts écologiques, la réactivité des phases contenant des ETR et les processus de lixiviation et de toxicité (Edahbi et al., 2019).

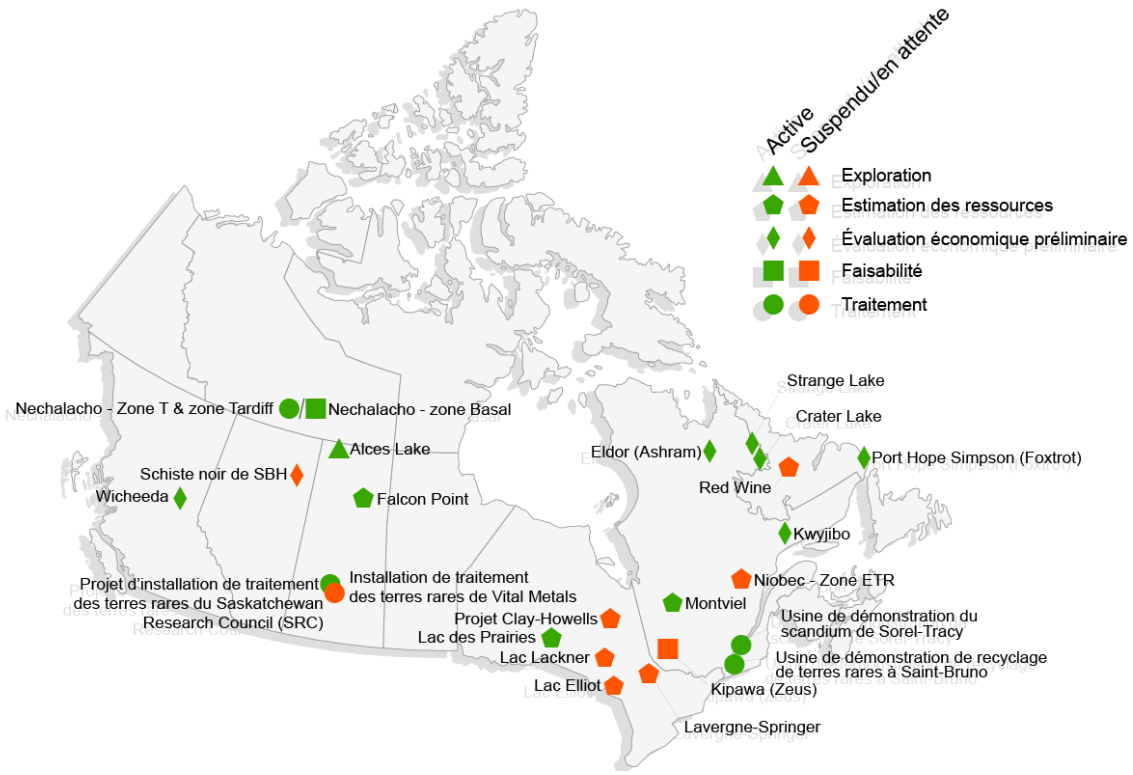

Figure 2.10 Carte des projets majeurs d'ETR au Canada

La compréhension et l'anticipation du comportement géochimique des minéraux riches en ETR et des radionucléides associés dans des conditions environnementales données passent par l'étude de la lixiviation des ETR (Edahbi et al., 2019). Il est nécessaire d'examiner la minéralogie et la capacité de lixiviation des terres rares de divers gisements (projets d'extraction de terres rares lourdes et/ou légères) afin d'estimer leur comportement géochimique et d'identifier les facteurs

déterminant la mobilité des terres rares dans des conditions naturelles (Edahbi et al., 2019). Toutes les lithologies des gisements, y compris les minerais et les stériles, doivent être échantillonnées et caractérisées à l'aide de diverses techniques minéralogiques (par exemple SEM-EDS automatisé, EPMA-WDS, DRX, EXAFS) avant d'être soumises à des tests cinétiques en laboratoire et sur le terrain afin d'évaluer leur potentiel de libération des ETR (Edahbi et al., 2019). Lorsque cela est possible et pertinent, il est recommandé de gérer chaque lithologie séparément afin de promouvoir une politique de gestion des risques intégrée et d'encourager la récupération et la réutilisation des rejets dans la production de biens éco-responsables (Edahbi et al., 2019).

2.7 Drainage neutre contaminé

Le drainage neutre contaminé (DNC) est reconnu comme l'une des principales problématiques affrontées par le secteur minier à l'échelle internationale (Blowes et al., 2005). Ce phénomène est caractérisé en tant que catégorie spécifique d'eau contaminée, distinguée par des mécanismes de formation uniques et des caractéristiques physico-chimiques propres (Nordstrom et al., 2015).

2.7.1 Processus et formation de DNC

Le DNC, se distingue par un pH neutre à légèrement basique et enrichi en ions Ca^{2+}, Mg^{2+}, K^{+}, et SO_4^{2-}, ainsi que par la présence de contaminants excédant les seuils réglementaires de rejet, et identifié comme un défi environnemental prépondérant (Nordstrom et al., 2015). La genèse du DNC est principalement attribuée à deux phénomènes : soit (1), le ruissellement d'eaux interagissant avec des minéraux sulfurés qui subissent une oxydation en présence de minéraux offrant un potentiel neutralisant envers l'acidité produite ; et (2), l'altération chimique accélérée de minéraux non sulfurés pouvant entraîner la libération de contaminants (Bright et Sandys, 2015). Un facteur additionnel, la lixiviation de métaux à partir de rejets miniers acides ayant fait l'objet de mesures de réhabilitation, est également mentionné comme potentiel contributeur à la formation du DNC, comme illustré par l'étude du site Lorraine (Jouini et al., 2019).

2.7.2 Prévention et gestion

L'examen approfondi des stratégies de gestion du DNC reste limité, particulièrement lorsqu'il est mis en comparaison avec celui du DMA (Bright et Sandys, 2015). Néanmoins, il a été suggéré que les approches adoptées pour la maîtrise et la réhabilitation du DMA pourraient se révéler pertinentes et efficaces dans le cadre du DNC (Aubertin et al., 2015). Diverses techniques sont

employées pour anticiper la survenue du DNC, incluant notamment des analyses minéralogiques poussées, les essais de sorption, les essais statiques et dynamiques, ainsi que la modélisation géochimique, avec un intérêt particulier pour les mécanismes de transport réactif. Cependant, pour corroborer ces prévisions, il est impératif d'assurer une surveillance régulière et détaillée de l'évolution des conditions environnementales des sites concernés (Bright et Sandys, 2015).

2.7.3 Les essais de sorption

Le phénomène de DNC se manifeste principalement dans un intervalle de pH neutre, généralement compris entre 6,0 et 9,5. Au sein de cette plage, la solubilité des métaux varie. Certains métaux ne se trouvent pas nécessairement sous forme soluble. Les contaminants métalliques fréquemment associés aux occurrences de DNC incluent l'arsenic (As), l'antimoine (Sb), le cadmium (Cd), le cobalt (Co), le fer (Fe), le manganèse (Mn), le magnésium (Mg), le molybdène (Mo), le nickel (Ni), le plomb (Pb) et le zinc (Zn) (Éthier, 2011). Ces éléments peuvent provenir de minéraux spécifiques contenant ces métaux dans leur composition chimique, comme la pentlandite pour le nickel et l'arsénopyrite pour l'arsenic, ou se présenter sous forme d'impuretés dans d'autres minéraux, tels que la pyrite ou la pyrrhotite (Michaud et al., 2017). La concentration d'un métal ou d'un métalloïde dans l'eau dépend de diverses réactions chimiques, notamment les réactions acide-base, les processus d'oxydation et de réduction, les phénomènes de précipitation et de dissolution, les dynamiques d'adsorption et de désorption, ainsi que l'hydrolyse, l'hydratation, et la complexation, tant inorganique qu'organique (Mattigod et al., 1981). Des études antérieures ont examiné la solubilité des métaux sous différentes formes, par exemple en tant qu'hydroxydes métalliques, comme illustré à la figure 2.11. Cette représentation graphique démontre l'activité chimique des ions métalliques en fonction du pH (Cravotta III, 2008). En règle générale, la solubilité des métaux augmente aux valeurs de pH basses et élevées, bien que certains métaux présentent un minimum de solubilité en dehors des zones neutres, comme l'hydroxyde de nickel ($Ni(OH)_2$) (Michaud, 2017).

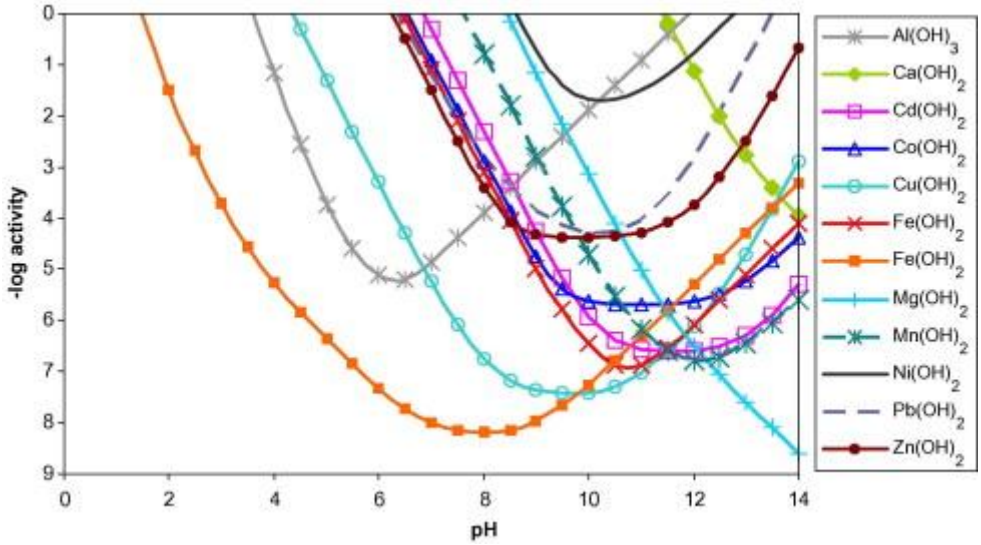

Figure 2.11 : Solubilité de certains hydroxydes métalliques à 25°C (Cravotta III, 2008)

Certaines occurrences de DNC présentant des concentrations en Ni supérieures aux normes établies ont été examinées et semblent être régulées par des phénomènes de sorption et/ou de précipitation avec les hydroxydes de fer (Heikkinen et al., 2009; Plante et al., 2011). Dans le cas spécifique de la mine du Lac Tio (DNC associé au Ni), les processus de sorption de surface induisent même un effet de retard en raison de la capacité de rétention du Ni par certains minéraux de la gangue (Plante et al., 2010). Le terme "sorption" est utilisé de manière générique pour désigner divers phénomènes tels que l'adsorption (surfaces), l'absorption (intérieur des matériaux) et l'échange ionique (Michaud, 2016). Les matériaux peuvent ainsi être caractérisés par leurs capacités de sorption ou leurs capacités d'échange cationique (CEC) (Michaud, 2016).

La capacité de sorption des minéraux sorbants dépend principalement du pH au point de charge nulle (pHpzc), comme illustré à la figure 2.12. Le pHpzc est le pH auquel un minéral présente une charge nette nulle (Appelo, 1994; Plante et al., 2014).

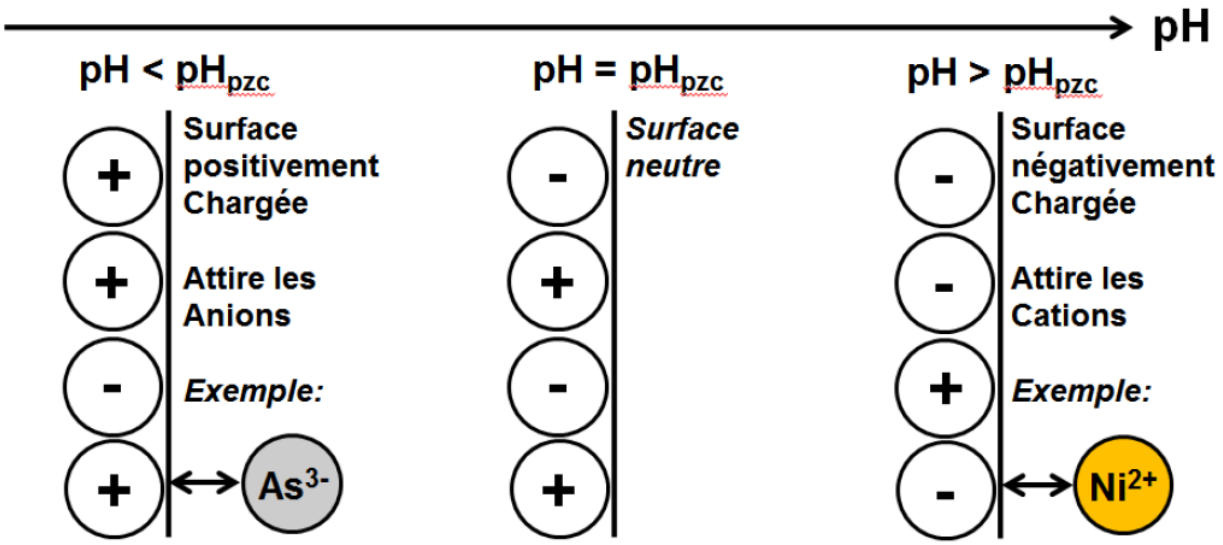

Figure 2.12 Relation entre le pHpzc et la capacité de sorption (Michaud et al., 2017; Plante et al., 2014)

2.8 Prédiction de drainage minier et essais au laboratoire

Diverses méthodes de prédiction géochimique ont été mises au point pour caractériser la capacité des résidus miniers à générer du DMA ou du DNC (Michaud et al., 2017). Ces procédures peuvent être classées en deux catégories principales : statiques et cinétiques. Un résumé des méthodes de prédiction géochimique actuellement utilisées dans le secteur minier est présenté dans Plante et al. (2021b). Les tests statiques se concentrent exclusivement sur l'évaluation de la qualité potentielle de l'eau à partir de la caractérisation de la composition chimique ou minéralogique des rejets miniers. En revanche, les tests cinétiques sont conçus pour intégrer les variations temporelles de la qualité des lixiviats, comme le démontrent les travaux de Bouzahzah et al. (2014b). Cette section vise à résumer les principaux protocoles de prédiction géochimique actuellement utilisés dans l'industrie extractive. Les spécificités des protocoles utilisés pour cette étude seront détaillées plus loin dans les sections 2.9.3 et 3.2, dans le contexte de ce projet de recherche de Maîtrise.

2.8.1 Essai statique

En Amérique du Nord, l'évaluation statique du potentiel de génération de DMA d'un échantillon est souvent réalisée par le biais d'une analyse de l'équilibre acido-basique (ABA), comme le rapportent les travaux de Bouzahzah et al. (2014b). Cette analyse peut être réalisée en utilisant des

approches chimiques ou minéralogiques. L'influence significative de la composition minéralogique sur la prédiction de la génération de DMA a été établie dans la recherche menée par Bouzahzah et al. (2014a). Des caractérisations chimiques et minéralogiques de type statique, ainsi que des essais cinétiques en mini-cellules d'altération, ont été effectués dans le cadre de cette étude (Bouzahzah et al., 2014a). Les résultats ont révélé que les estimations statiques basées sur la minéralogie s'avèrent précises à condition que la caractérisation minéralogique soit rigoureusement définie (Bouzahzah et al., 2014a).

2.8.2 Potentiel de génération d'acide

Le potentiel acide (PA) estimé chimiquement suivant la procédure établie par Sobek et al. (1978) est basé sur la quantification de la teneur en soufre total présent dans l'échantillon examiné. Ce procédé peut potentiellement surestimer le PA car il suppose que tout le soufre mesuré est sous forme de pyrite, une hypothèse qui néglige la présence possible de soufre incorporé dans d'autres minéraux tels que les sulfates, qui ne contribuent pas à la génération de DMA. Il est donc possible de corriger le PA en déduisant du total mesuré la fraction de soufre associée aux sulfates (Plante et al., 2021).

Le PA peut également être dérivé de l'analyse minéralogique des échantillons, ce qui permet de distinguer les différents sulfures et d'ajuster le calcul du PA en conséquence (Paktunc, 1999). La méthode de Paktunc (1999) a ensuite été affinée pour intégrer la réactivité spécifique de chaque type de sulfures dans l'estimation du PA, améliorant ainsi la précision de la prédiction (Bouzahzah, 2013; Chopard et al., 2017).

2.8.3 Potentiel de neutralisation

Pour l'évaluation de la capacité potentiel de neutralisation (PN), la littérature recense différentes méthodologies et leurs variantes. De celles-ci, la technique initiale développée par Sobek et al. (1978) consiste à faire réagir l'échantillon avec de l'acide chlorhydrique, la quantité d'acide étant ajustée en fonction du résultat du test qualitatif de Fizz pour dissoudre les carbonates et les silicates très réactifs (Sobek, 1978). L'acide non réagi est ensuite titré avec une solution de NaOH et le PN est calculé sur la base des minéraux neutralisants dissous par le HCl. Cette méthode a été affinée par Lawrence & Wang (1997), qui ont réduit les volumes de HCl utilisés, permettant une évaluation plus précise du PN, en particulier pour les minéraux fréquents dans les contextes géologiques

sulfureux. Bouzahzah (2013) a proposé une adaptation pour limiter les hypothèses du test de Fizz en basant la quantité de HCl sur la stœchiométrie de la réaction des carbonates avec le HCl. Néanmoins, ces approches pourraient surestimer le PN en incluant le potentiel de neutralisation de minéraux tels que la sidérite et l'ankérite, qui en réalité ne contribuent pas à la neutralisation. De plus, les conditions acides des tests Sobek peuvent entraîner la dissolution de minéraux à faible potentiel de neutralisation, et la durée limitée de ces tests peut ne pas refléter le PN réel de certains minéraux réagissant lentement (Plante et al., 2021).

Une autre solution consiste à déterminer le PN par analyse minéralogique, ce qui permet de distinguer la contribution spécifique des minéraux neutralisants. Lawrence et Scheske (1997) ont montré qu'il est possible d'estimer la composition minéralogique d'un échantillon à partir de sa composition chimique globale et de l'analyse du carbone inorganique, ce qui donne une estimation plus réaliste du pouvoir neutralisant des silicates. Néanmoins, cette méthode n'inclut pas le NP des carbonates ferreux et manganifères, et sa précision dépend de la qualité de la caractérisation minéralogique. Plante et al. (2012) ont ajusté cette approche pour considérer également les cations oxydables et acidogènes présents dans les minéraux neutralisants. Paktunc (1999) a développé une méthode minéralogique prédictive du PN, combinant des analyses chimiques et minéralogiques globales pour estimer le PN de chaque minéral en fonction de son abondance et de la stœchiométrie de sa réaction de neutralisation, y compris la présence de cations oxydables (Paktunc, 1999). La fiabilité de cette méthode dépend fortement de la précision des analyses minéralogiques effectuées (Paktunc, 1999).

2.9 Essais cinétiques

2.9.1 Essais en mini cellule d’altération

La méthodologie de l'expérience a été introduite par Cruz et al. 2010 et modifiée par Villeneuve (2004) et Bouzahzah et al. (2014b). Cette expérience utilise une mini cellule d'altération composée d'un entonnoir Büchner en céramique placé sur un support, sous lequel un Erlenmeyer sous vide recueille le lixiviat généré (Cruz et al., 2001). Ce procédé est applicable à la fois aux échantillons de stériles et de résidus, la taille des particules de l'échantillon étant maintenue à une finesse spécifique, généralement inférieure à 500 µm ou 4,75 mm selon les études citées (Michaud, 2016). Pour le test, un échantillon standard de 67 g est utilisé pour former une fine couche de matériau dans l'entonnoir, une configuration suspectée d'augmenter l'agressivité de la réaction en raison de

la faible épaisseur de l'échantillon (Villeneuve, 2004). Les cycles de rinçage, effectués deux fois par semaine avec 50 mL d'eau déionisée et un temps de contact de 3 à 4 heures, sont suivis d'une période de séchage à l'air ambiant (Villeneuve, 2004). Pour améliorer la réactivité, le dispositif expérimental peut être placé dans une chambre à humidité contrôlée. Le rapport liquide/solide utilisé dans cette procédure est de 1,5 mL/g par semaine (Villeneuve, 2004). Cette approche cinétique est privilégiée dans les contextes où les échantillons sont peu nombreux ou lorsque des résultats rapides sont requis.

2.9.2 Cellules humides

Le test de la cellule humide est formalisé dans les normes de l'*American Society for Testing and Materials* (ASTM, 2013). Initialement basée sur les travaux pionniers de Sobek et al. (1978), qui s'inspiraient de ceux de Caruccio (1967), la méthode a ensuite été enrichie par les contributions de Morin et Hutt (2001). Officiellement reconnue par l'ASTM en 1996, la procédure a fait l'objet de diverses révisions et adaptations depuis lors (ASTM, 2013). Conçue pour établir des conditions expérimentales strictement contrôlées afin de garantir la reproductibilité des résultats entre différents laboratoires, cette méthode spécifie précisément les dimensions requises pour la cellule expérimentale, les protocoles de préparation et d'application du matériel d'essai, ainsi que la séquence opérationnelle des cycles d'essai (Villeneuve, 2004). Chaque cycle dure une semaine et comprend une étape de rinçage par inondation ou percolation le premier jour, suivie de trois jours en atmosphère sèche puis de trois jours en atmosphère humide (Michaud, 2016). Le lixiviat, qui traverse le matériau d'essai, est recueilli à la fin du cycle pour être analysé (Michaud, 2016). La masse type de l'échantillon utilisé est de 1 kg, avec un volume de rinçage fixé à 1 L par cycle, établissant ainsi un rapport liquide/solide élevé pour cet essai (Michaud, 2016).

2.9.3 Essais en colonne

Depuis le début des années 1990, les essais sur colonnes sont devenus un outil standard dans les essais d'évaluation du comportement géochimique de matériaux miniers, comme l'a documenté MEND (1991). Contrairement aux tests en cellules humides, qui bénéficient des normes établies par l'American Society for Testing and Materials, les tests sur colonnes ne sont pas basés sur des normes spécifiques, ce qui permet plus de flexibilité dans la définition de paramètres tels que le diamètre et la hauteur de la colonne (Michaud, 2016). Ces paramètres permet d'adapter le test aux besoins spécifiques de la recherche, notamment en ajustant le niveau de complexité (Michaud,

2016). Par exemple, afin de régler le niveau de liquide au sein de la tour, il est possible de remplacer la plaque perforée classiquement installée en pied de tour par un élément poreux en céramique (Bouzahzah et al., 2014). L'intégration de sondes pour mesurer des paramètres tels que la teneur en eau et la succion est également possible à différents niveaux prédéfinis de la colonne (Bouzahzah et al., 2014).

Les colonnes sont souvent utilisées pour simuler les conditions réalistes de remise en état des sites miniers. Bien que l'absence de normes spécifiques puisse représenter une limite, des études telles que celle de Demers et al. (2011) démontrent la fiabilité et la reproductibilité des résultats obtenus grâce à des méthodologies appliquées de manière cohérente (Demers et al., 2011). Les tests sur colonne ont tendance à prendre plus de temps que les tests sur mini-cellule de conversion ou sur cellule humide, et les cycles de purge sont généralement effectués mensuellement (Michaud, 2016). De plus, des configurations de test sur colonnes peuvent être conçues pour des études prédictives utilisant des paramètres tels que les rapports liquide/solide qui se rapprochent des conditions environnementales naturelles (Plante et al., 2014). Les tests sur colonnes peuvent également être effectués sur site à l’aide de conteneurs de grande capacité tels que les barils de 200 L (Michaud, 2016). Ils peuvent être exposés aux différentes conditions météorologiques spécifiques du site minier, notamment les précipitations, l'évaporation et les cycles de gel-dégel, ou être réalisés un modèle d'irrigation contrôlé pour accélérer le processus (Bouzahzah et al., 2014a).

Tableau 2.5 Résumé des différents types d'essai cinétique au laboratoire (Bouzahzah et al., 2014)

	Mini-cellule	Cellule humide	Essai en colonne
Montage	Un Büchner de 10 cm de diamètre, avec un dépôt sec de 67 g de matière rejetée disposé dans le Büchner au-dessus d'un filtre de taille de pore de 0,45 µm.	Des cellules en Plexiglas sont utilisées, contenant 1 kg de matière sèche. Il existe deux tailles de cellules : • Pour les matériaux stériles, les dimensions sont de 10,2 cm de diamètre et 20,3 cm de hauteur. • Pour les rejets de concentrateur, les dimensions sont inversées, avec 20,3 cm de diamètre et 10,2 cm de hauteur.	Colonne : 14 cm de diamètre avec hauteur variable selon l'étude (de 0.7 à 2 m) Disposition : recouvrement mono ou multicouche, ennoiement Plaque céramique en bas pour simuler une nappe phréatique
Rinçage	50 ml d'eau déionisée, 2 fois par semaine	Rinçage avec 500 ml ou 1 l d'eau déionisée	Rinçage en fonction de la pluviométrie de secteur d'étude

Tableau 2.5 Résumé des différents types d'essai cinétique au laboratoire (Bouzahzah et al., 2014) (suite)

	Mini-cellule	Cellule humide	Essai en colonne
Cycles de l'essai	Le premier jour, procédez à un rinçage. Laissez ensuite le matériel exposé à l'air libre pendant 2 jours. Effectuez un nouveau rinçage le troisième jour, suivi de 3 jours supplémentaires d'exposition à l'air libre.	Le processus débute par un rinçage le premier jour, suivi de 3 jours d'exposition à de l'air sec. Ensuite, il y a une période de 3 jours durant laquelle l'air est saturé d'humidité.	Chaque 2 semaines ou mensuel
Durée de l'essai exprimé en semaine selon le nombre de rinçage	De 20 à 40 rinçages selon les objectifs de l'étude	De 20 à 40 rinçages selon les objectifs de l'étude	De 10 à 12 rinçages selon les objectifs de l'étude

CHAPITRE 3 Matériel et méthode

Cette section présente les matériaux utilisés dans le cadre de cette étude, notamment les échantillons de stériles issus du gisement, seront détaillés de manière exhaustive. Enfin, les méthodes expérimentales employées pour la caractérisation des stériles et l'analyse de la libération des ETR seront présentées.

3.1 Matériaux à l'étude

Les matériaux étudiés dans le cadre de ce projet correspondent aux différents types de stériles géologiques générés par l'exploitation du gisement Ashram. Plus spécifiquement, les types de stériles miniers et les différentes lithologies présentes sur le site, tels que les carbonatites et les roches silicatées, seront analysés. Ces échantillons seront utilisés pour évaluer la libération des ETR et d'autres éléments d'intérêt. Il est à noter que certaines de ces lithologies peuvent également contenir des quantités significatives de minéraux économiquement exploitables, notamment des ETR. La teneur en ETR dans ces matériaux sera étudiée en détail afin de déterminer leur potentiel de valorisation. La figure 3.1 présente la distribution des différentes lithologies des échantillons de stériles reçus de la compagnie Commerce Ressources pour le site du gisement Ashram.

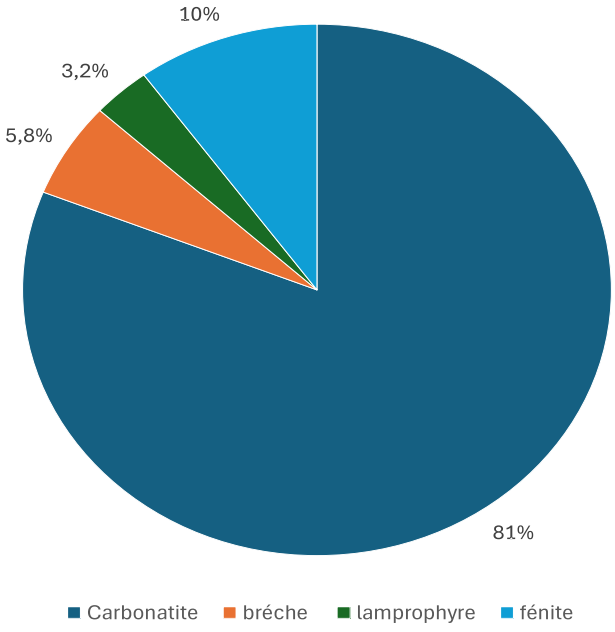

Figure 3.1 Distribution des différentes lithologies reçus par la compagnie

Selon les données de l'évaluation économique préliminaire du Commerce Ressources, le gisement Ashram prévoit générer 6 600 000 tonnes de stériles, soit environ 16% du volume total de la fosse, tandis que 84% sera du minerai. De ce volume de stériles (les 16%), environ 6% correspondra à de la carbonatite contenant moins de 1,25% d'oxydes de terres rares (OTR), et les 10% restants consisteront en d'autres types de matériaux stériles. Les carbonatites, qui sont un composant majeur des matériaux stériles, résultent de processus magmatiques complexes et présentent une texture granulaire, renfermant des minéraux tels que la calcite, la dolomite, et des minéraux porteurs d'ETR comme la bastnaésite et la monazite.

Les échantillons étudiés dans le cadre de cette recherche incluent principalement des carbonatites altérées ainsi que des roches silicatées associées. Les roches silicatées, moins abondantes, incluent des minéraux tels que le quartz, le feldspath, et les micas. Le rapport économique préliminaire indique que le projet généra environ 6,6 millions de tonnes de stériles, composés à 37,5% de carbonatite et à 62,5% d'autres lithologies (fénite, lamprophyre, brèche). Ces proportions offrent une base réaliste pour évaluer le potentiel de valorisation des stériles selon leur composition minéralogique dominante.

3.2 Matériaux utilisés pour les essais en laboratoire

3.2.1 Essais de laboratoire

Le matériel utilisé pour cette étude a été constitué d'environ 298 sacs d'échantillons, composés chacun de demi-carottes de forage pesant entre 3 à 5 kg chacun, pour un total d'une tonne d'échantillons provenant des quatre lithologies principales du gisement Ashram : carbonatite, brèche, fénite, et lamprophyre. La carbonatite stérile, présente dans le gisement Ashram, contient des concentrations faibles en ETR. Cependant, elle présente tous de même quelques minéraux accessoires tels que la monazite et la bastnaésite, sans toutefois constituer une ressource économiquement exploitable. La brèche est une unité faiblement minéralisée caractérisée par des textures clastiques composées principalement de fragments de carbonatite, avec une teneur variable en carbonates. La fénite est une roche métasomatique entourant la carbonatite, composée principalement de feldspath potassique, d'amphibole et de quartz. Enfin, le lamprophyre est une roche intrusive mafique sombre observée sous forme de dykes traversant le complexe. Le choix des échantillons et la représentativité des sous-échantillons ont été rigoureusement déterminés à l'aide d'analyses statistiques. Afin d'obtenir un échantillonnage reflétant au mieux les

caractéristiques de chaque lithologie, la sélection a été basée sur l'analyse des résultats de la compagnie, en particulier sur l'étude des 1er et 2e quartiles des teneurs mesurées. A partir de ces données, les composites ont été constitués pour représenter la moyenne de chaque lithologie, de manière à garantir que les essais subséquents se fassent sur des échantillons représentatifs. Ces échantillons ont ensuite été soumis à des essais cinétiques en colonne afin d'évaluer leur réactivité géochimique à long terme.

Tous les essais cinétiques ont été réalisés dans les laboratoires de l'URSTM. Parallèlement, certaines analyses chimiques et minéralogiques ont été confiées à des laboratoires externes, les analyses chimiques (ICP sur solide et FRX) ont été effectuées au Laboratoire SGS, les analyses de radionucléides au SRC (Saskatchewan Research Council) et l'analyse minéralogique (MEB-MLA) à l'université Queens, à Kingston. Les tests ont permis d'évaluer la réactivité des matériaux en conditions contrôlées, en simulant l'exposition aux éléments naturels pour observer les réactions des stériles dans le temps. Les essais de caractérisation chimique et minéralogique sur les matériaux initiaux ont également été effectués en parallèle afin d'obtenir une compréhension complète de leur composition et de leur potentiel réactif.

3.2.2 Préparation des échantillons

Les échantillons de carbonatite, lamprophyre, fénite, et brèche reçus de la compagnie Commerce avaient déjà été broyés à une granulométrie inférieure à 6,3 mm (1/4 de pouce) (Figure 3.2). Aucune analyse ni observation microscopique post-démantèlement n'a été effectuée car l'altération des matériaux durant la période d'essai était trop faible (selon le calcul de l'épuisement), cette conclusion repose sur l'absence de changements visuellement perceptibles, tels que la couleur ou la texture, entre l'état initiale des matériaux et leur état après la période d'essai, suggérant une altération négligeable. Les colonnes d'essai ont été montées avec le matériel homogénéisé (Figure 3.2), permettant ainsi d'étudier la réactivité des matériaux sous conditions contrôlées.

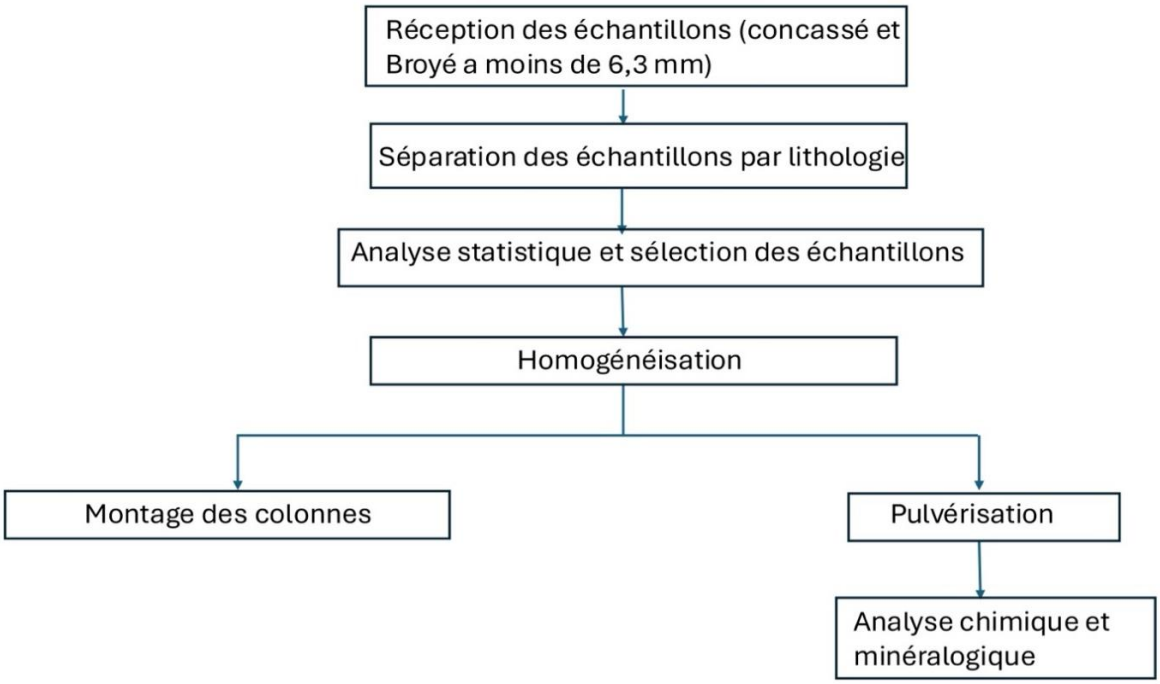

Figure 3.2 Schéma de préparation des échantillons

3.2.3 Distribution granulométrique

Dans le cadre de cette étude, la distribution granulométrique a été mesurée sur les stériles issus des lithologies de carbonatite, lamprophyre, fénite et brèche. Les échantillons ont été tamisés afin de conserver uniquement la fraction de particules inférieurs à 6,3 mm. Cette étape visait à homogénéiser la taille des particules et à garantir des conditions expérimentales cohérentes pour les essais en colonnes. La distribution granulométrique des particules a été déterminée en utilisant un granulomètre laser Malvern Mastersizer 2000, qui fonctionne par diffraction des rayons laser (Merkus, 2009). Cet appareil permet de caractériser la distribution des tailles de particules des matériaux étudiés, fournissant des données précises sur leur répartition granulométrique (Merkus, 2009). Les échantillons analysés proviennent des stériles utilisés lors des essais en colonne, et les résultats obtenus sont essentiels pour comprendre la réactivité des matériaux dans des conditions de lixiviation.

3.2.4 Analyse chimique

La composition chimique des matériaux initiaux, issus des quatre lithologies principales (carbonatite, lamprophyre, fénite et brèche) a été déterminée par le laboratoire SGS avant le

démarrage de ce projet de maîtrise. Les échantillons ont été soumis à une digestion acide en quatre étapes, utilisant un mélange de HCl, HNO_3, HF et $HClO_4$, afin de dissoudre complètement les minéraux présents (Lord, 2021). La solution résultante a ensuite été analysée par spectrométrie d'émission atomique avec plasma couplé inductif (ICP-AES) et spectrométrie de masse avec plasma couplé inductif (ICP-MS) (Lord, 2021). Dans le cadre de l'analyse ICP-AES, les éléments dissous dans le plasma d'argon ont été excités, émettant des radiations électromagnétiques spécifiques à chaque élément (Raszkiewicz, 2014). L'intensité des photons émis, mesurée à des longueurs d'onde caractéristiques, a permis de quantifier les concentrations des éléments présents dans les échantillons (Raszkiewicz, 2014). Pour l'analyse ICP-MS, le plasma a dissocié les atomes, dont les ions ont été ensuite triés et identifiés en fonction de leur rapport masse/charge via un spectromètre de masse, fournissant ainsi une quantification précise des éléments (Raszkiewicz, 2014).

Bien que ces analyses aient été effectuées dans des laboratoires externes comme SGS avant le début de cette étude, leurs résultats ont été utilisés pour la caractérisation préliminaire des matériaux étudiés dans ce projet. En plus des éléments tels que aluminium (Al), arsenic (As), baryum (Ba), béryllium (Be), bismuth (Bi), calcium (Ca), cadmium (Cd), cobalt (Co), chrome (Cr), cuivre (Cu), fer (Fe), potassium (K), lithium (Li), magnésium (Mg), manganèse (Mn,) molybdène (Mo), sodium (Na), nickel (Ni), plomb (Pb), soufre (S), sélénium (Se), silicate (Si), strontium (Sr), tellurium (Te), titane (Ti), uranium (U), zinc (Zn), les concentrations des ETR tels que cérium (Ce), dysprosium (Dy), erbium (Er), europium (Eu), gadolinium (Gd), holmium (Ho), lanthanum (La), lutétium (Lu), neodymium (Nd), praséodyme (Pr), scandium (Sc), samarium (Sm), terbium (Tb), thulium (Tm), yttrium (Y), ytterbium (Yb) ont également été mesurées. Ces analyses ont ainsi fourni une compréhension complète de la composition chimique des stériles, incluant leur contenu en ETR, un aspect crucial pour l'évaluation du potentiel de valorisation de ces matériaux.

Les méthodes d'analyse chimique ont été réalisées au laboratoire SGS, qui applique des protocoles de contrôle et d'assurance de la qualité (QC/QA) conformément aux lignes directrices du centre d'expertise en analyse environnementale du Québec (CEAEQ, 2014). Dans ce cadre, des blancs d'analyses et des duplicatas, représentant au moins 10% du total des échantillons, ont été utilisés afin de garantir la fiabilité et la précision des résultats obtenus, en plus de l'analyse de standards certifiés à chaque série d'analyse. Les résultats montrent que les blancs analytiques présentaient des concentrations très faibles, variant de 0,5 à moins de 3 µg/g, attestant de l'absence de

contamination significatives. Par ailleurs, les duplicatas respectaient le critère d'acceptation de 20% fixé pour l'écart relatif, ce qui confirme la bonne reproductibilité des mesures.

3.2.5 Analyse de soufre et carbone

La teneur en soufre total (S_{total}) et en carbone total (C_{total}) a été déterminée simultanément à l'URSTM à l'aide d'une fournaise à induction modèle ELTRA CS-2000, selon la méthode décrite par le MEND (2009). Le principe de cette méthode consiste à exposer les échantillons à un flux d'oxygène à une température d'environ 1650°C. Le soufre total est déduit à partir de la quantité de dioxyde de soufre (SO_2) dégagée lors de la combustion, mesurée au moyen d'un détecteur infrarouge.

La limite de détection (LDD) pour cette méthode est de 0,05% (p/p) pour le carbone et de 0,009% (p/p) pour le soufre. Le contrôle qualité (QA/QC) des analyses de soufre et de carbone a suivi les mêmes protocoles que ceux appliqués aux autres analyses de composition chimique, garantissant la fiabilité des résultats obtenus.

3.2.6 Analyse minéralogique au synchrotron

Le synchrotron est un accélérateur de particules de haute énergie utilisé pour générer des rayons X extrêmement puissants et précis, permettant l'analyse détaillée de la structure des matériaux. Pour cette étude, les quatre échantillons issus des lithologies de carbonatite, lamprophyre, fénite et brèche ont été envoyés au Canadian Light Source (CLS) situé à Saskatoon, Saskatchewan. Les rayons X générés par le synchrotron ont été utilisés pour réaliser une analyse par diffraction des rayons X (DRX), afin d'identifier et de quantifier les phases minérales présentes dans les échantillons. Bien que cette approche fournisse des résultats semi-quantitatifs, l'identification des phases minérales a été réalisée en s'appuyant à la fois sur les observations au MEB MLA et sur la description minéralogique publiées par Mitchelle et Smith (2017) pour le gisement Ashram. La diffraction des rayons X (DRX), réalisée à l'aide du logiciel DiffracPlus EVA v.5.2.0.3, a permis d'obtenir des résultats semi-quantitatifs, avec une limite de détection estimée entre 0,5 et 1% en poids. La précision de la méthode de Rietveld est estimée à ± 0,5% (p/p) dans des conditions optimales, ce qui permet une estimation fiable de la composition minéralogique des échantillons.

3.2.7 Minéralogie quantitative au microscope électronique à balayage

Une analyse de minéralogie quantitative a été effectuée sur les échantillons des quatre lithologies (carbonatite, lamprophyre, fénite et brèche) en utilisant la microscopie électronique à balayage (MEB) couplée à l'analyse de type *Mineral Libération Analysis*, ou MLA. L'objectif principal de cette analyse était de caractériser les ETR présentes dans les échantillons, en particulier en termes de d'identification des phases minérales porteuses des ETR, leur distribution élémentaire et de leur degré de libération. En plus des ETR, d'autres éléments tels que le fluor, niobium et tantalum ont également été analysés afin de mieux comprendre leur distribution au sein des différentes phases minérales.

Cette approche quantitative a fourni des informations cruciales sur le comportement des ETR au cours des différents processus de traitement, contribuant ainsi à une meilleure compréhension de leur valorisation potentielle.

3.3 Essais cinétiques

Les essais cinétiques en colonnes ont été réalisés à l'URSTM dans le but d'évaluer le comportement géochimique des stériles issus des quatre lithologies (carbonatite, lamprophyre, fénite et brèche), ainsi que leur potentiel de libération des ETR et d'autres éléments comme le fluor. Ces essais ont été conduits dans des colonnes d'un mètre de hauteur et de 14 cm de diamètre, fabriquées en Plexiglas. Les essais en colonne permettent d'accélérer les processus d'oxydation et de lixiviation des éléments afin de simuler les conditions naturelles. Pour cette étude, les colonnes ont été remplies de 20 kg de stériles préalablement concassés à une granulométrie inférieure à 6,3 mm (1/4 de pouce) et homogénéisés. Chaque colonne a été rincée chaque 2 semaines avec 1,8L d'eau afin de collecter les lixiviats et analyser les éléments dissous.

Les paramètres suivis incluent le pH, le potentiel d'oxydo-réduction (Eh), la conductivité électrique (CE), l'acidité, l'alcalinité, ainsi que les concentrations en métaux et en soufre. L'acidité et l'alcalinité ont été mesurées à l'aide d'un titreur automatique Metrolm 848 Titrino Plus. Tous les échantillons de lixiviat ont été filtrés avec une membrane en nylon de 0,45 µm avant l'analyse. Les métaux dissous ont été mesurés par ICP-MS et ICP-AES, tandis que la spéciation du soufre a été déterminée par chromatographie ionique (CI). Afin de prévenir la précipitation des métaux avant l'analyse ICP, les échantillons ont été acidifiés avec du HNO_3 à 2% pour assurer la préservation

des échantillons. Une liste de 30 éléments a été analysée dans le lixiviat : aluminium (Al), arsenic (As), bore (B), baryum (Ba), béryllium (Be), bismuth (Bi), calcium (Ca), cadmium (Cd), cobalt (Co), chrome (Cr), cuivre (Cu), fer (Fe), potassium (K), lithium (Li), magnésium (Mg), manganèse (Mn,) molybdène (Mo), sodium (Na), nickel (Ni), plomb (Pb), soufre (S), sélénium (Se), silicate (Si), strontium (Sr), tellurium (Te), titane (Ti), thallium (Tl), uranium (U), vanadium (V), zinc (Zn) et les concentrations de 17 ETR tels que cérium (Ce), dysprosium (Dy), erbium (Er), europium (Eu), gallium (Ga), gadolinium (Gd), germanium (Ge), hafnium (Hf), holmium (Ho), lanthane (La), lutétium (Lu), neodymium (Nd), praseodymium (Pr), scandium (Sc), samarium (Sm), terbium (Tb), thulium (Tm), ytterbium (Yb)

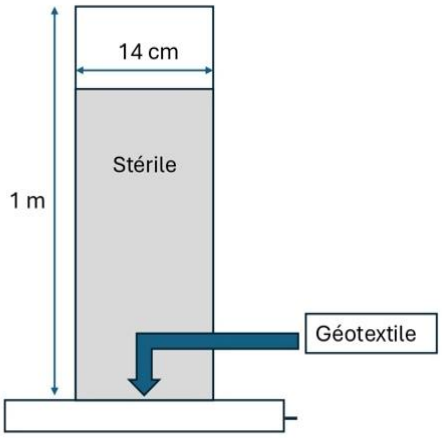

Figure 3.3 Schéma des essais en colonne

Les expériences ont été réalisées en utilisant différentes masses de matériaux pour les colonnes, tout en conservant les mêmes proportions de 37,5% pour la carbonatite et 62,5% pour les autres lithologies, conformément aux études économiques préliminaires indiquant que les stériles de la mine seront composés de 6% de carbonatites et 10% d'autres lithologies. Chaque colonne a été conçue pour contenir environ 20 kg de matériau, sur la base d'un diamètre interne standard de 14 cm et d'une hauteur de 1 mètre, soit un total de 80 kg de stériles répartis sur les quatre colonnes. Les masses disponibles de ces lithologies étaient initialement de 75 kg de fénite, 48 kg de brèche et 24,5 kg de lamprophyre. De ces quantités, 10 kg de chaque ont été mis de côté pour de futurs essais en colonne et 5 kg supplémentaires ont été réservés à des fins de référence et d'analyse. Les masses utilisables restantes étaient donc de 60 kg de fénite, 33 kg de brèche et 9,5 kg de lamprophyre. En considérant la fraction non carbonatée (50 kg) comme 100%, les proportions

relatives ont été calculées comme suit : 58,5% de fénite, 32,2% de brèche et 9,3% de lamprophyre. Par conséquent, le matériel distribué dans chaque colonne était composé de 7,5 kg de carbonatite, 7,5 kg de fénite, 4,5 kg de brèche et 1,25 kg de lamprophyre. Dans la quatrième colonne, une configuration en couches a été mise en œuvre, empilant la fénite, le lamprophyre et la carbonatite de haut en bas. À la base de cette configuration, une couche de 4,15 cm de carbonatite tamisée pour éliminer les particules inférieures à 315 µm a été ajoutée. Cette « couche de carbonatite appauvrie en ETR » ne représente pas une unité géologique distincte, mais plutôt un matériau modifié expérimentalement pour évaluer son potentiel en tant que barrière géochimique. Ainsi, bien que les proportions globales aient été respectées, les masses de cette quatrième colonne ont été ajustées comme suit : 4,5 kg de carbonatite, 2,4 kg de brèche, 4,4 kg de fénite et 0,7 kg de lamprophyre.

Les essais ont été menés sur une durée de 19 rinçages pour les trois colonnes, tandis que la quatrième colonne a subi 15 rinçages car son installation a été retardée par rapport aux autres colonnes. Chaque rinçage a été effectué avec un volume d'eau de 1,8 L, sauf pour les rinçages 11 et 12, lors desquels la moitié du volume a été rincée, et les rinçages 13 et 14, lors desquels le volume a été doublé afin de simuler les conditions moyennes hydriques de la région.

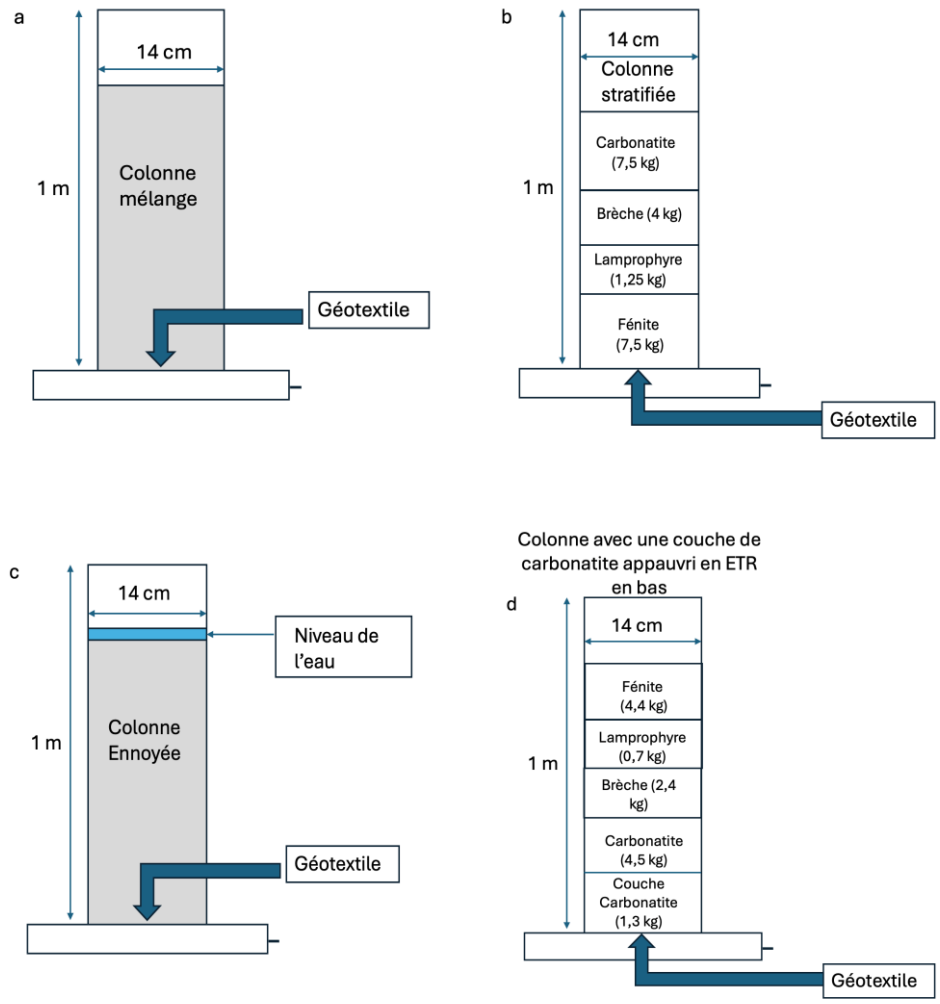

Figure 3.4 Schéma des configurations expérimentales des colonnes, (a) colonne mélange, (b) colonne stratifiée, (c) colonne ennoyée, (d) colonne avec une couche appauvrie en ETR en bas

3.4 Visual MINTEQ

Le logiciel Visual MINTEQ 4.0 (mise à jour en 2025) a été utilisé pour effectuer des calculs d'équilibre thermodynamique, dans le but de modéliser la distribution des espèces chimiques présentes dans les lixiviats issus des essais en colonne (Gustafsson, 2013). Ce logiciel est conçu pour calculer les spéciations des espèces aqueuses et solides dans des systèmes géochimiques à l'équilibre, en tenant compte de la composition chimique des solutions et en utilisant une base de données complète (Lord, 2021). Il est particulièrement adapté pour simuler des environnements naturels et permet de déterminer les réactions de précipitation et de dissolution qui influencent la

chimie des eaux naturelles et des lixiviats (Bussiere, 2007; Plante et al., 2010). Dans cette étude, la base de données utilisée est la base thermodynamique par défaut « MINTEQ.V4.dat », incluse avec Visual MINTEQ 4.0. Les calculs thermodynamiques ont été appliqués aux lixiviats obtenus lors des essais en colonne réalisés sur des stériles provenant de quatre lithologies principales : carbonatite, lamprophyre, fénite et brèche. Ces calculs ont permis de prédire quelles espèces chimiques étaient susceptibles de précipiter ou de rester en solution, fournissant des informations essentielles sur les réactions géochimiques dominantes dans les systèmes expérimentaux. En plus des éléments classiques, la modélisation a inclus les terres rares, permettant ainsi d'étudier leur comportement dans ces conditions géochimiques, notamment leur potentiel de libération et de précipitation.

Un total de 30 éléments a été sélectionné pour les calculs d'équilibre thermodynamique, en particulier ceux impliqués dans les processus d'oxydation des sulfures, susceptibles de générer du drainage minier acide (DMA). Presque tous les paramètres géochimiques mesurés sur les lixiviats et présents dans la base de données ont été inclus dans ces calculs. Les seuls éléments qui n'étaient pas présents dans la base de données étaient Nb, Te et Tl.

Certains éléments, tels que césium (Cs), germanium (Ge), hafnium (Hf), holmium (Ho), indium (In), lutétium (Lu), niobium (Nb), ruthénium (Ru), rhénium (Rh), tantalum (Ta), terbium (Tb), tellurium (Te), thulium (Tm), ytterbium (Yb) et le sélénium (Se), ont été retirés des calculs en raison de concentrations inférieures aux limites de détection ou de résultats incohérents, notamment des valeurs au-dessous a la limite de détection, ou à la précipitation possible de phases secondaires non incluses dans la base de données thermodynamique.

CHAPITRE 4 ARTICLE 1: GEOCHEMICAL BEHAVIOR AND RISK MANAGEMENT OF WASTE ROCK FROM THE ASHRAM RARE EARTH DEPOSIT

Wassim Zarrouk[1], Benoît Plante[1*] , Marc legault[1]

[1]Institut de recherche en mines et environnement (IRME), Université de Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT), 455 Boul. de l'Université, Rouyn-Noranda, QC J9X 5E4, Canada

[*]Corresponding author email: benoit.plante@uqat.ca

Article soumis le 28 mai 2025 à la revue *Geological Exploration*

Ce chapitre présente le manuscrit d'un article scientifique soumis à la revue *Geological Exploration* en mai 2025. Cet article expose les résultats des essais cinétiques en utilisant des échantillons de roches stériles issues du gisement d'Ashram.

4.1 Abstract

The Ashram rare earth deposit, located in Quebec, Canada, is a notable resource for light rare earth elements (LREEs), including cerium, lanthanum, and neodymium, which are crucial for high-tech applications, such as electronics, renewable energy technologies, and advanced manufacturing. This study focuses on understanding the geochemical behavior of mine waste rocks form the Ashram deposit under neutral mine drainage (NMD) conditions, a scenario where drainage water maintains a near-neutral pH but may still facilitate the release of contaminants, including rare earth elements (REEs). A robust and integrated methodology was employed to assess this behavior, combining detailed mineralogical characterization, kinetic testing to simulate long-term weathering process, and thermodynamic equilibrium modeling to gain more insight into mobility of REEs. The primary goal of this research is to conduct a comparative analysis of water contamination risks associated with four different waste rock storage scenarios for the lithologies present at the Ashram deposit include the design and implementation of tailored waste deposition scenarios that minimize the environmental footprint of REE extraction. The study highlights the critical role of lithological controls in influencing REE mobilization and other environmentally relevant elements (Zn, Cu, F, etc.) and provides valuable insights for formulating effective management practices to mitigate potential environmental impacts.

Keywords: Ashram deposit, rare earth element (REE), mineralogical characterization, water quality, risk management.

4.2 Introduction

The accelerated industrialization and economic globalization that have occurred over recent decades have resulted in an exponential increase in demand for natural resources, including rare earth elements (REEs). These 17 elements, which include the lanthanides, scandium, and yttrium, are essential for a multitude of high-tech applications, such as renewable energy technologies, defense systems, and consumer electronics (Dushyantha et al., 2020). For example, REEs are essential for the production of wind turbine magnets, hybrid vehicle batteries, and precision-guided weaponry (Binnemans et al., 2013). Their distinctive magnetic, optical, and catalytic characteristics render them indispensable in contemporary industrial applications (Goonan, 2011). Despite the widespread utility of REEs, the extraction and processing of these materials present substantial environmental challenges. These elements are not inherently scarce; rather, their scarcity is a consequence of the technical and economic challenges associated with their extraction and purification (Lorenz et Bertau, 2020). Furthermore, the mining of REE deposits results in the generation of considerable quantities of solid and liquid wastes, frequently comprising sulfide minerals (such as the Montviel and Kipawa deposits) and other reactive compounds. When exposed to atmospheric conditions, these waste materials can undergo oxidation, resulting in the formation of acid mine drainage (AMD) or neutral mine drainage (NMD) (Blowes et al., 2005; Plante et al., 2014). While AMD has been the subject of extensive study due to its low pH and high metal content, the subject of NMD remains less understood. NMD typically occurs in environments where neutralizing minerals, such as carbonates and silicates, prevent significant pH drops but still allow for the release of metals and metalloids into drainage waters (Bussiere, 2007; Plante et al., 2014). The increasing demand for REEs has led to a significant intensification of mining activities worldwide, with China remaining the dominant producer and supplier in global production and supply chains (Mancheri et al., 2019). However, countries such as Canada, Australia, and the United States are now advancing their REE projects with the objective of reducing their dependency on China and meeting the rising global demand for these materials (Balaram, 2019; Mancheri et al., 2019). In Canada, the Ashram REE deposit, situated in Quebec, represents one of the most promising resources due to its high concentrations of light rare earth elements (LREE), including cerium, lanthanum, and neodymium (Gagnon et al., 2015a). The environmental

management of mining residues from REE extraction is a significant issue that requires immediate attention. Storage of waste rock and tailings can result in prolonged and detrimental environmental impacts if not managed effectively, as the infiltration of water through these materials may trigger geochemical reactions that solubilize chemical species (Edahbi et al., 2018).

The objective of this study is to evaluate the geochemical behavior of mine waste from Ashram REE deposit in the Eldor complex in Quebec, Canada, through a comparative analysis of water contamination risks associated with four different storage scenarios for waste rock lithologies. This study will help to gain insight as to the potential release and mobility of REEs, associated metals, and radionuclides under environmental conditions conducive to NMD, where pH remains near-neutral due to buffering capacity of carbonate minerals, while metal leaching can still occur.

4.3 Ashram Deposit

The Ashram rare earth deposit of Commerce Resources is situated within the Eldor complex, an intrusive suite of Proterozoic age located in northern Quebec, Canada (Gagnon et al., 2015b). The host lithology is predominantly carbonatite, which is associated with breccias and silicate-rich rocks, forming a complex geological assemblage. The Eldor carbonatite complex comprises several lithological units resulting from multiple intrusive phases, including calcio-carbonatite, magnesio-carbonatite, ferro-carbonatite, breccia zones and mafic lamprophyre dykes (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). The materials used in this study were derived from four main sterile units: carbonatite, breccia, fenite, and lamprophyres. The deposit is estimated to contain a total of over 200 MT of material with an average grade of 1.88% total of rare earth oxides (TREO) (Gagnon et al., 2015b). These characteristics render it a globally significant resource for REEs. However, the region's cold climatic conditions, when considered alongside the Eldor complex's hydrogeological complexity, give rise to particular challenges in environmental management (Gagnon et al., 2015a). It is therefore imperative to gain an understanding of the geochemical behavior of the waste produced by this deposit in order to mitigate potential environmental risks (Gagnon et al., 2015a).

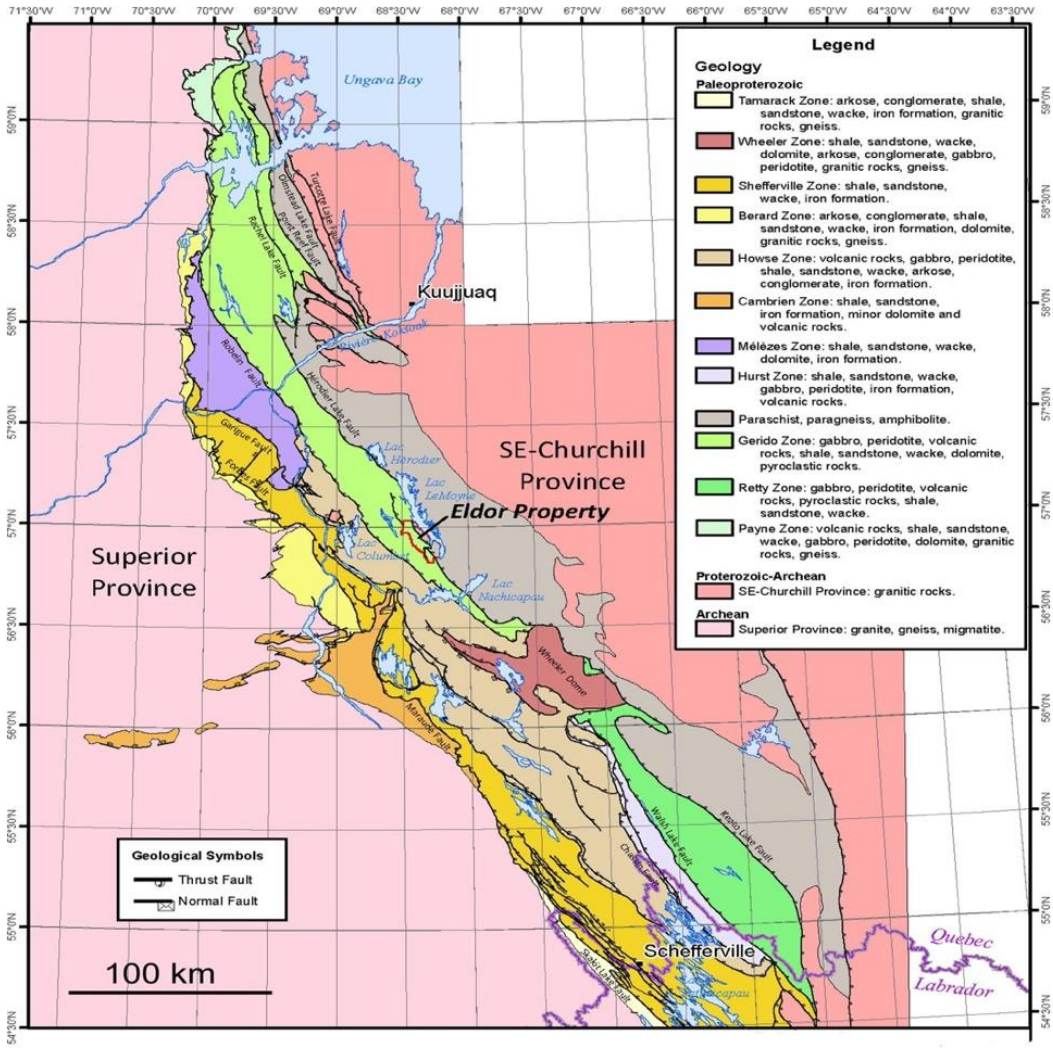

Figure 4.1 Regional geology of the New Quebec Orogen showing Ashram deposit (Clark et Wares, 2006)

4.4 Materials and Methods

The methodological framework integrates detailed mineralogical characterization, kinetic testing, and thermodynamic equilibrium calculations to provide a comprehensive assessment of the interactions between mining waste and its environment. All analyses and tests were designed to ensure the representativeness and reliability of the results obtained, reflecting the specific characteristics of the studied lithologies and their potential environmental impacts.

The experiments were carried out using different masses of material for the columns, while maintaining the same proportions of 37.5% for carbonatite and 62.5% for other lithologies, in line

with preliminary economic studies indicating that the planned open-pit will be composed of approximately 84% ore and 16% waste rock, of which about 6% consists of carbonatite with low REE content and 10% of other lithologies (Gagnon et al., 2015b). This experimental design was chosen to reflect representative composition of the future waste rock mix at Ashram, rather than testing each lithology individually. The kinetic behavior of each lithology is currently being investigated in more detail in the complementary work of Sow (2025), which will allow for a better understanding of their individual contributions to leachate chemistry. Three configurations were tested to simulate different mine waste rock management scenarios: i) a mixed column (where all lithologies were mixed), ii) a flooded column (where the materials were submerged to mimic water saturation), and a stratified column (in which lithologies were layered with fenite at the base to simulate stratification within a waste rock pile). The four lithologies used in the column tests were carbonatite, breccia, fenite and lamprophyre. The sterile carbonatite, in the Ashram deposit contains low concentrations of REEs (under 1.25% TREO). However, it does contain a few accessory minerals, such as monazite and bastnaesite, without constituting an economically exploitable resource (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). The breccia is a weakly mineralized unit characterized by clastic textures composed predominantly of carbonatite fragments, with variable carbonate content (Beland et Williams-Jones, 2021). The fenite is a metasomatic rock surrounding the carbonatite, composed mainly of K-feldspar, amphibole and quartz. Finally, the lamprophyre is a dark, mafic intrusive rock observed as dykes cutting through the complex.

Each column was designed to hold around 20 kg of material, based on a standard internal diameter of 14 cm and a height of 1 meter, for a total of 80 kg of waste rock spread over the four columns. Lithological proportions were determined on the basis of the Ashram project's preliminary economic assessment, which indicates that the waste rock is composed of 37.5% of carbonatite and 62.5% other lithologies. The available masses of these lithologies were initially 75 kg fenite, 48 kg breccia and 24,5 kg lamprophyre. Of these quantities, 10 kg of each were set aside for future column tests and a further 5 kg were reserved for reference and analysis purposes. The remaining usable masses were therefore 60 kg fenite, 33 kg breccia and 9,5 kg lamprophyre. Taking the non-carbonatite fraction (50 kg) as 100%, the relative proportions were calculated as follow: 58.5% fenite, 32.2% breccia and 9.3% lamprophyre. Consequently, the material distributed in each column consisted of 7.5 kg carbonatite, 7.5 kg fenite, 4.5 kg breccia and 1.25 kg lamprophyre. In

the fourth column, a layered configuration was implemented, stacking fenite, lamprophyre and carbonatite from top to bottom. At the base of this configuration, a 4.15 cm layer of carbonatite sieved to remove particles smaller than 315 µm was added. This "rare earth-depleted carbonatite layer" does not represent a distinct geological unit, but rather an experimentally modified material to assess its potential as a geochemical barrier. Thus, although the overall proportions were respected, the masses for this fourth column were adjusted as follows: 4.5 kg of carbonatite, 2.4 kg of breccia, 4.4 kg of fenite and 0.7 kg of lamprophyre. Tests were carried out over a period of 19 rinses, with a frequency of one rinse every two weeks for the first three columns, while the fourth column underwent 15 rinses, at the same frequency. Each rinse was carried out with a deionized water volume of 1.8 L, except for rinses 11 and 12, where half the volume (0.9L) was rinsed, and rinses 13 and 14, where the volume was doubled (3.6 L) to simulate regional water conditions.

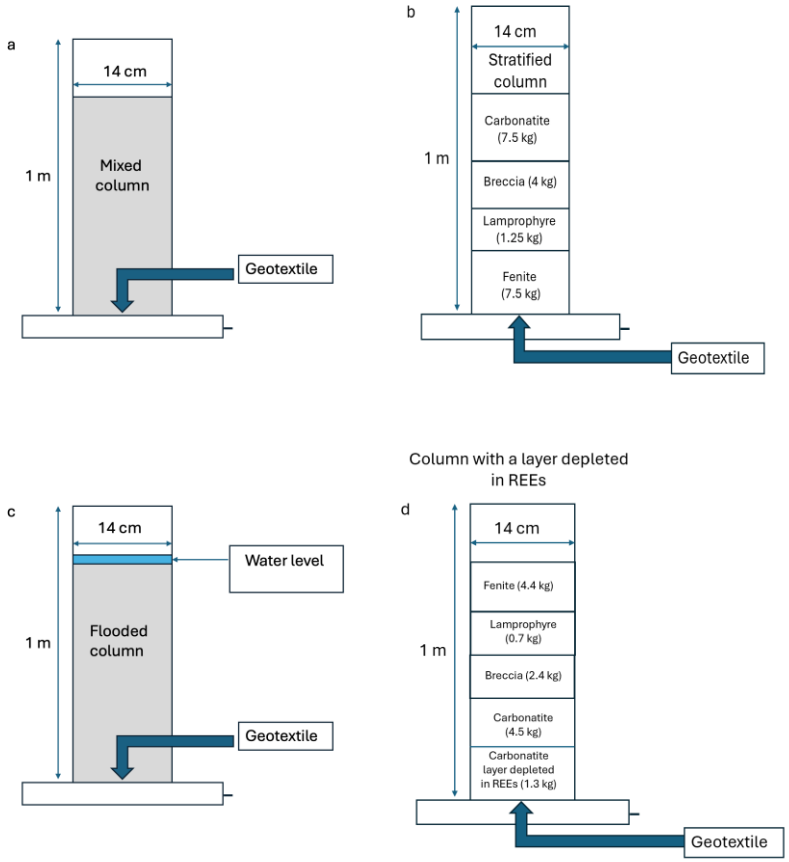

Figure 4.2 Schematic representation of the experimental column configurations, (a) mixed column, (b) stratified column, (c) flooded column, (d) column with a REE-depleted layer at the bottom

4.4.1 Sampling

The material utilized for this study encompassed approximately 298 sample bags of half core, with a mean weight of 3 to 5 kg each, amounting to a total of approximately one tonne of samples representative of mine waste materials, collected from the four primary lithologies of the Ashram deposit. The selection of these samples and subsequent sub-samples was conducted based on statistical analysis of the chemical data provided by Commerce Resources, in order to obtain samples that best reflect the composition of each lithology. Composites were formed to represent the average of each lithology, ensuring that subsequent tests were performed on representative samples. These samples were then subjected to kinetic column tests to assess their long-term geochemical behavior.

4.4.2 Characterization Methods

The characterization of the Ashram deposit's mine waste samples was conducted using a combination of physical, chemical, and mineralogical analyses to ensure a comprehensive assessment of samples properties. The particle size distribution was determined by sieving, whereby the samples were classified into distinct size fractions. Specific gravity (SG) measurements were conducted on powdered samples with a particle size of less 300 µm using a Micrometrics Helium Pycnometer, in accordance with established protocols (Merkus, 2009). Chemical composition analyses were conducted using advanced methods. To determine the major oxide composition, whole rock analyses were conducted with X-ray fluorescence (XRF) at SGS laboratories, where standard QA/QC protocols were applied, including analytical blanks, duplicates, and certified reference materials, in accordance with Quebec Center of Expertise in Environmental analysis (CEAEQ) guideline. The analytical error is estimated to be ±5%. The total sulfur and carbon contents were quantified using an induction furnace, following the same QA/QC procedures, and detection limits were 0,009 wt.% for sulfur and 0,05 wt.% for carbon, with an estimated analytical uncertainty below ±5%. For the analysis of trace elements and REEs, inductively coupled plasma atomic emission spectrometry (ICP-AES) and inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) were employed, following four-acid digestion process involving hydrochloric acid (HCl), nitric acid (HNO_3), perchloric acid ($HClO_4$), and hydrofluoric acid (HF), These analyses were also performed at SGS, in accordance with CEAEQ guidelines.

The analytical error is estimated to be within ±5%, based on repeated analysis of standards and duplicates (Lord, 2021).

The mineralogical composition of the samples was determined using the Mineral Liberation Analyzer (MLA) technique coupled with a Scanning Electron Microscopy (650 FEG ESEM at Queen's University (Kingston, Canada)) on polished sections of each lithologies and corroborated by observation of equivalent thin sections on optical microscope. This approach yielded quantitative data regarding modal composition and grain size distribution of REE-bearing minerals as well as for other minerals (Schulz et al., 2019). Complementary mineralogical identification was also supported by synchrotron-based X-ray diffraction (XRD) at Canadian Light Source (CLS) in Saskatoon and allowed for robust mineralogical reconciliation. The polished sections were prepared in accordance with a protocol designed to prevent the preferential sedimentation of heavy minerals (Kwitko-Ribeiro, 2012).

All leachates obtained from the column tests were subjected to analysis using ICP-AES and ICP-MS. The analytical error for rinsing solution is estimated to be within ±10%. Prior to analysis, the leachates were filtered through a 0.45 µm membrane and acidified to 2% HNO_3 to stabilize solutions and prevent metalloids precipitation. Immediately following the collection of leachates, measurements of pH and oxidation reduction potential (ORP) were conducted utilizing a pH/mV meter. The determination of acidity and alkalinity was conducted through titration, with sodium hydroxide employed for the assessment of acidity and sulfuric acid utilized for alkalinity measurements (Lord, 2021).

4.4.3 Thermodynamical equilibrium calculations

Geochemical speciation was calculated using Visual MINTEQ (version 4.0 updated march 2025) software to predict the behavior of REEs and associated elements during the weathering of mining waste from the Ashram deposit (Gustafsson, 2013). The software was employed to examine the speciation of REEs in aqueous systems, thereby offering insight into the prevailing chemical forms and their interactions with other ions (Bussiere, 2007; Plante et al., 2010). All thermodynamic calculations were based on the MINTEQ.v4.dat database, included by default in the software, which contains stability constants for a wide range of aqueous and solid species relevant to natural and mining-impacted waters. Additionally, saturation indices were calculated to assess the potential formation or dissolution of secondary minerals, including REEs in drainage water (Edahbi

et al., 2018). These calculations were instrumental in identifying the principal geochemical processes that could regulate the release and immobilization of REEs and metals, thereby helping to elaborate strategies for the management of the environmental risks associated with mining waste.

4.5 Results and discussion

4.5.1 Physical and chemical characterization

The results of the physical and chemical characterization of Ashram waste rock samples are presented in Table 4.1. The analyzed samples display important variability in their physical and chemical proprieties, which underscores the distinctive characteristics inherent to each lithology. The specific density values observed range from 2.9 to 3.02, which is consistent with the characteristics of carbonate and silicate-rich rocks (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017; Sappin et al., 2015). The grain size distribution analyses indicate that the breccia possesses the coarsest particle size distribution (D90: 1616 µm), while the carbonatite exhibits the finest fractions (D90; 1448 µm). The bulk chemical composition of the waste rock samples illustrated that the lamprophyre is enriched in silica (SiO_2 = 20.9 wt.%) compared to the other three units, reflecting a relatively more silicate-rich composition within the context of the studied units (Table 4.1). Conversely, the carbonatite is distinguished by elevated calcium (CaO = 30.6 wt.%) and magnesium (MgO = 15.9 wt.%) levels, consistent with its carbonated mineralogy. Breccia and fenite exhibit intermediate iron oxide contents (Fe_2O_3 = 9.01 and 7.16 wt.%, respectively), which can be attributed to the presence of iron-bearing minerals such as ankerite and siderite. The total sulfur remains low across all lithologies, with the highest concentration observed in lamprophyre (0.397 wt.%), indicating a limited presence of sulfides or sulfates. In contrast, carbonatite displays the highest total carbon content (11.3 wt.%), indicative of its abundance of carbonate phases. Overall, the measured chemical compositions are very similar with chemical data obtained from the company. These compositional disparities bear significant implications for geochemical behavior, as the high silica content of lamprophyre may reduce its chemical reactivity, whereas the carbonate-rich composition of carbonatite enhances its capacity for acid neutralization.

Table 4.1 Physical and chemical characterization of Ashram samples

	Carbonatite	Breccia	Fenite	Lamprophyre
Specific gravity (Gs)	2.97	3.02	2.94	2.97
D10	8.77	8.64	11.3	9.82
D50	344	480	441	361
D90	1448	1616	1604	1591
Total S (%)	0.091	0.348	0.365	0.397
Total C (%)	11.3	10.45	8.92	6.50
Major oxides (wt. %)				
SiO_2	2.35	3.47	9.73	20.9
Al_2O_3	0.27	0.80	2.43	7.69
Fe_2O_3	5.33	9.01	7.16	10
MgO	15.9	13.9	14.9	11.4
CaO	30.6	28.2	26.1	17.6
Na_2O	0.04	0.08	0.24	1.08

Table 4.1 Physical and chemical characterization of Ashram samples (suite)

	Carbonatite	Breccia	Fenite	Lamprophyre
K_2O	0.06	0.37	1.23	2.82
TiO_2	0.06	0.42	0.80	0.95
P_2O_5	2.96	2.98	3.02	1.27
MnO	0.85	0.98	0.63	0.61
Elemental concentration (ppm)				
Al	970	3600	14000	40000
As	28	36	15	21
Ba	190	350	1500	3800
B	3.5	6.3	24	23
Bi	0.49	1.8	0.35	0.51
Ca	190000	170000	180000	120000
Cd	1.6	1.6	1.6	3
Co	4.4	12	17	28
Cr	14	15	8	27
Cu	2.9	11	55	47

Table 4.1 Physical and chemical characterization of Ashram samples (suite)

	Carbonatite	Breccia	Fenite	Lamprophyre
Fe	32000	54000	48000	66000
Li	19	28	130	66
Mg	84000	71000	88000	62000
Mn	5900	6700	5000	4500
Mo	5.4	8.6	3.7	2.8
Na	400	670	1600	7900
Ni	11	14	7,6	51
Pb	69	400	22	860
Sr	3200	2500	3100	1900
Tb	16	25	6,9	10
Th	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
Ti	140	730	1300	4300
Tl	2.8	3.9	1.3	1.8
U	0.62	12	9.2	0.81

Table 4.1 Physical and chemical characterization of Ashram samples (suite)

	Carbonatite	Breccia	Fenite	Lamprophyre
Zn	190	430	260	82
K	860	4200	14000	23000
La	1100	1700	510	710
Ce	2600	3500	1200	1600
Eu	50	67	20	30
Er	26	39	12	18
Dy	66	110	30	43
Gd	140	200	60	87
Ho	10,5	16	4,9	7,1
Lu	2.0	2.6	1	1.3
Nd	1200	1500	510	760
Pr	320	390	140	200
Sc	23	40	18	37
Se	7.0	10	3.1	4.3

Table 4.1 Physical and chemical characterization of Ashram samples (suite)

	Carbonatite	Breccia	Fenite	Lamprophyre
Sm	180	240	74,6	110
Y	240	360	120	170
Yb	16.4	22	7.8	10.3
ΣLREE	4200	5830	1925	2620
ΣHREE	570	846	264	379
HREE/LREE(s)	7.37	6.90	7.29	6.92
ΣREE	5993	8216	2717	3796

Trace element results indicate that all four units contained elevated values of REE, exceeding the indicial threshold of 1700 ppm set by the Ministry of Natural Resources and Forests of Quebec. Carbonatite and breccia exhibited the highest concentrations of REE (5993 and 8216 ppm, respectively), underscoring their predominant role in mobilizing REEs. In contrast, the fenite and lamprophyre exhibit lower levels of REEs (2717 and 3796 ppm, respectively) indicative of a lower carbonatite component. Furthermore, a consistent predominance of LREE over HREE, resulting in LREE/HREE ratios from 6.90 to 7.37 were observed which is typical of mineralized carbonatites. These findings suggest the partitioning of REE among different rock formations is consistent. In addition to REEs, significant variations in other trace elements are observed between lithologies. Notably, barium (Ba) levels are substantially higher in fenite (1500 ppm) and lamprophyre (3800 ppm) compared to carbonatite (190 ppm). Lead (Pb) also showed notable variability, reaching up to 860 ppm in lamprophyre, high values of zinc (Zn) and strontium (Sr) were detected in all lithologies, with Zn reaching a peak of 820 ppm in lamprophyre. Thorium (Th), despite its common association with REE-bearing minerals, was below the detection limit in all solid samples (< 0,01 ppm) and (< 0,001 ug/L) leachates.

The NASC-normalized REE distribution patterns (Figure 4.3) reveal significant enrichment of REEs in all lithologies analyzed. Breccia samples show the highest REE enrichment, followed by carbonatite, lamprophyre, and fenite. The overall pattern exhibits a steeply decreasing trend from light REEs (LREEs) to heavy REEs (HREEs), indicating a strong LREE enrichment relative to HREEs. Slight positive anomalies of Ce and Eu are observed, particularly in carbonatite and breccia, suggesting the presence of Ce^{3+} and Eu^{2+} under reducing conditions (Leybourne et al., 2000; Purdy, 2014). The relatively flat patterns in the LREE domain followed by a sharp decline toward the HREE domain suggest a mineralogical control on REE distribution, potentially linked to the presence of LREE-bearing fluoro-carbonates such as bastnäsite and parisite. These geochemical signatures provide valuable insights into the lithological control over REE mobility and their potential behavior during leaching scenarios. The high enrichment factors (EF > 1) across all REEs confirm that the concentrations in these materials exceed those of the average upper continental crust represented by NASC (Gromet et al., 1984).

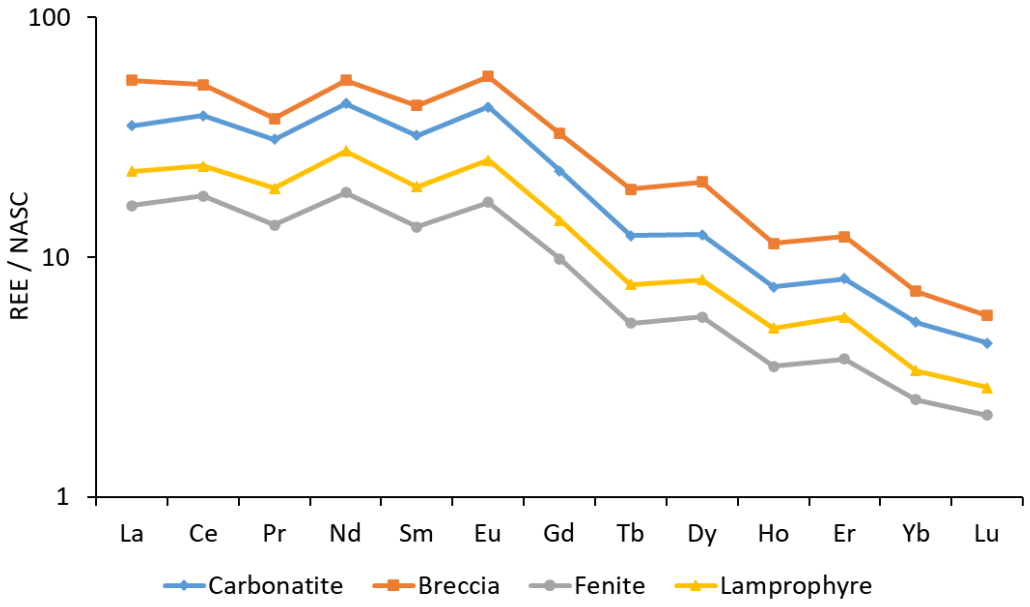

Figure 4.3 NASC-normalized REE patterns of studied lithologies

4.5.2 Mineralogical composition of the Ashram lithologies

The mineralogical composition of the four lithologies demonstrates notable variations in minerals, particularly those associated with REEs (Table 4.2). Reconciled mineralogical data (MLA-SEM

and XRD reconciled with whole rock geochemical data) indicated that ankerite is prevalent in all lithologies, with values ranging from 49.5% in lamprophyre to 83.8% in breccia. Furthermore, the presence of biotite is notably higher in fenite (18.2%), and lamprophyre (21.2%) compared to carbonatite and breccia, indicating a stronger contribution of silicate in these particular lithologies as suggested by chemical compositions. REE-bearing minerals, such as monazite-(Ce) and bastnasite-(Ce), were present in low proportions in all samples. Carbonatite and breccia exhibited relatively higher concentrations of monazite (0.04% - 0.72%) and bastnasite (0.17%), which align with the higher ΣREE values observed in these lithologies. Parisite, another REE-bearing carbonate identified in the materials, is notably present in carbonatite (1.03%), highlighting the role of carbonates as key host phases for REEs. The presence of fluorite (0.23% to 1.97%) and apatite (2.84 to 8.21 %) in all lithologies, may also represent hosts to REE as they have the capacity to incorporate these within its crystal structure, particularly in lamprophyre and carbonatite (Edahbi et al., 2018). However, the presence of these minerals alone does not necessarily indicate REE enrichment, as this depends on their specific chemical composition and crystallographic substitution mechanisms. In fact, elemental deportment data (Figure 4.5) show that REE contents in these two minerals are generally very low, typically below 0.5 wt%. This trend aligns with the findings of studies on alkaline and carbonatite complexes (Edahbi et al., 2018). The minimal presence of pyrite/pyrrhotite (0.17%-0.74%), galena (< 0,07%) and sphalerite (<0.04%) suggested a low mobilization potential from sulfide oxidation in these lithologies. However, microscopic observations have confirmed the presence of pyrrhotite and galena, particularly in the breccia. Moreover, preliminary observations from an ongoing parallel study suggest that lead may be mobilized under certain conditions in this lithology. Although no significant Pb leaching was observed in the present study, this potential should not be entirely excluded. The minerals and their abundances are consistent with observations on thin sections by optical microscopy and with previous observations on carbonatite lithologies (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017).

Table 4.2 Mineralogical characterization of the kinetic cell materials by SEM MLA

Mineral	Formulae	Carbonatite	Breccia	Fenite	Lamprophyre
Ankerite	$(Ca(Fe{+}{+},Mg,Mn)(CO_3)_2$	79.2	83.8	57.8	49.5
Apatite	$(Ca_5(PO_4)_3)F$	8.21	6.17	7.36	2.84
Albite	$NaAlSi_3O_8$	0.24	0.23	1.34	9.41
Fluorite	CaF_2	0.86	0.77	0.23	1.97
Biotite	$K(Mg,Fe{+}{+})_3AlSi_3O_{10}(OH,F)_2$	1.24	1.92	18.2	21.2
Quartz	SiO_2	0.38	0.18	1.02	0.8
Calcite	$CaCO_3$	0.06	0.05	2.68	0.15
Dolomite	$CaMg(CO_3)_2$	7.77	3.08	9.5	2.02
Orthoclase	$KAlSi_3O_8$	0.12	1.08	0.11	1.35
Chlorite	$(Fe,Mg,Al)_6(Si,Al)_4O_{10}(OH)_8$	0.12	0.27	0.13	1.07
Parisite	$Ca(Ce,La)_2(CO_3)_3F_2$	1.03	0.15	0.06	0.49
Barite	$BaSO_4$	0	0	0.02	0
Monazite-(Ce)	$(Ce,La,Nd,Sm,Th)(P,Si)O_4$	0.04	0.72	0.32	0.01
Bastnaesite-(Ce)	$(Ce,La)CO_3F$	0.17	0.17	0.07	0.11

Table 4.2 Mineralogical characterization of the kinetic cell materials by SEM MLA (suite)

Mineral	Formulae	Carbonatite	Breccia	Fenite	Lamprophyre
Pyrite	FeS_2	0.17	0.36	0.66	0.74
Pyrrhotite	$Fe_{(1-x)}S$	0	0.07	0	0.02
Galena	PbS	0	0.01	0	0.02
Others		0.37	0.9	0.69	0.23

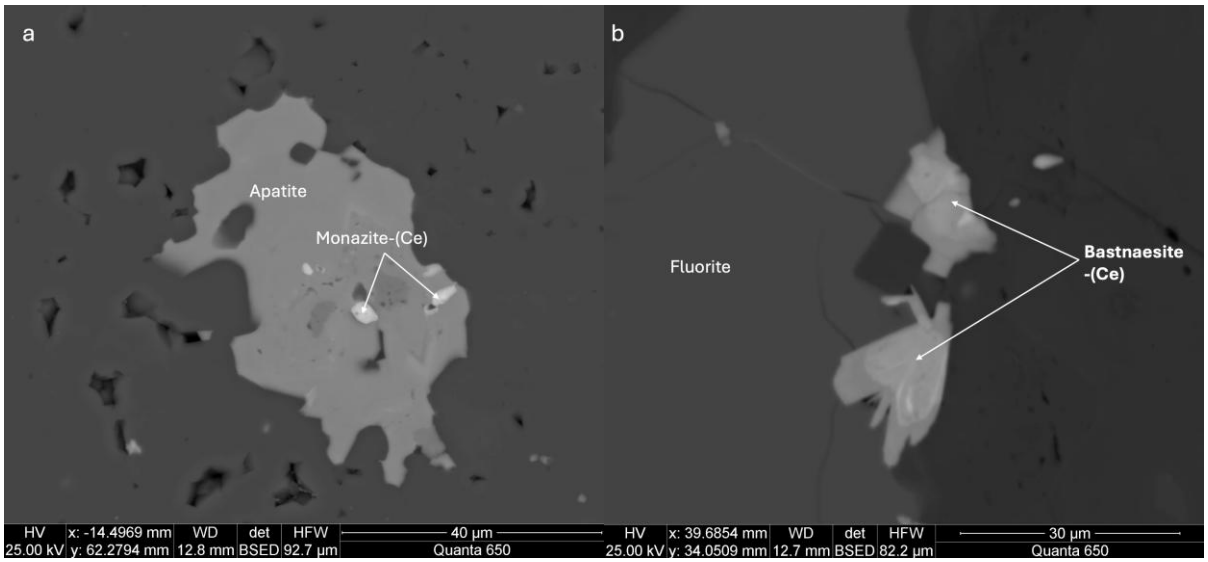

Figure 4.4 MEB MLA images showing different mineral phases associated to REE for Ashram samples; a: breccia (REE bearing minerals: monazite-(Ce)); b: fenite (REE bearing minerals: bastnaesite-(Ce))

The liberation degree of REE-bearing minerals across the four lithologies is illustrated in figure 4.5. A considerable proportion of REE-bearing minerals remain locked (0 -30%), meaning that a large percentage of grains are not fully liberated, which can limit the efficiency of physical separation methods. This pattern was observed across all lithologies and is related with the fine-grained texture. According to MLA particle size data, most REE-bearing minerals in these lithologies have particle sizes below 100 µm, which may limit their release and recovery under

conventional processing conditions (Figure 4.4). These observations highlight the limited mobility of REEs in these lithologies under current conditions, which may be explained by the encapsulation of REEs-bearing minerals in gangue phases such as ankerite and biotite. As the samples are neither treated nor ground, these minerals remain largely inaccessible to percolating water, thus limiting REEs leaching.

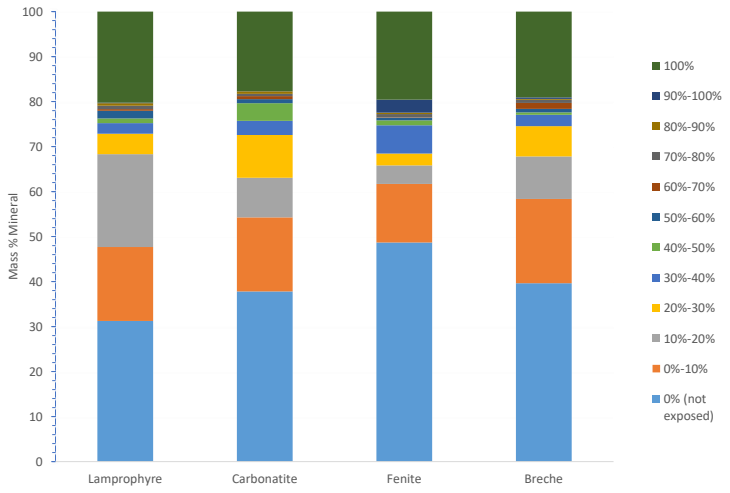

Figure 4.5 The liberation degree of REE-bearing minerals in Ashram lithologies as determined by MLA-SEM

<u>REE deportment</u>

The distribution of REEs including La, Ce, and Nd across the various lithologies reveals the combined role of parisite, bastnäsite and monazite-(Ce) as the main host minerals (Figure 4.6), especially in carbonatite and breccia. Specifically, parisite dominates the distribution of Ce and La, particularly in carbonatite and lamprophyre, while bastnäsite is more important in fenite and breccia, contributing significantly to the association of Nd with monazite-(Ce) (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017) as well as other mineralized carbonatites around the world (Simandl, 2015). In the case of fenite, monazite also contributes significantly to the total REE mineralogy. In comparison, lamprophyre has a relatively less complex REEs mineralogy, dominated mainly by parisite. Parisite plays an important role in the REEs mineralogy of the lithologies studied. It is particularly abundant in carbonatite (1.03% wt), where it outweighs bastnäsite-(Ce) (0.17% wt) and monazite-(Ce) (0.04% wt). In lamprophyre, parisite (0.49% wt) also dominates bastnäsite and monazite. While less dominant in breccias and fenite, its presence

remains notable, underlining its variable but not negligible contribution to the behavior of REEs in different lithologies. While this phase is not reported in previous studies of the Ashram deposit (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017), MLA analyse indicates that La, Ce and Nd are mostly found within bastnasite-(Ce) and monazite in breccia and fenite whereas they are found in REE-carbonates in carbonatite and lamprophyre. This distribution could have an impact as REE-phosphates are more resistant to weathering than REE-carbonates (Edahbi et al., 2018).

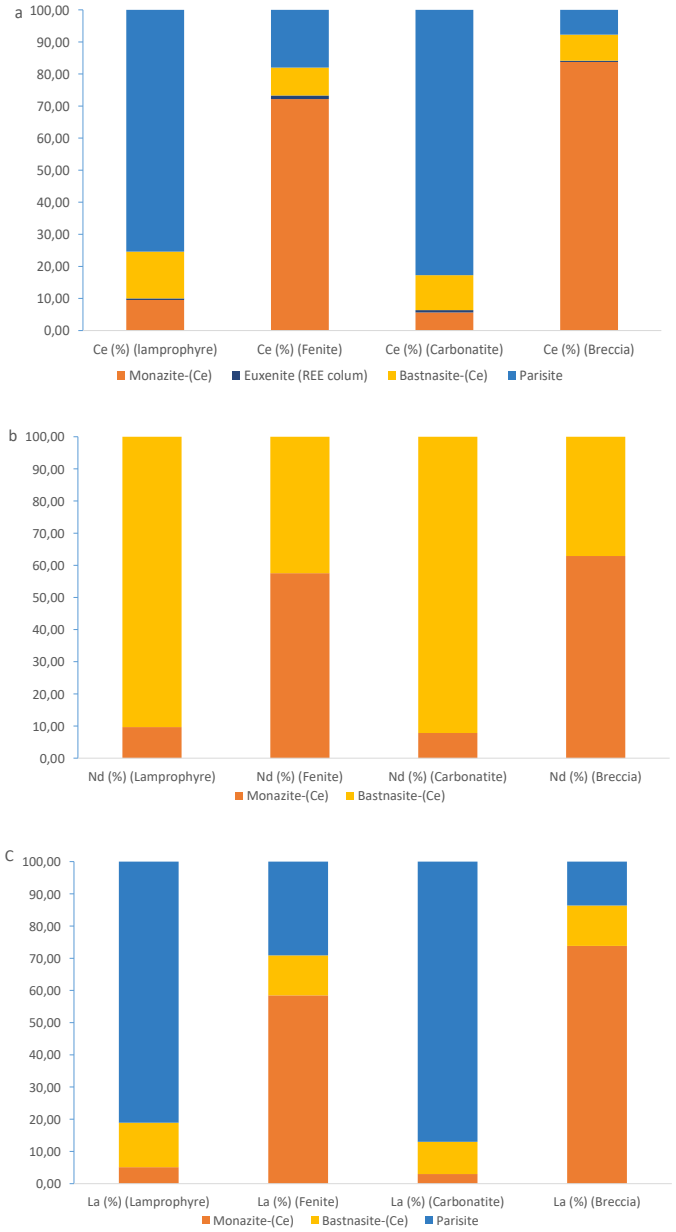

Figure 4.6 Deportment of Ce (a), Nd (b), and La (c) in REE-bearing minerals of the four lithologies

4.5.3 Water quality leachates from kinetic column tests

Important interactions between pH, redox conditions, alkalinity, and major and trace element release dynamics are highlighted by the geochemical behavior observed in the leachates collected from the columns. The pH profiles remained stable within a slightly alkaline range (8.2 – 8.7), primarily controlled by the dissolution of carbonates, with ankerite identified as the dominant phase, which provide buffering capacity (Figure 4.7a). Electrical conductivity trends showed an initial spike, particularly in the mixed and stratified columns, reflecting a first flush (Maest et Nordstrom, 2017), followed by a gradual decline, which may reflect a progressive decrease in ankerite dissolution rate as the system approaches equilibrium, rather than a complete absence of dissolution (figure 4.7b). The Eh values were comprised between 450 and 650 mV, reflecting overall oxidizing conditions across all columns. Alkalinity stabilized at values between 100 and 150 mg$CaCO_3$/L for all columns from 100 days onward (Figure 4.7c).

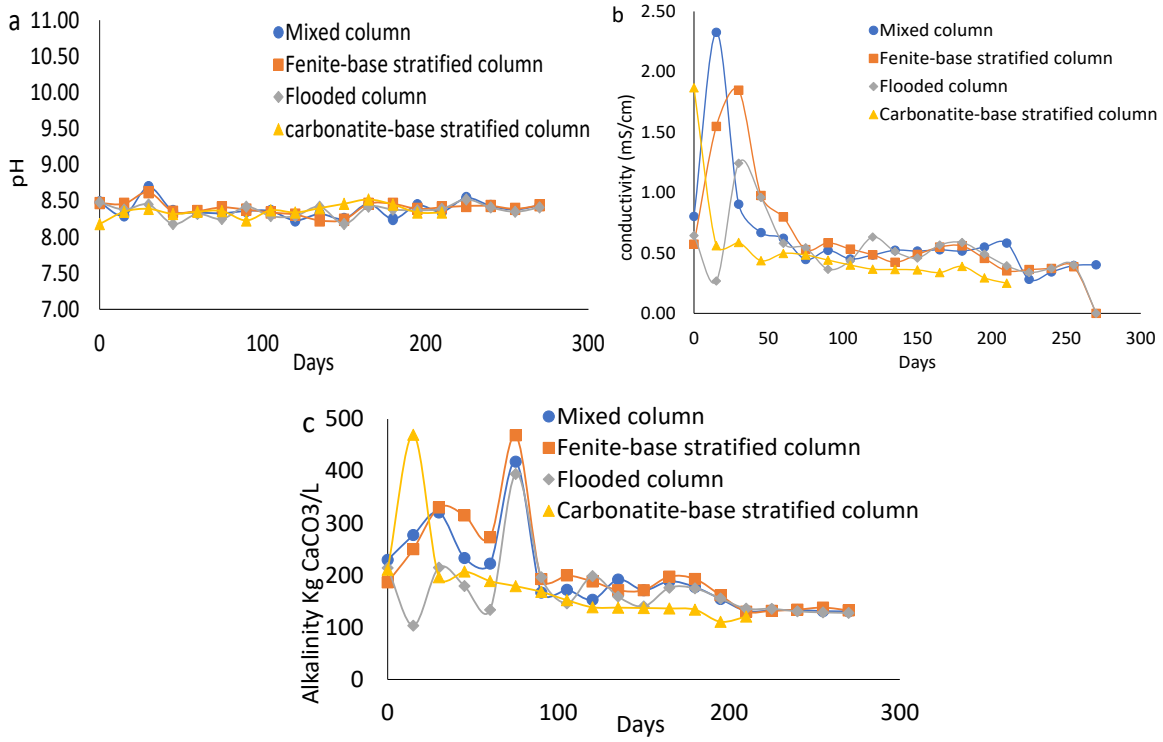

Figure 4.7 Evolution of pH (a), conductivity (b), and alkalinity (c) from kinetic tests on all lithologies

The discussion focuses on a selection of metals that exhibited significant concentrations or notable trends in the leachates (figure 4.8). Other elements were either below detection limits or present at

concentrations too low to warrant interpretation. Among the metals, Zn (figure 4.8a) showed a notable peak in the flooded column during the first 50 days, likely driven by the probable dissolution of sphalerite or associated phases, before stabilizing as the leachable sources of Zn were depleted. Copper (figure 4.8b) concentrations showed an early peak in the carbonatite-base stratified column reaching up to 0,15 mg/l. After approximately 100 days, Cu levels stabilized across all columns, generally fluctuating between 0.015 and 0.045 mg/L, consistent with the low solubility of Cu at near-neutral pH values. Although not shown, Al remained below 0.04 mg/L throughout the test, whereas Fe remained below 0.1 mg/L, coherent with their low solubility at near-neutral pH and the absence of ankerite dissolution for Fe and silicates for Al (Blowes, 2013). Fluor concentrations (figure 4.8c) varied between 4 and 16 mg/L, likely from dissolution of fluorite showing a decreasing trend from approximately 150-200 days of testing onward. Calcium (figure 4.8d), known for its role in maintaining alkaline pH stability, exhibited steady and elevated concentrations across all columns, consistent with carbonate minerals, primarily ankerite, but also potentially minor amounts of calcite and dolomite present. In contrast, barium (figure 4.8e) displayed a distinct behavior, particularly in the flooded column, where its concentrations varied significantly to the more uniform patterns observed for Ca and Sr. This unique behavior may be attributed to the presence of barite and other Ba-bearing minerals (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). Sulfur concentrations (figure 4.8f) peaked during the first 40 days, reaching up to 85 mg/l in the feinte-base stratified column and 75 mg/l in the mixed column. This early release was followed by a marked decrease across all setups, stabilizing at concentrations between 15 and 25 mg/l after approximately 175 days, with minor secondary fluctuations. Strontium (figure 4.8g) showed a behavior very similar to that of Ca, likely due to its substitution for Ca in carbonate minerals. This relationship is further supported by its detection within Ca-bearing phases through MLA analysis. No discrete Sr-bearing minerals, such as celestine $SrSO_4$ or strontianite $SrCO_3$, were identified in previous studies of Ashram deposit (Beland et Williams-Jones, 2021; Mitchell et Smith, 2017). For the REE (figure 4.8h) their concentrations in the leachates decrease progressively over time in all columns. The carbonatite-base stratified column exhibited the highest initial concentration of leached REE, peaking around 0,0035 mg/L, while the mixed, fenite-base stratified and flooded columns maintained lower and more stable levels throughout the experiment, and this trend was consistent for La, Ce and Nd. These elements showed similar leaching behavior, which can be attributed to their mineralogical distribution, mainly in

relatively insoluble phases such as parisite and monazite. Furthermore, all measured concentrations of regulated elements, notably Cu (< 0.1 mg/L except one leachate at 0.14 mg/L), Zn (< 0.2 mg/L) and Fe (< 0.1 mg/L), were below the maximum daily thresholds specified in Directive 019 (2025), which are 0.1 mg/L, 0.4 mg/L and 3 mg/L respectively.

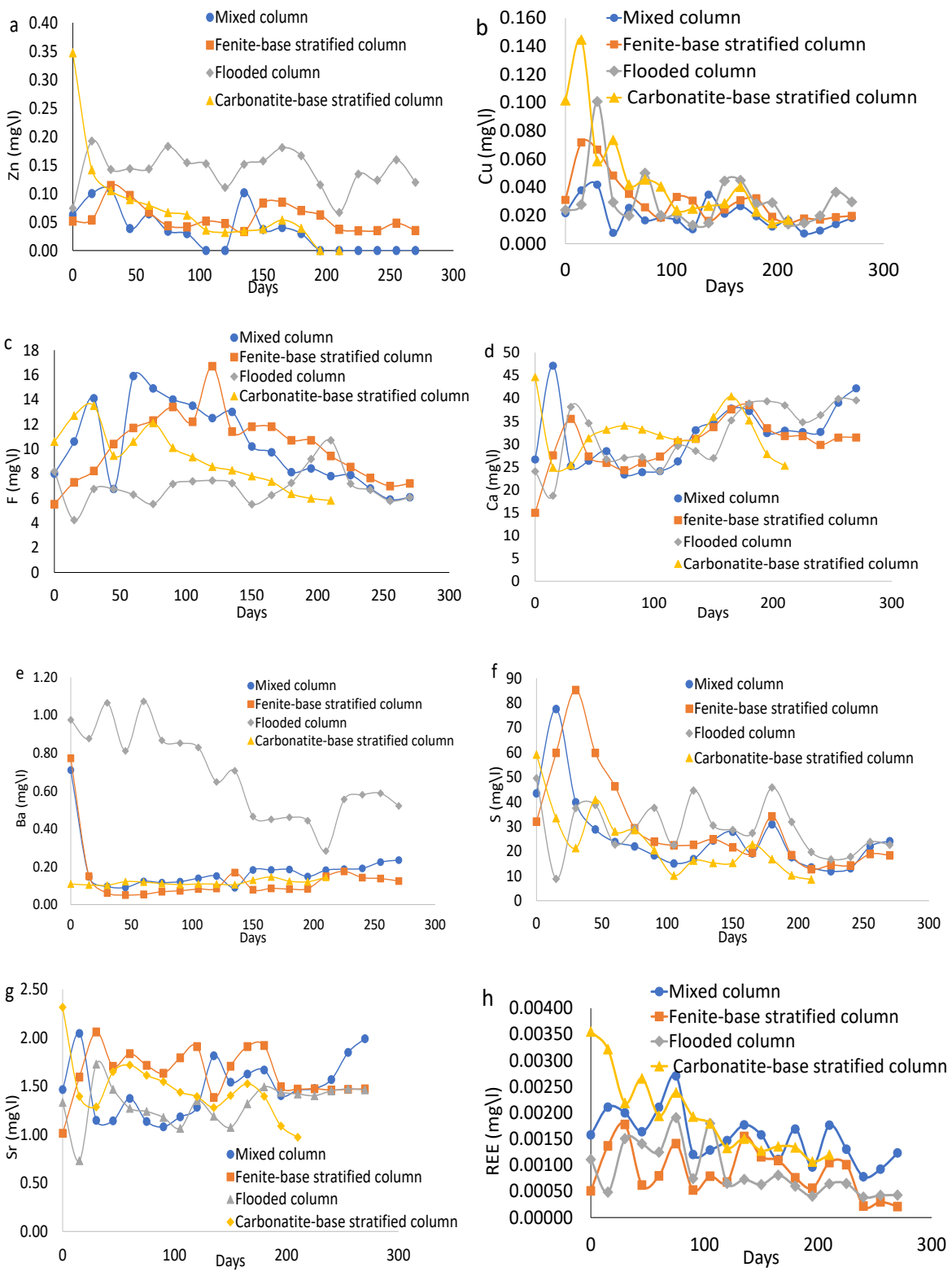

Figure 4.8 Zn (a), Cu (b), F (c), Ca (d), Ba (e), S (f), Sr (g) and REE (h) concentrations form kinetic tests

4.5.4 Mineralogical evolution during Ashram waste rock weathering

The cumulative leaching of Ca^+, Mg^+, Mn^+, Fe^+, Ba^+, Sr^+, F^+, and REEs during the column tests, normalized to sample masses in the columns, are depicted in figures 4.9 (a) to (c) and all show a continuous increase without any evident plateau. The dissolution of carbonates, including both REE-bearing and non-REE-bearing minerals phases, emerges as a dominant neutralization process (mostly non REE-bearing minerals), as evidenced by the leaching of Ca, Mg, Mn, Ba, Sr, F, and REEs in the leachates. The sustained release of REE indicates ongoing weathering of REE-bearing minerals. However, in the absence of post-dismantling mineralogical analyse, it remains difficult to determine which specific phases contributed most to leaching. Subsequently, figure 4.9b shows the cumulative loads of Ca+Mg+Mn+Ba+Sr+F over time, reflecting the progressive dissolution of carbonate minerals and demonstrating the consistent dissolution patterns across all columns. Figure 4.9c illustrates the cumulative sulfate (SO_4) release as a function of time, clearly demonstrating that sulfates are continuously produced due to sulfide oxidation, while minor contributions may also originate form the dissolution of sulfate minerals such as barite, initially present in the samples.

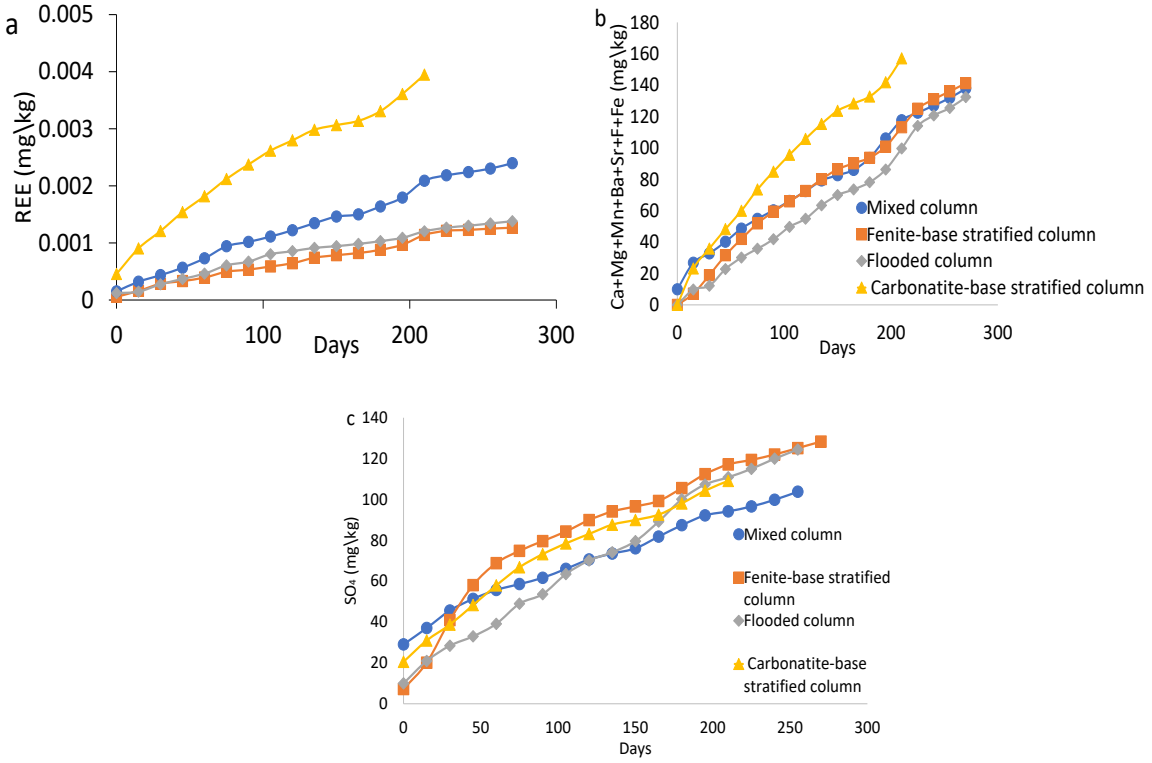

Figure 4.9. Cumulative loads from the kinetic tests on the Ashram samples; a: REE vs time; b: Ca+Mg+Mn+Ba+Sr+F vs time; c: sulfate vs time

The results of the PCA (Figure 4.10a-d) revealed a strong alignment of REEs, SO_4^{2-}, Ca, Mg, Ba, Sr, Mn and F around the same principal component (F1), explaining over 97% of the variance between all column configurations. This grouping indicated co-leaching behavior of these elements under similar geochemical conditions. Even though sulfate is clearly released by sulfide oxidation, the strong correlation observed with other elements, including REEs, does not imply a causal relationship. Rather, it reflects parallel alteration processes, mainly governed by the dissolution of carbonates (e.g., ankerite, calcite, fluorite) and the concomitant release of trace elements. This interpretation is consistent with the low sulfide content (< 1%) observed in all lithologies and with the strong buffering capacity of the carbonate-rich system, which limits the spatial and temporal extent of acid generation. Thus, dissolution of REEs-bearing carbonates (bastnäsite, parisite) probably occurs independently of sulfide oxidation, but rather by direct interaction with percolating water at near-neutral to slightly alkaline pH. The sustained release of REEs observed over the duration of the test, with no concentration plateau, supports the hypothesis of progressive alteration of the phases hosting the REEs rather than dissolution induced by transient acidity. Consequently, the correlation observed between REEs and sulfate in the PCA should be interpreted as reflecting co-mobilization under shared conditions, and not as evidence of a mechanistic dependence between their respective release pathways.

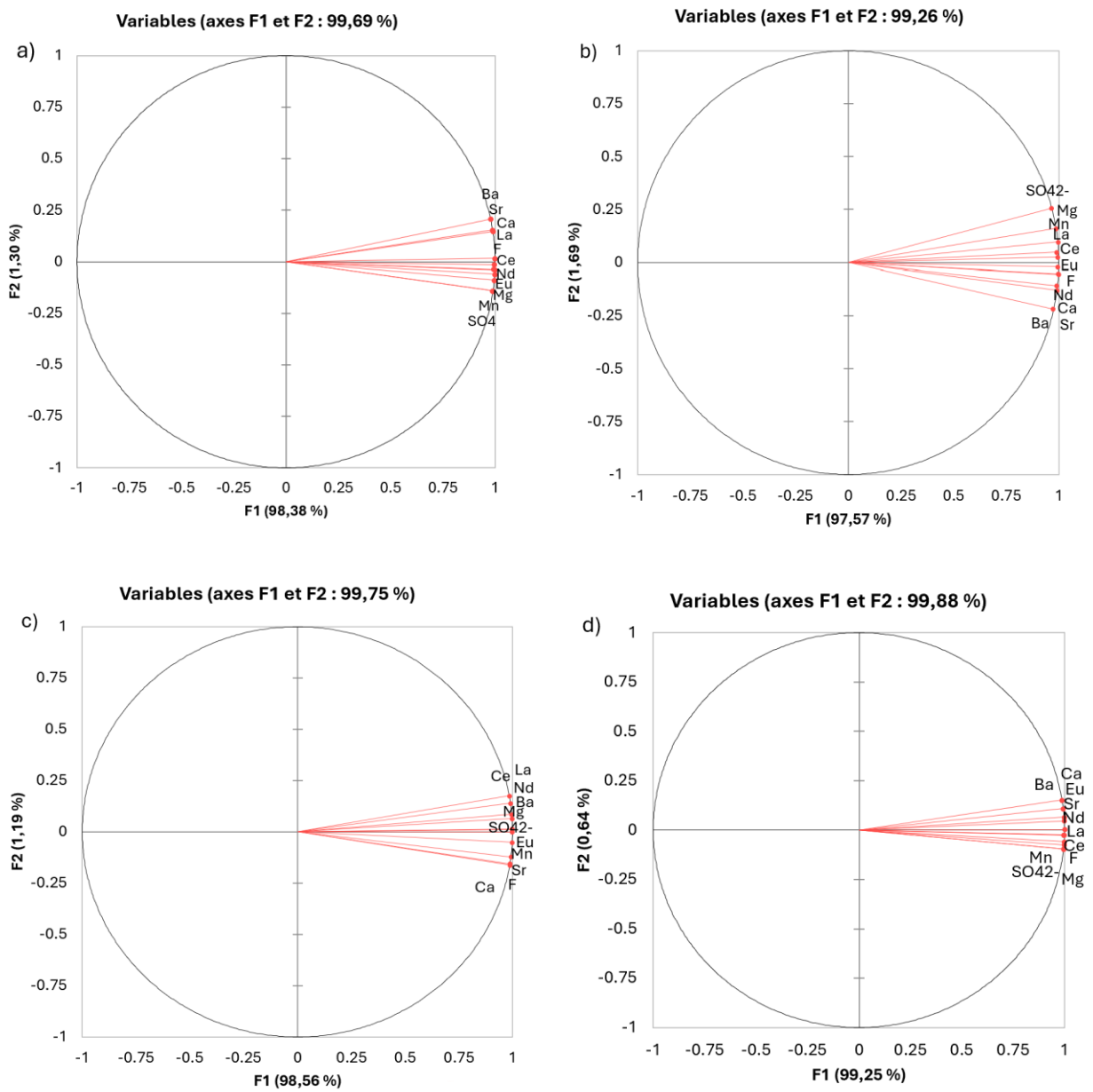

Figure 4.10 PCA results: (a) Mixed column, (b) Fenite-base stratified column, (c) Flooded column, (d) Carbonatite-base stratified column

The depletion curves for S, Sr, Ba, Ca and REEs (Figure 4.11) illustrate the geochemical evolution of these elements during kinetic weathering tests under different storage scenarios. The observed depletion patterns indicate two primary behaviors: (1) a gradual but minimal depletion for Ba (except for flooded column), Sr, and Ca, where the overall elemental losses remain below 0,15% over the testing period; and (2) a negligible depletion for REEs. The lower depletion of REEs, Ba,

Sr and Ca can be attributed to the low reactivity of REE-Ca-Sr-Ba-bearing minerals in the tested waste rocks. It is also possible that REEs are released but their concentrations in solution are controlled by secondary precipitation processes. The S depletion for all the columns are low and similar, consistent with the low sulphides contents in the materials.

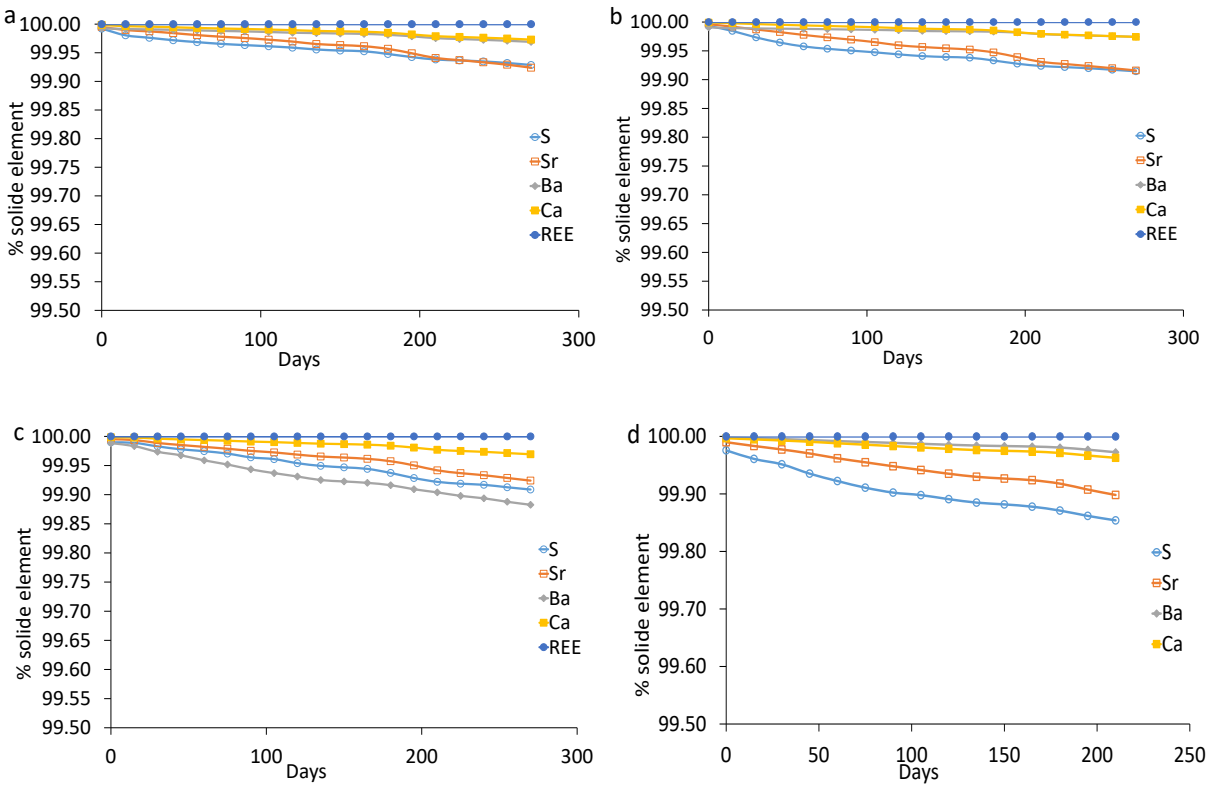

Figure 4.11 Depletion curves of S, Sr, Ba, Ca, and REE within mixed column (a), stratified column (b), flooded column (c), and column with a depleted layer in REE (d)

4.5.5 REE speciation and solubility controls

The REE speciation strongly influenced their mobility, which, in turn, impacts their distribution patterns in the leachates (Serrano et al., 2000). REE speciation was evaluated by thermodynamic equilibrium calculations using Visual MINTEQ using mean concentrations from the column test results. REEs are primarily associated with carbonate complexes in neutral to alkaline waters (Serrano et al., 2000). The concentrations of fluoride (6-15.9 mg/L) and sulfate (27-250 mg/L) in the leachates suggested that these ligands play a minor role in forming REE^{-} complexes under the experimental conditions. Moreover, the phosphorus concentration is below the detection limit, ruling out significant precipitation of REE phosphates as secondary phases. The speciation

calculations suggest that carbonate complexes, with $Ln(CO_3)^{2-}$ accounting for 74.67% and $(LnCO_3)^{+}$ for 23.98%, together accounting for 98.7% of total REE speciation. Hydroxyl such as $Ln(OH)^{2+}$ represent a minor fraction 0.10%, with the remaining species comprising fluorinated $(LnF_2)^{+}$ 0,98%, sulfate ($Ln(SO_4)^{+}$) 0.09% and, hydrocarbonate $Ln(HCO_3)^{2+}$ 0.05% complexes. The ionic forms ($LREE^{3+}$ and $HREE^{3+}$) were even less abundant, with proportions below 1%. These proportions confirm that carbonate ligands dominate the aqueous chemistry or REEs under slightly alkaline conditions observed (pH 8.2 – 8.7), consistent with the presence of carbonate minerals such as ankerite, calcite and dolomite in the rock matrix.

The saturation index (SI) analysis using Visual MINTEQ across the four columns highlights differences in mineral stability and geochemical behavior (Figure 4.12). Calculations confirmed that REEs-containing solids remains undersaturated, including REE-carbonates ($Ln(CO_3)^{2-}{}_{(s)}$ and $LnCO_{3\,(s)}$), REE-hydroxides $Ln\,(OH)^{2+}$ and REE-fluorides generally exhibit undersaturation, with LREE showing greater stability compared to HREE fluorides. Conversely barite ($BaSO_4$) remained supersaturated and fluorite (CaF_2) close to equilibrium. The flooded column demonstrated more stable SI trends, likely due to reduced dissolution under sustained water coverage. In contrast, the mixed and stratified columns showed more variability, reflecting interactions between lithologies and oxidative conditions. The carbonate-base stratified column had the lowest SI for REE-fluorides, aligning with its geochemical depletion. These findings emphasize the role of column design and water-rock interactions in mineral stability and element mobility.

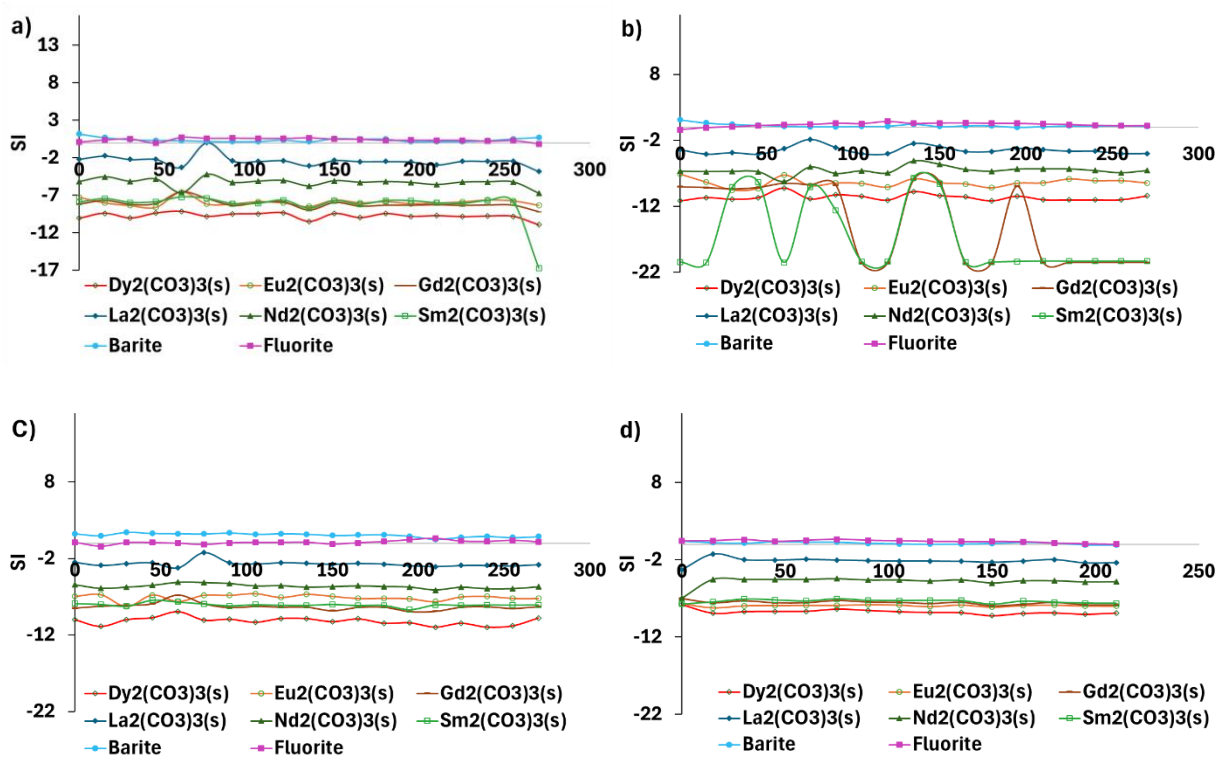

Figure 4.12. Saturation indices of fluorite, barite and REE-carbonates: (a) Mixed column; (b) Fenite-base stratified column; (c) Flooded column; (d) Carbonatite-base stratified column

To assess the effect of pH on the saturation index, calculations were performed using a fixed concentrations of REEs, calcium, fluoride and fixed alkalinity, while varying pH to evaluate its effect on the precipitation of REE carbonates, REE hydroxides (Figure 4.13) and fluorinated REEs (Figure 4.13). The results showed that under the tested conditions, REE hydroxides such as $Ce(OH)_{3(s)}$, $Eu(OH)_{3(s)}$, and $Gd(OH)_{3(s)}$ gradually approached saturation as pH increased, with some phases nearing equilibrium above pH 10. In contrast, REE carbonates remained significantly undersaturated, throughout the pH range, indicating that their precipitation is unlikely under the geochemical conditions of the leachates.

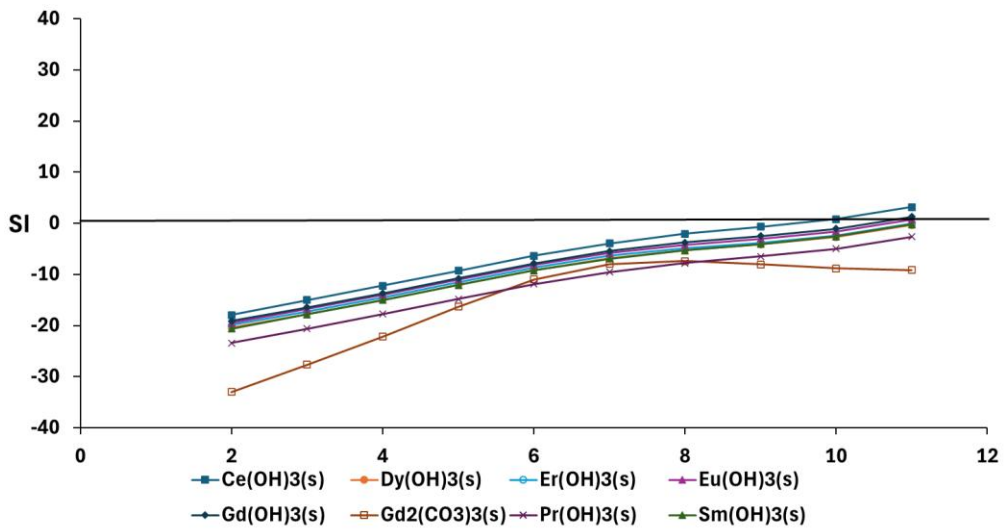

Figure 4.13 Effect of pH on selective precipitation of REE hydroxides and REE carbonates

At acidic pH levels (2-4), all LnF_3 phases remain undersaturated (Figure 4.14), indicating that REEs are likely to remain in solution. As the pH increases from 4 to 8, the saturation indices progressively approached and surpassed zero, particularly for EuF_3, NdF_3, CeF_3, and PrF_3 suggesting that these phases are likely to precipitate. Beyond pH = 9, the saturation indices for most LnF_3 minerals decreased slightly, possibly due to competitive complexation with hydroxide ions (Serrano et al., 2000). The saturation index calculations provided insights into the selective precipitation of REE fluorides, highlighting a clear dependency on pH (Jha et al., 2016).

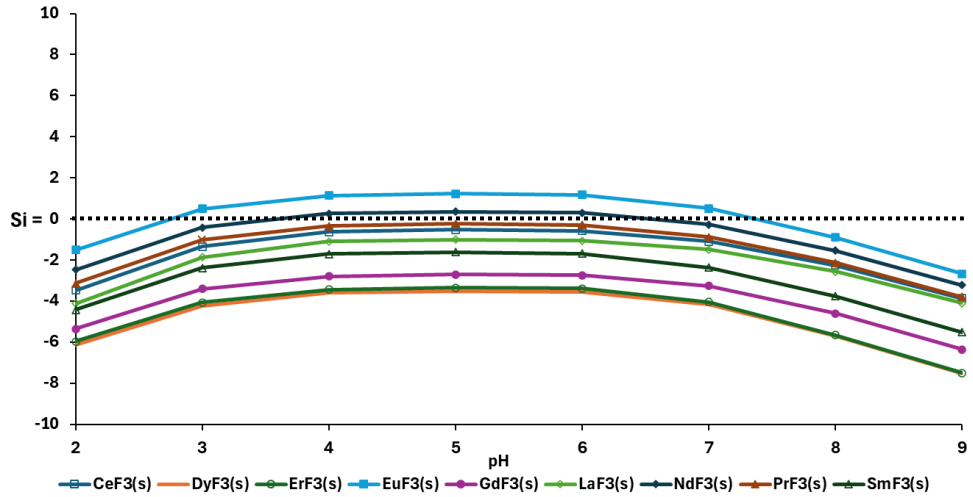

Figure 4.14 Effect of pH on selective precipitation of REE fluoride

This behavior had a direct impact on the mobility of REEs. The quantification of REE mobility provided valuable insights into the degree of fractionation occurring within kinetic tests (Ma et al., 2011). The mobility ratios applied here follow the approach proposed by Edahbi et al. (2018), where HREE/LREE is used in both solid and aqueous phases. This formulation facilitated the interpretation of REE fractionation during leaching, particularly in assessing whether heavy or light REEs are preferentially mobilized. The mobility was calculated by comparing the cumulative and normalized ratios of heavy rare earth elements (HREE) to light rare earth elements (LREE) in both solid and aqueous phases, as defined by equation 1 (Edahbi et al., 2018):

$$\text{Mobility} = \frac{\text{HREE(s)}\backslash\text{LREE(s)}}{\text{HREE(aq)}\backslash\text{LREE(aq)}} \quad (1)$$

When the mobility equals 1, the HREE/LREE ratios are identical in both solids and leachates, indicating no preferential mobility between LREE and HREE (Edahbi, 2018). Conversely, a mobility value less than 1 suggests that the HREE/LREE ratio was higher in the leachates than in solids, implying preferential leaching and/or greater mobility of HREE compared to LREE. The results in Table 4.3 indicate that HREE exhibited lower mobility than LREE in the studied samples which is expected (Edahbi et al., 2018). This behavior is evidenced by a fractionation pattern where HREE remain preferentially in the solid phase, while the LREE are more readily released into solution (Edahbi et al., 2018).

Tableau 4.3 REE mobility in Ashram samples during column testing

		Unit	Mixed	Fenite-base	flooded	Carbonatite-base
Solid	LREE(s)	mg/kg	3.58	3.58	3.58	3.59
	HREE(S)	mg/kg	0.49	0.49	0.49	0.5
Leachate	LREE(aq)	mg/kg	0.02	0.005	0.013	0.036
	HREE(aq)	mg/kg	0.005	0.002	0.005	0.019

Table 4.3 REE mobility in Ashram samples during column testing (suite)

		Unit	Mixed	Fenite-base	flooded	Carbonatite-base
Mobility parameters	HREE(s)/LREE(s)		0.13	0.13	0.13	0.13
	HREE(aq)/LREE(aq)		0.26	0.39	0.41	0.52
	Mobility		0.52	0.34	0.32	0.26

The effect of pH (ranging from 2 to 11) on REE speciation was evaluated using Visual MINTEQ with fixed REE concentrations (within the same range as those leached in the column tests from the present study) and varying pH values. The results, presented in Figure 4.15, showed significant major variations in REE speciation with pH. At acidic pH values (2-8), the concentration of free REE^{3+} is relatively high, ranging from 10^{-8} mg/L to 10^{-11} mg/L. However, as the pH increases from 8 to 10, the concentrations of free REE^{3+} decrease drastically, reaching values as low as 10^{-16} mg/L. This behavior can be attributed to the precipitation of REEs as secondary phases and changes in REE speciation in the leachates and changes in solution chemistry.

Visual MINTEQ simulations suggested that, under alkaline conditions, secondary minerals such as diaspore, gibbsite, and kaolinite likely precipitate which can also contribute to the depletion of REE^{3+} concentrations in solution through sorption (Edahbi et al., 2018). The absence of significant high concentration of Fe and Mn in the leachates minimized their role in REE immobilization through oxy-hydroxide precipitation (Fernández-Caliani et Grantcharova, 2021). Instead, Al-bearing phases dominated the secondary mineral formation, potentially favoring the sorption or co-precipitation of REEs (Stille et al., 2006; Yusoff et al., 2013).

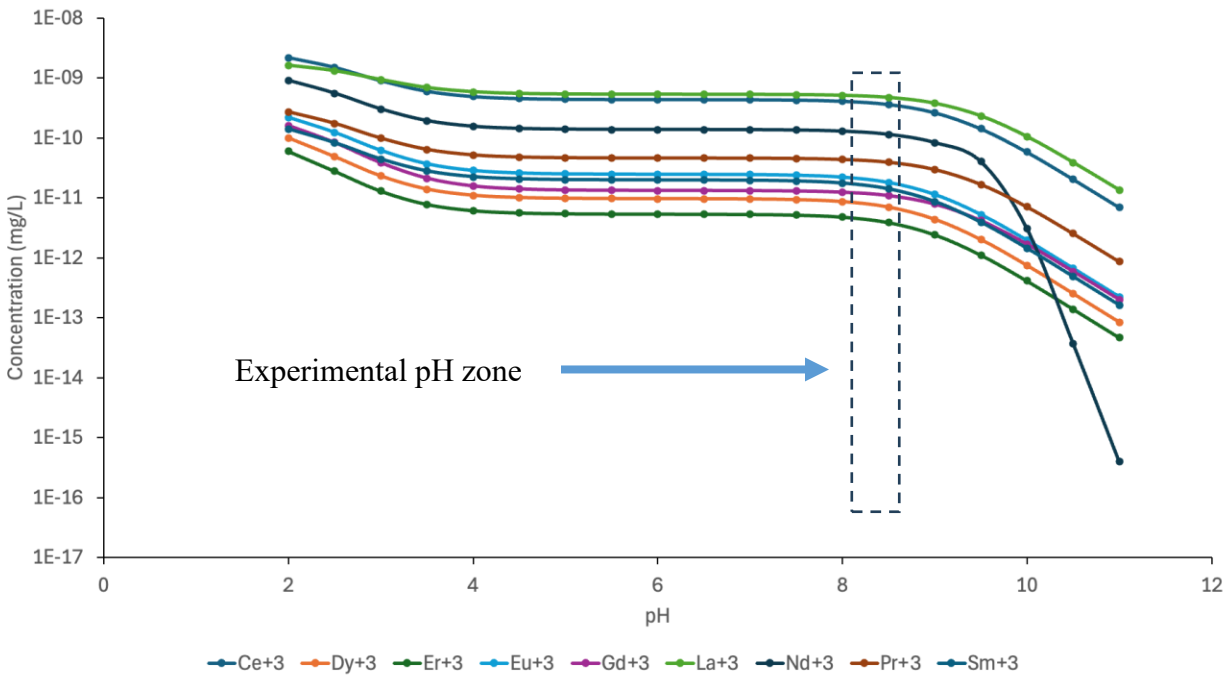

Figure 4.15 Effect of pH on REE distribution

4.5.6 Release rates

The release rates of metals are calculated based on the slopes of the cumulative loadings (mg/kg) over time, as shown in Figure 4.16 for Cu and Zn, and in Figure 4.16 for REEs. The calculated release rates are shown in Table 4.4. The cumulative loadings of Cu and Zn manifest distinct dynamics in accordance with column configuration. Cu showed a higher release in the carbonate-base stratified column, reaching approximately 2,19 x 10^{-4} mg/kg/day, while the mixed, fenite-base stratified, and flooded columns show lower release rates, remaining below 3,53 x 10^{-5} mg/kg/day, 8.60 x 10^{-5} mg/kg/day, and 8.25 10^{-5} mg/kg/day respectively. For Zn, the highest release rate occured in the flooded column (8,98 x 10^{-4} mg/kg/day), followed by the fenite-base stratified column (3.49 x10^{-4} mg/kg/day), while the mixed and the carbonatite-base stratified columns exhibited lower release, suggesting enhanced retention in these configurations, possibly due to a greater dissolution of Zn-bearing phases or a reduced efficiency of sorption and precipitation mechanisms under flooded conditions. Further investigations, such as mineralogical analysis of Zn-bearing phases and geochemical modeling of sorption/precipitation phases, could help distinguish between these potential explanations.

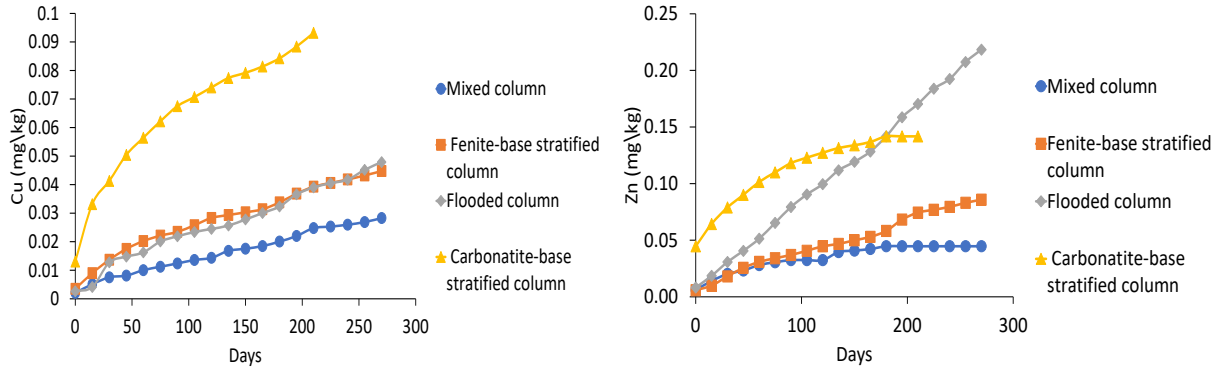

Figure 4.16 Cu and Zn cumulative loadings

The cumulative REE releases revealed very low values for all four columns with greater mobilization in the carbonatite-base stratified column, reaching approximately 0.0039 mg/kg after 200 days. LREE and HREE also demonstrated maximum fluxes in this configuration peaking at approximately 0.002 mg/kg and 0.00096 mg/kg, respectively. These values suggest amplified dissolution of REE-bearing phases, most plausibly fluor-carbonates such as parisite and bastnasite-(Ce), which can lead to the limited retention in the carbonatite base layer, reinforced by the absence of precipitation, as confirmed by Visual Minteq calculations. The mixed column exhibited lower cumulative loads for total REE (0,023 mg/kg), while the fenite-base stratified and flooded columns revealed the lowest releases, with fluxes stabilized around 0,0012 mg/kg. These findings imply that the column containing a lower carbonatite layer provides chemical conditions (pH, Eh) conducive to enhanced REE mobilization.

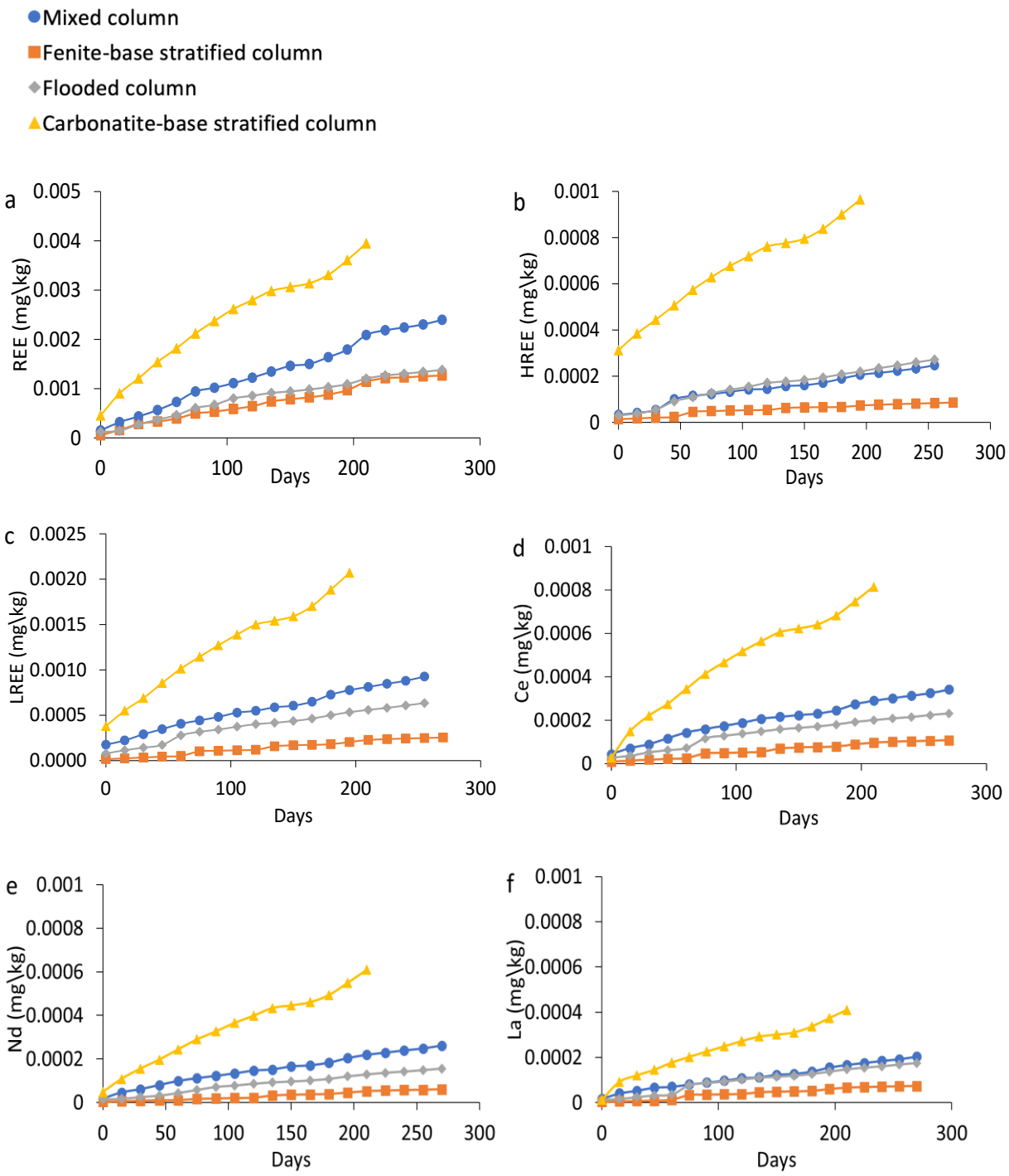

Figure 4.17 REE (a), HREE (b), LREE (c), Ce (d), Nd (e), and La (f) cumulative loads

Tableau 4.4 Release rates of REE, LREE, HREE, Zn, and Cu

	REE (mg/kg/d)	LREE (mg/kg/d)	HREE (mg/kg/d)	Zn (mg/kg/d)	Cu (mg/kg/d)
Mixed column	$6,386 \times 10^{-5}$	$2,350 \times 10^{-6}$	$6,234 \times 10^{-7}$	$1,62 \times 10^{-4}$	3,53 x 10-5
Fenite-base stratified column	$1,072 \times 10^{-6}$	$4,765 \times 10^{-6}$	$1,668 \times 10^{-7}$	$3,49 \times 10^{-4}$	$8,60 \times 10^{-5}$
Flooded column	$2,271 \times 10^{-6}$	$1,456 \times 10^{-6}$	$7,862 \times 10^{-7}$	$8,98 \times 10^{-4}$	$8,25 \times 10^{-5}$
Carbonatite-base stratified column	$1,237 \times 10^{-5}$	$7,374 \times 10^{-6}$	$1,018 \times 10^{-6}$	$2,81 \times 10^{-4}$	2.19×10^{-4}

4.6 Reclamation scenarios and risk management

Four different tailings storage scenarios were evaluated to observe if any minimize environmental impact and optimize leachate quality. Each scenario presents distinct advantages and limitations, shaped by the geochemical and physical properties of the column configuration. Among these configurations, the fenite-base stratified column stands out for its superior ability to limit the release of REEs and metals such as Zn, Cu, Ba and Sr. This effectiveness can be attributable to specific physical and chemical interactions within the stratified configuration, which likely enhance the retention of released metals through processes such as selective adsorption and the reduced permeability that limits their leaching. This makes the fenite-base stratified configuration particularly suitable for long-term storage of waste rocks. The mixed configuration, although less effective than the fenite-base stratified column, offers a practical alternative for waste storage. Its homogenous composition ensures constant geochemical interactions throughout the column. However, the absence of stratification reduces the capacity to retain some of the metals such as Zn

and Cu. The flooded configuration presents higher release rates for zinc. Flooding these waste rocks would require careful monitoring and management of these metals in the water column. Finally, the carbonatite-base stratified configuration demonstrates the highest release rates for REEs and other metals. This is likely due to conditions that promote the dissolution of REE-bearing minerals phases while limiting their precipitation or mineral adsorption. Visual MINTEQ calculations confirm the undersaturation of potential precipitates, such as REE hydroxides or carbonates, under experimental conditions. Although this configuration was designed to reduce REE mobility, the findings indicate that its effectiveness is limited by the insufficient adsorption capacity or retention potential of the depleted layer.

4.7 Conclusion

This work provides essential insights into the geochemical behavior of rare earth element (REE)-bearing waste rocks from the Ashram deposit. The distinct lithological behavior, notably the abundance of carbonates, contribute to the maintenance of a near-neutral to slightly alkaline pH during weathering, which favors the retention of many elements in the solid phase. Although phosphate minerals such as monazite-(Ce) were identified during mineralogical analysis (MEB MLA and XRD), phosphorus concentrations in the leachates were below detection limits, indicating negligible dissolution of REEs phosphates under the test conditions. Similarly, no problematic levels of potentially harmful elements were observed: copper, zinc, arsenic, nickel and iron remained below detection limits or well below the thresholds set by Directive 019, and the same was true for REEs, whose concentrations in solution remained very low on all columns. These results support the interpretation that the mineralogical composition of the waste rock is rich in stable carbonates and rare earth phosphates and contributes to low elemental mobility and minimal environmental risk. The study underscores the significance of optimizing water quality in drainage systems and implementing effective risk management strategies, such as tailings deposition scenario optimization, to ensure sustainable development in mining operations and contribute to sustainable resource management and offer actionable insights for enhancing environmental safety and regulatory compliance.

4.8 References

Balaram, V. (2019). Rare earth elements: A review of applications, occurrence, exploration, analysis, recycling, and environmental impact. *Geoscience Frontiers*, *10*(4), 1285-1303.

Beland, C. M., & Williams-Jones, A. E. (2021). The genesis of the Ashram REE deposit, Quebec: Insights from bulk-rock geochemistry, apatite-monazite-bastnäsite replacement reactions and mineral chemistry. *Chemical Geology*, *578*, 120298.

Binnemans, K., Jones, P. T., Blanpain, B., Van Gerven, T., Yang, Y., Walton, A., & Buchert, M. (2013). Recycling of rare earths: a critical review. *Journal of cleaner production*, *51*, 1-22.

Blowes, D. (2013). PREDICTING THE DURATION AND EXTENT OF ACID DRAINAGE RELEASE FROM SULFIDE BEARING MINE WASTES. 2013 GSA Annual Meeting in Denver,

Blowes, D., Ptacek, C., Jambor, J., & Weisener, C. (2005). The geochemistry of acid mine. *Environ. Geochem*, *9*, 149.

Bussiere, B. (2007). Colloquium 2004: Hydrogeotechnical properties of hard rock tailings from metal mines and emerging geoenvironmental disposal approaches. *Canadian Geotechnical Journal*, *44*(9), 1019-1052.

Clark, T., & Wares, R. (2006). *Lithotectonic and metallogenic synthesis of the new Québec Orogen (Labrador Trough)*. Géologie Québec [Ressources naturelles et faune Québec].

Dushyantha, N., Batapola, N., Ilankoon, I., Rohitha, S., Premasiri, R., Abeysinghe, B., Ratnayake, N., & Dissanayake, K. (2020). The story of rare earth elements (REEs): Occurrences, global distribution, genesis, geology, mineralogy and global production. *Ore Geology Reviews*, *122*, 103521.

Edahbi, M., Plante, B., Benzaazoua, M., & Pelletier, M. (2018). Geochemistry of rare earth elements within waste rocks from the Montviel carbonatite deposit, Québec, Canada. *Environmental Science and Pollution Research*, *25*, 10997-11010.

Fernández-Caliani, J. C., & Grantcharova, M. M. (2021). Enrichment and fractionation of rare earth elements in an estuarine marsh soil receiving acid discharges from legacy sulfide mine wastes. *Soil Systems*, *5*(4), 66.

Gagnon, G., Rousseau, G., Camus, Y., & Gagné, J. (2015a). *Ashram Rare Earth Deposit. Preliminary Economic Assessment*.

Gagnon, G., Rousseau, G., Camus, Y., & Gagné, J. (2015b). NI 43-101 Technical report preliminary economic assessment Ashram rare earth deposit for Commerce Resources Corp. *SGS Canada, Inc*.

Goonan, T. G. (2011). *Rare earth elements: End use and recyclability*. US Department of the Interior, US Geological Survey Reston, VA, USA.

Gustafsson, J. (2013). Visual MINTEQ ver. 3.1. 2013. *URL: http://vminteq. lwr. kth. se*.

Jha, M. K., Kumari, A., Panda, R., Kumar, J. R., Yoo, K., & Lee, J. Y. (2016). Review on hydrometallurgical recovery of rare earth metals. *hydrometallurgy*, *165*, 2-26.

Kwitko-Ribeiro, R. (2012). New sample preparation developments to minimize mineral segregation in process mineralogy. Proceedings of the 10th International Congress for Applied Mineralogy (ICAM),

Leybourne, M. I., Goodfellow, W. D., Boyle, D. R., & Hall, G. M. (2000). Rapid development of negative Ce anomalies in surface waters and contrasting REE patterns in groundwaters associated with Zn–Pb massive sulphide deposits. *Applied Geochemistry*, *15*(6), 695-723.

Lord, V. (2021). *Étude du comportement hydrogéochimique des rejets d'une mine de graphite*. Ecole Polytechnique, Montreal (Canada).

Lorenz, T., & Bertau, M. (2020). 1.3 Rare earth resources and processing. *Rare Earth Chemistry*, 37.

Ma, L., Jin, L., & Brantley, S. L. (2011). How mineralogy and slope aspect affect REE release and fractionation during shale weathering in the Susquehanna/Shale Hills Critical Zone Observatory. *Chemical Geology*, *290*(1-2), 31-49.

Maest, A. S., & Nordstrom, D. K. (2017). A geochemical examination of humidity cell tests. *Applied Geochemistry*, *81*, 109-131.

Mancheri, N. A., Sprecher, B., Bailey, G., Ge, J., & Tukker, A. (2019). Effect of Chinese policies on rare earth supply chain resilience. *Resources, Conservation and Recycling*, *142*, 101-112.

Merkus, H. G. (2009). *Particle size measurements: fundamentals, practice, quality* (Vol. 17). Springer Science & Business Media.

Mitchell, R. H., & Smith, D. L. (2017). Geology and mineralogy of the Ashram zone carbonatite, Eldor Complex, Quebec. *Ore Geology Reviews*, *86*, 784-806.

Plante, B., Benzaazoua, M., Bussière, B., Biesinger, M., & Pratt, A. (2010). Study of Ni sorption onto Tio mine waste rock surfaces. *Applied Geochemistry*, *25*(12), 1830-1844.

Plante, B., Bussière, B., & Benzaazoua, M. (2014). Lab to field scale effects on contaminated neutral drainage prediction from the Tio mine waste rocks. *Journal of Geochemical Exploration*, *137*, 37-47.

Purdy, C. (2014). *The geochemical and mineralogical controls on the environmental mobility of rare earth elements from tailings, Nechalacho deposit, Northwest Territories* Queen's University].

Sappin, A., Beaudoin, G., Simandl, G., & Neetz, M. (2015). Rare earth elements in Québec, Canada: main deposit types and their economic potential. Symposium on Strategic and Critical Materials Proceedings. Edited by GJ Simandl and M. Neetz. British Columbia Ministry of Energy and Mines, British Columbia Geological Survey Paper,

Schulz, B., Merker, G., & Gutzmer, J. (2019). Automated SEM mineral liberation analysis (MLA) with generically labelled EDX spectra in the mineral processing of rare earth element ores. *Minerals*, *9*(9), 527.

Serrano, M. J. G., Sanz, L. F. A., & Nordstrom, D. K. (2000). REE speciation in low-temperature acidic waters and the competitive effects of aluminum. *Chemical Geology*, *165*(3-4), 167-180.

Simandl, G. J. (2015). Carbonatites and related exploration targets. *British Columbia Geological Survey*, 31-37.

Stille, P., Steinmann, M., Pierret, M.-C., Gauthier-Lafaye, F., Aubert, D., Probst, A., Viville, D., & Chabaux, F. (2006). The impact of vegetation on fractionation of rare earth elements (REE) during water–rock interaction. *Journal of Geochemical Exploration*, *88*(1-3), 341-344.

Yusoff, Z. M., Ngwenya, B. T., & Parsons, I. (2013). Mobility and fractionation of REEs during deep weathering of geochemically contrasting granites in a tropical setting, Malaysia. *Chemical Geology*, *349*, 71-86.

CHAPITRE 5 Discussion

Les résultats exposés dans le chapitre précédent ont permis de caractériser le comportement géochimique des stériles du gisement Ashram à travers des essais cinétiques réalisés en laboratoire. Ce chapitre propose une analyse intégrée des résultats obtenus dans le cadre des essais en colonne afin de mieux comprendre la réactivité des stériles issus des principales lithologies identifiées sur le site. À travers l'étude de paramètres clés tels que le soufre total, le carbone inorganique, et la composition minéralogique réconciliée, cette section vise à prédire le comportement des stériles en condition de drainage minier.

Une attention particulière est portée à la libération progressive des minéraux sulfureux, d'éléments potentiellement valorisables, notamment le fluor, le niobium et le tantale, ainsi qu'à la mobilisation du thorium. L'interprétation des données met en lumière le processus de libérations sélectives de certains minéraux porteurs.

La dernière partie du chapitre aborde la valorisation potentielle de gisement Ashram, ainsi que les résultats liés aux radionucléides, permettant d'évaluer les implications environnementales à long terme de la mise en dépôt des stériles. Cette discussion s'inscrit dans une réflexion plus large sur les mécanismes géochimiques régissant la qualité des eaux de drainage et sur les leviers possibles d'atténuation, en lien avec les scénarios de gestion et d'entreposage des différents assemblages lithologiques.

5.1 Prédiction du drainage minier

Le chapitre 4 est principalement consacré à l'évaluation de la qualité des eaux des rinçages et à la gestion des risques environnementaux associés aux différents scénarios d'entreposage des stériles. Bien que la prédiction de drainage minier acide ne constitue pas un objectif principal du projet de recherche, il demeure pertinent d'évaluer sommairement le potentiel de génération d'acide des matériaux analysés à long terme. L'analyse du soufre total (S) et du carbone total (C), réalisée à l'aide d'une fournaise à induction, révèle que les échantillons présentent une teneur en soufre relativement faible et un rapport C/S élevé (Chapitre 4). Cette forte proportion de carbone, principalement attribuable à la présence de carbonates, suggère une capacité de neutralisation importante et donc un risque très limité de génération d'acide. Cette hypothèse est corroborée par les résultats des essais cinétiques en colonne, qui montrent une stabilité du pH (entre 8,2 et 8,7) et

donc l'absence de drainage acide. Ces résultats indiquent que la capacité tampon des carbonates présents est suffisant à court terme pour neutraliser l'acidité générée par l'oxydation des sulfures.

Par ailleurs, il est possible d'extrapoler ces résultats en comparant les charges cumulées normalisées qui ont été lixiviées en soufre ou en sulfate (produit d'oxydation) et des éléments issus des minéraux neutralisants (Ca+Mg+Mn) selon la méthode des courbes d'oxydation-neutralisation (Benzaazoua et al., 2004). Cette méthode compare les concentrations initiales en S et en Ca+Mg+Mn pour identifier qui, entre les sulfures et les neutralisants, risque d'être épuisé en premier. Lorsque les proportions initiales de S et de Ca+Mg+Mn se situent au-dessus de la courbe Ca+Mg+Mn en fonction de S, les échantillons sont évalués comme non potentiellement générateur d'acide (NPGA). La Figure 5.2 illustre les résultats obtenus pour les échantillons de stériles et confirme que tous se positionnent nettement au-dessus de la courbe, indiquant un potentiel de neutralisation suffisant pour éviter toute génération d'acidité à plus long terme.

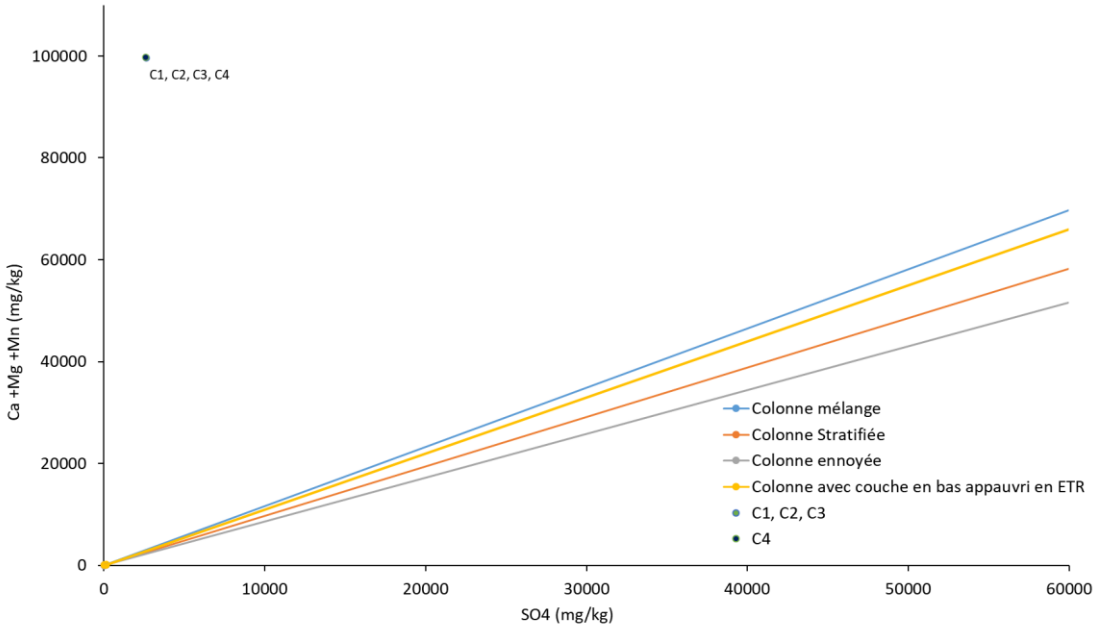

Figure 5.1 Courbe d'oxydation-neutralisation pour les échantillons de gisement Ashram

Enfin, les concentrations en métaux lors des essais cinétiques contrôlés se révèlent relativement faibles et, dans plusieurs cas sous la limite de détection des instruments. Ces résultats suggèrent une faible mobilité des métaux dans les lixiviats, reflétant la faible réactivité des matériaux et la capacité des phases neutralisantes à piéger les éléments traces potentiellement lixiviés.

5.2 Caractérisations physiques, chimiques et minéralogiques

5.3 Interprétation des résultats minéralogiques

Les échantillons issus des lithologies étudiées (carbonatite, lamprophyre, fénite et brèche) ont été caractérisés selon les méthodes décrites aux sections 3.2 et 4.4. Ces analyses incluent la composition chimique, la minéralogie et les propriétés physiques, permettant de distinguer les variations significatives entre les différentes lithologies. Les résultats détaillés de la caractérisation physique et chimique sont synthétisés dans le Tableau 4.1, et les données minéralogiques obtenus sont présentées dans les Tableaux 5.1 et 5.2.

5.3.1 DRX Synchrotron

Les études DRX par synchrotron ont facilité la détermination des phases minérales majeures présentes dans les divers types de roches du gisement Ashram, avec une marge d'erreur estimée à ±0.5 % (p/p) en termes de valeurs absolues sur les proportions minérales. Les observations indiquent que les carbonates, surtout l'ankérite et la dolomite, prédominent nettement dans les échantillons, avec des représentations atteignant jusqu'à 46.9% et 40% respectivement dans la carbonatite. Les phases accessoires, comme la monazite-Ce (3.2% dans la brèche et la fénite) et la bastnaésite-Ce (3.4% dans le lamprophyre), ont été identifiées par DRX synchrotron comme potentiellement les principales phases porteuses d'ETR. Cependant, ces proportions sont nettement plus élevées que celle obtenues par MLA, ou ces phases apparaissent en teneurs beaucoup plus faibles (inférieures à 1%). Une vérification croisée avec les teneurs totales en ETR mesurées par ICP laisse penser que les valeurs issues du DRX pourraient surestimer localement certaines phases, possiblement en raison de l'intensité des pics dans des zones concentrées. Ces résultats offrent un aperçu quantitatif et précis des proportions minérales, bien que la précision soit entravée par la résolution des signaux de phases complexes ainsi que par les chevauchements spectraux qui peuvent limiter la précision des analyses DRX.

Tableau 5.1 Caractérisation minéralogiques (DRX Synchrotron) des échantillons analysés

Minéral (%)	Carbonatite	Brèche	Fénite	Lamprophyre
Ankérite	40,0	45.3	5.9%	34.3%
Monazite-(Ce)	0	3.2	3.2%	0%
Pyrite	1.1	1.	1.3%	1.5%
Apatite	1.3	1.3	1.3%	1.3%
Albite	0.8	1.0	1.4%	4.5%
Fluorite	0.5	0.8	0.4%	2.8%
Biotite	1.1	1.3	51.4%	2.1%
Quartz	1.0	1.2	3.2%	5.4%
Dolomite	46.9	37.5	19.1%	33.1%
Hématite	1.4	1.4	0%	0%
Orthoclase	5.5%	5.7%	5.9%	5.2%
Rutile-Nb	0%	0%	1.8%	0%
Rutile	0%	0%	1.2%	0%
Chlorite	0%	0%	1.2%	1.5%
Calcite	0%	0%	25%	0%
Bastnaésite-(Ce), (La)	0%	0%	0%	34%
Parisite-(Ce)	0%	0%	0%	0.5%

5.3.2 MEB MLA

Afin de compléter les observations obtenues par DRX et d'affiner la caractérisation des phases minérales, une analyse MEB-MLA a été réalisée. Cette méthode fournit des informations supplémentaires sur la distribution texturale des minéraux et leurs associations à l'échelle microscopique, permettant ainsi une meilleure compréhension des relations entre les phases porteuses des ETR et leur environnement minéralogique.

Les résultats révèlent que l'ankérite semble avoir une présence légèrement plus importante dans la brèche (atteignant 83,8%) et dans la carbonatite (79,2%), ce qui concorde avec les analyses DRX. Cela pourrait indiquer que le MEB possède une capacité supérieure pour détecter les grains à haute densité et uniformes. Cependant, dans le cas de la fénite, une différence notable est observée entre les résultats de MEB-MLA, qui indiquent environ 67,3% de carbonates, et ceux obtenus par DRX, qui ne montrent que 25%. Cette divergence soulève des questions sur la représentativité des méthodes et sur la nature des phases détectées. L'analyse chimique totale (ICP/FRX) montre des teneurs en calcium et en magnésium cohérentes avec une proportion plus élevée de carbonates, ce qui suggère que le DRX pourrait sous-estimer quelques phases carbonatées. Cette situation illustre l'importance d'une réconciliation minéralogique rigoureuse, qui permet de combiner les approches minéralogique et chimiques pour parvenir à une estimation fiable de la composition de la roche. Cette différence peut s'expliquer par la nature des méthodes, le DRX, basé sur la diffraction des rayons X, sous-estime souvent les phases mal cristallisées, très fines ou dispersées, comme c'est le cas pour certains carbonates secondaires ou altérés. Le MEB-MLA, quant à lui, permet une détection plus sensible des phases à base de Ca-Fe-Mg (tels que la dolomite et l'ankérite) grâce à l'imagerie électronique et à la spectrométrie EDS, en particulier dans les micro-veinules ou les matrices fines qui pourraient ne pas être bien représentées dans l'échantillons. Par ailleurs, les phases accessoires, comme la monazite-Ce et la bastnaésite-Ce, malgré leur présence minoritaire (≤ 1%), se trouvent à l'intérieur des matrices carbonatées ou en lien avec les phases biotitiques. Ces divergences dans les méthodes mettent en évidence leur complémentarité, le DRX fournissant une caractérisation générale, alors que le MEB permet une meilleure compréhension des relations microstructurales et texturales des phases porteuses d'ETR. L'analyse granulométrique par MLA des quatre lithologies (carbonatite, brèche, fénite et lamprophyre) montre une tendance commune, les minéraux porteurs des ETR (monazite, bastnaésite, parisite, et xénotime) sont majoritairement concentrés dans la fractions fine (<100 µm). Pour la majorité des lithologies, plus de 50% des

grains de ces minéraux présentent une taille inférieure à 40 µm, et jusqu'à 90% sont contenus dans les fractions <75 à 100 µm. Bien que la distribution granulométrique montre une proportion fine contenant des ETR, les résultats de libération indiquent que la majorité de ces éléments restent enclavés dans des grains composites atteignant parfois jusqu'à 100 µm. Cela signifie que la présence d'ETR dans les fines ne garantit pas nécessairement leur récupération directe, en raison d'une libération partielle. Cette dualité granulométrie/enclavement a des implications implorantes pour le choix des stratégies de valorisation, notamment en ce qui concerne les opérations de broyage et de séparation.

Tableau 5.2 Caractérisation minéralogique des échantillons MEB-MLA analysées

Minéral (%)	Carbonatite	Brèche	Fenite	Lamprophyre
Ankérite	79,21	83,80	57,8	49,49
Monazite-(Ce)	0,04	0,72	0,32	0,01
Pyrite	0,17	0,36	0,66	0,74
Apatite	8,21	6,17	7,36	2,84
Albite	0,24	0,23	1,34	9,41
Barite	0	0	0,02	0
Fluorite	0,86	0,77	0,23	1,97
Biotite	1,24	1,92	18,2	21,2
Muscovite	0,02	0,01	0,02	8,02
Quartz	0,38	0,18	1,02	0,8
Sphalérite	0,01	0,04	0	0,04

Tableau 5.2 Caractérisation minéralogique des échantillons MEB MLA (suite)

Minéral (%)	Carbonatite	Brèche	Fenite	Lamprophyre
Galène	0	0,01	0	0,02
Rutile	0	0,01	0,17	0,06
Calcite	0,06	0,05	2,68	0,15
Dolomite	7,77	3,08	9,5	2,02
Oxydes de Fe	0,18	0,68	0,01	0,01
Orthoclase	0,12	1,08	0,11	1,35
Ferrocolumbite	0	0	0,03	0
Euxenite	0,03	0,01	0,03	0,01
Pyrochlore	0,10	0	0,01	0,03
Bastnasite (Ce)	0,17	0,17	0,07	0,11
Thorite (Y)	0	0	0,01	0
Rutile (Nb-Nd)	0	0,13	0,19	0,02
Columbite (Ti-Y)	0,03	0,02	0,03	0,06
Chlorite	0,12	0,27	0,13	1,07
Pyrrhotite	0	0,07	0	0,02
Parisite	1,03	0,15	0,06	0,49

Les tendances significatives en fonction des lithologies analysées (lamprophyre, carbonatite, fénite et brèche) sont observées dans les résultats de la libération des minéraux sulfurés, du fluor, du niobium, du tantale et des minéraux thorifères. Ces éléments ont été sélectionnés en raison de leur

potentiel de valorisation ou de leur rôle indicateur dans les processus géochimiques étudiés. À l'inverse, des éléments comme l'arsenic, le plomb ou l'uranium n'ont pas été retenus, soit parce qu'ils étaient absents des phases minérales identifiées, soit parce que leurs concentrations étaient trop faibles pour être quantifiées de manière représentative par le MEB-MLA.

5.3.3 Réconciliation minéralogique

Les informations obtenues par la DRX, FRX, ICP-AES, MEB MLA, et analyse S/C permettent de faire la réconciliation des données pour avoir une minéralogie très précise. De ce fait, elles ont été introduites dans un tableur de réconciliation, ensuite le calcul du pourcentage massique de certains minéraux a été fait à partir de la concentration d'un élément chimique traceur et sa teneur élémentaire selon la formule suivante :

$\%AxBy = (MAxBy/xMA) \times 100.$

Où :

%AxBy : proportion massique du minéral dans l'échantillon

MAxBy = proportion massique de l'élément traceur dans le minéral obtenu par analyse chimique totale

xMA : proportion de l'élément traceur dans le minéral obtenu soit par micro-analyse (MEB-MLA) ou teneur théorique dans le minéral (webmineral.com)

Remarque : la proportion massique (%AxBy) est la moyenne entre l'ICP et le FRX dans la démarche des calculs.

Les hypothèses suivantes ont été utilisées pour la réconciliation :

- ⇒ Le carbone (C) est associé uniquement aux minéraux carbonatés tels que l'ankérite, la dolomite et la calcite, selon leurs proportions respectives dans les résultats MLA et DRX.
- ⇒ Les teneurs en fer (Fe), en aluminium (Al) et en magnésium (Mg) ont été ajustées en tenant compte de leur distribution dans les phyllosilicates (biotite, chlorite, muscovite) et certains carbonates riches en Fe (ankérite), jusqu'à ce que les valeurs recalculées soient cohérentes avec celles obtenues par ICP et FRX.

⇒ Tout le fluor (F) est supposé être contenu dans les minéraux fluorés identifiés, principalement la fluorine, la parisite-(Ce), la bastnaésite-(Ce) et, dans une moindre mesure, l'apatite.

⇒ Le niobium (Nb) est entièrement attribué aux phases pyrochlore, ferricolumbite, euxénite et rutile Nb-Nd.

⇒ Le tantale (Ta) est supposé être distribué uniquement entre la colombite-(Ti-Y) et l'euxénite.

⇒ Les teneurs en fer (Fe), en aluminium (Al) et en magnésium (Mg) ont été ajustées en tenant compte de leur distribution dans les phyllosilicates (biotite, chlorite, muscovite) et certains carbonates riches en Fe (ankérite), jusqu'à ce que les valeurs recalculées soient cohérentes avec celles obtenues par ICP et FRX.

⇒ Cette approche permet de générer une composition minéralogique cohérente avec les données chimiques et d'utiliser cette composition réconciliée pour étayer les bilans de masse, les interprétations géochimiques et les scénarios de récupération des stériles.

Tableau 5.3 Résultats de la réconciliation minéralogique

Minéral (%)	Carbonatite	Brèche	Fenite	Lamprophyre
Ankérite	20,0	29,0	22,0	31,0
Albite	0,8	0,50	1,34	9,41
Apatite	8,21	6,17	7,36	2,84
Biotite	1,24	1,92	18,2	19,0
Dolomite	60,0	49,0	44,0	20,0
Fluorite	0,86	0,77	1,97	1,97
Pyrite	0,17	0,36	0,66	0,74

Tableau 5.3 Résultats de la réconciliation minéralogique (suite)

Minéral (%)	Carbonatite	Brèche	Fenite	Lamprophyre
Quartz	1,00	1,50	1,02	2,40
Orthoclase	0,12	1,08	0,11	1,35
Calcite	0,06	0,05	2,68	0,15
Pyrochlore	0,10	0,04	0,01	0,03
Muscovite	0,02	0,01	002	8,02
Hematite	0,18	1,40	0	0
Rutile	0,01	0,01	0,17	0,06
Sphalérite	0,01	0,04	0	0,04
Galène	0,01	0,01	0	0,02
Pyrrhotite	0,07	0,07	0	0,02
Bastnasite (Ce)	0,17	0,17	0,07	0,11
Monazite (Ce)	0,04	0,72	0,32	0,01
Parisite	1,03	0,15	0,06	0,49

L'analyse MEB MLA a permis de caractériser la distribution des sulfures au sein des différentes lithologies étudiées et d'évaluer leur potentiel de libération. Dans cette étude, les sections polies ont été préparées à partir d'échantillons bruts, sans tamisage préalable, ce qui signifie que la relation entre la taille des grains et leur degré de libération n'a pas été directement quantifiée. Toutefois, cette approche a permis de conserver l'intégrité texturale des échantillons et d'observer les sulfures dans leur état naturel d'association avec la matrice minérale. Les observations révèlent

que les sulfures sont présents sous différentes morphologies et associations minéralogiques. Par exemple, à la Figure 5.2a, les grains de pyrite sont partiellement enclavés dans la matrice silicatée avec la parisite, suggérant que leur dissolution pourrait être limitée par leur confinement au sein de la gangue minérale. À l'inverse, la figure 5.2b montre des cristaux aciculaires de chalcopyrite encapsulées dans une matrice quartzeuse, ce qui peut influencer leur accessibilité aux réactions d'oxydation.

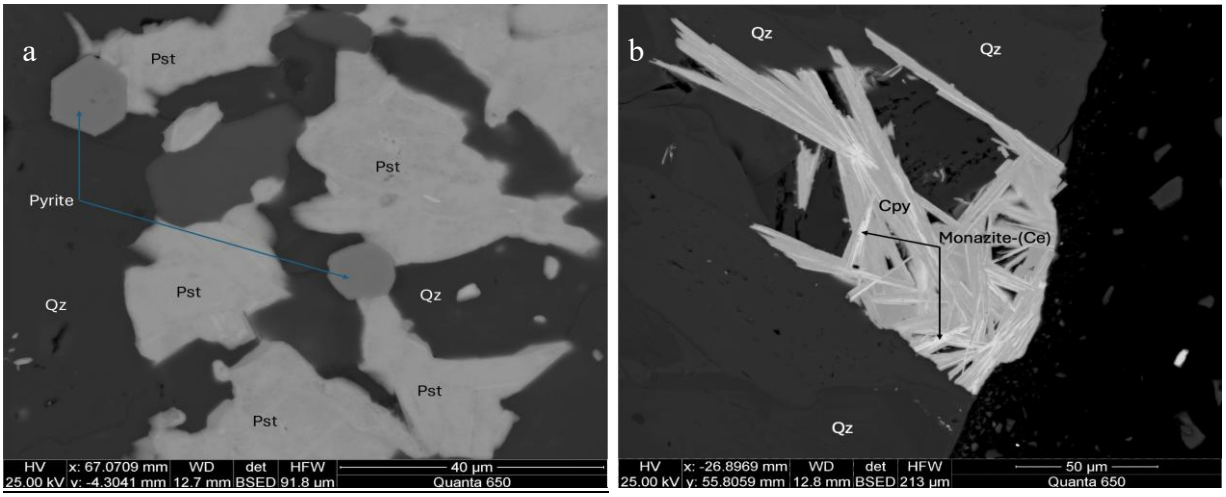

Figure 5.2 Image BSE-MEB de la carbonatite montrant des grains de pyrite associés à la gangue silicatée (Qz = quartz) et la parisite (Pst) (a) ainsi qu'une brèche illustrant des cristaux de chalcopyrite (Cpy) porteur d'ETR encapsulés dans une matrice quartzeuse (Qz) (b).

Ces observations sont cohérentes avec les données d'enclavement minéralogique (Tableau 5.4) obtenues par MLA, qui indiquent que les sulfures sont majoritairement associés à d'autres phases minérales, avec des taux atteignant 92,08% dans la fénite, 79,62% dans la brèche, 73,63% dans le lamprophyre et 43,67% dans les carbonatites. Ces résultats suggèrent que la libération des sulfures est fortement contrainte par leur enclavement, ce qui peut ralentir leur dissolution et limiter leur impact sur la qualité des eaux de drainage.

Tableau 5.4 Répartition des sulfures entre les phases libérées et les phases enclavées dans les lithologies étudiées

Lithologie	Sulfures libérés (%)	Sulfures liés à deux phases minérales ou plus (%)
Carbonatite	56,3	43,7
Lamprophyre	26,4	73,6
Brèche	20,4	79,6
Fénite	7,9	92,1

La Figure 5.3 indique que la plus grande partie des minéraux sulfurés est catégorisée comme enfermée (0-30% de libération), avec des pourcentages particulièrement importants pour la fénite et la brèche (approximativement 60%) mais aussi pour le lamprophyre et la carbonatite à environ 35%. Les portions intermédiaires partiellement libérées (30-80%) et libérées (80-100%) sont plutôt basses sauf pour la carbonatite (55%), ce qui suggère que ces minéraux sont généralement renfermés dans des phases porteuses moins réactives accessibles à la lixiviation comme les carbonates. Ceci indique un potentiel restreint pour l'oxydation du soufre et la production d'acidité.

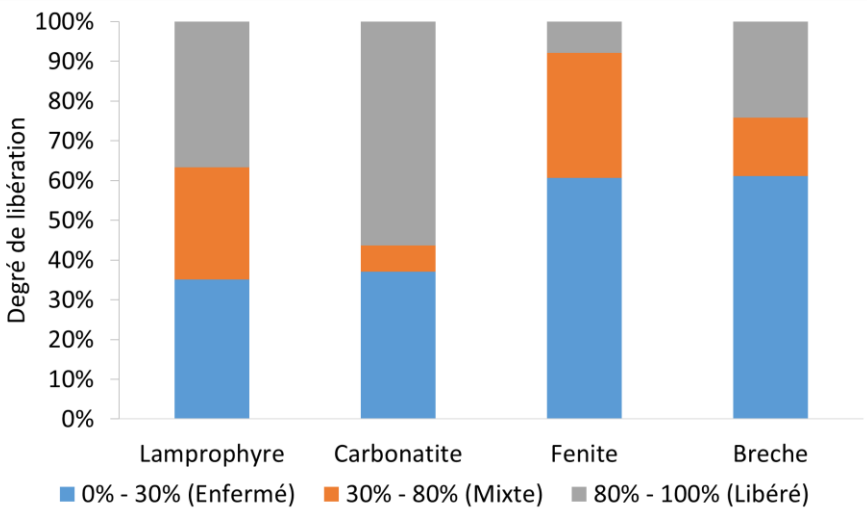

Figure 5.3 Degré de libération des minéraux sulfureux, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché

La distribution du fluor entre les différentes phases minérales révèle des variations notables selon la lithologie. D'après les résultats obtenus par analyse MLA (Figure 5.4), le fluor est principalement concentré dans plusieurs minéraux, tels que la fluorite, l'apatite, la parisite, la bastnaésite-(Ce), et dans une moindre mesure, la pyrochlore, la biotite et la muscovite. Dans les brèches, la fluorite domine fortement, représentant plus de la moitié du fluor total (51%), suivie de la bastnaésite (20%) et de la parisite (15.6%). Une tendance similaire dans le lamprophyre, ou la fluorite constitue 44% des porteurs de fluor, mais avec une proportion plus élevée de parisite (39%) et une part marginale pour les autres minéraux. La fénite quant à elle, montre un profil distinct, la parisite y est responsable de 40% du fluor, alors que la bastnaésite et la fluorite en représentent respectivement 23% et 9.3%. L'apatite y est plus présente 11%, ce qui n'est pas le cas dans la carbonatite, ou sa contribution tombe clairement avec 61% du fluor, suivie par la fluorite 23.5% et la bastnaésite 9%. On note aussi la présence non négligeable de la pyrochlore (entre 2 et 4.8% dépendamment des lithologies), qui, bien qu'accessoire, participe à la répartition globale du fluor. La biotite et la muscovite, en revanche, n'en contiennent que des traces. Ces résultats montrent que le fluor est réparti entre des minéraux aux propriétés très différentes. Dans certaines lithologies, comme la carbonatite et la fénite, il est majoritairement contenu dans les fluoro-carbonates complexe, tandis que dans d'autres, comme la brèche, il est plutôt lié à la fluorite. Cette distinction est importante, car elle influence directement la mobilité du fluor en condition de lixiviation, les minéraux comme la fluorite se dissolvent rapidement, alors que la parisite ou la bastnaésite ont une cinétique plus lente, ce qui pourrait limiter la libération du fluor dans certains scénarios d'entreposage de stérile.

Tableau 5.5 Distribution élémentaire des minéraux porteurs de F

Minéral porteur de F	Lamprophyre (%)	Fénite (%)	Carbonatite (%)	Brèche (%)
Apatite	4,08	11,58	2,84	8,75
Fluorite	43,8	9,30	23,5	51,3
Biotite	2,09	11,86	0,40	2,16
Muscovite	0,37	0,01	0,00	0,01
Pyrochlore	1,66	4,75	2,90	2,32
Bastnaésite-(Ce)	9,17	23,26	9,71	19,9
Parisite	38,8	39,2	60,6	15,6

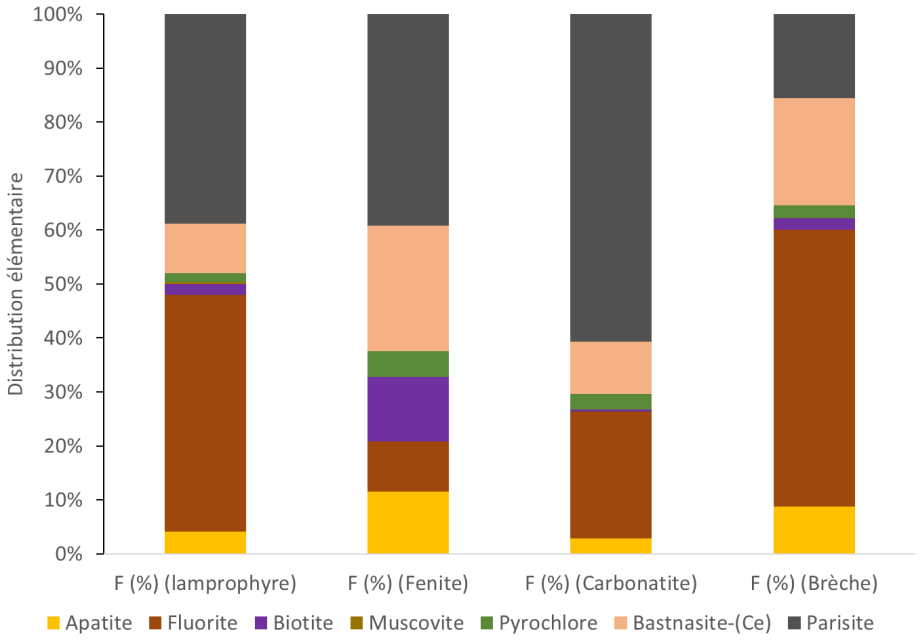

Figure 5.4 Distribution élémentaire de fluor dans les quatre lithologies

Le degré de libération du fluor, principalement contenu dans la fluorite, montre une distribution similaire à celle des minéraux sulfurés, avec une prédominance dans la fraction enfermée (Figure 5.5). Cependant, une proportion légèrement plus élevée de fluorite se retrouve dans les fractions partiellement libérées (30-80 %) et libérées (80-100 %) dans la fénite (55%). La brèche montre des proportions similaires au lamprophyre et à la carbonatite. Cela suggère une plus grande accessibilité de la fluorite dans cette lithologie. Le degré de libération de la fluorite est un facteur clé à considérer pour son traitement et sa récupération en tant que minéral économique. Une libération insuffisante peut compliquer la séparation de la fluorite dans les procédés d'enrichissement minéral, notamment dans les circuits de flottation, de lixiviation sélective ou de séparation magnétique (Boulanger, 2021). Inversement, un pourcentage plus élevé de fluorite dans les fractions libérées pourrait faciliter son extraction et sa valorisation, augmentant ainsi la rentabilité du projet. Ces résultats soulignent l'importance d'une caractérisation approfondie du degré de libération afin d'optimiser les conditions de séparation et de traitement du fluor et tant que sous-produit potentiel.

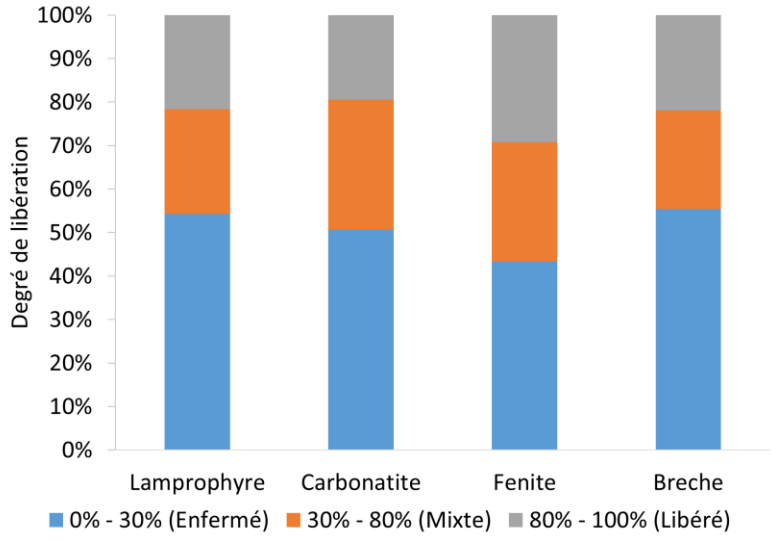

Figure 5.5 Degré de libération de la fluorite, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché.

L'analyse de l'enclavement (Tableau 5.5) montre que la majorité des minéraux fluorés (fluorite, apatite, fluoro-carbonates tels que la parisite et la bastnaésite) sont étroitement associés à d'autres phases minérales, Indépendamment du type de lithologie. La carbonatite représente la proportion la plus faible de minéraux fluorés libres, ce qui suggère un enclavement plus fort. À l'inverse, le lamprophyre montre le taux de libération le plus élevé (16.7%), mais cela reste insuffisant pour envisager une séparation facile sans broyage fin. La fénite et la brèche présentent des taux intermédiaires mais similaire (15.8-15.9%), confirmant une tendance générale à l'enclavement des phases fluorées dans l'ensemble des lithologies étudiées.

Tableau 5.6 Répartition des minéraux fluorés entre les phases libérées et les phases enclavées dans les lithologies étudiées

Lithologie	Les minéraux fluorés libérés (%)	Les minéraux fluorés liés à deux phases minérales ou plus (%)
Carbonatite	13,1	86,9
Lamprophyre	16,7	83,3
Brèche	15,9	84,1
Fénite	15,8	84,2

L'analyse de la distribution élémentaire du niobium (Figure 5.6) permet d'identifier les principales phases porteuses de Nb présentes dans les différentes lithologies. Quatre minéraux ont été identifiées par l'analyse MLA comme contribuant à la répartition du niobium : la pyrochlore, la ferricolumbite, l'euxénite et le rutile Nb-Nd. Parmi ces phases, la pyrochlore domine nettement dans la carbonatite ou elle représente plus de 92% du niobium total, ainsi que dans le lamprophyre (87%). En revanche, la fénite et la brèche présentent des répartitions plus diversifiées. Dans la fénite, la ferricolumbite est la phase majoritaire avec 56%, suivie de la pyrochlore (36%) et de l'euxénite (8%). La brèche montre une répartition intermédiaire, dominé par la pyrochlore (53%), mais une part notable de ferricolumbite (30%) et une présence relativement élevée de rutile enrichi en Nb et Nd (près de 10%), absente ou négligeable dans les autres lithologies. L'euxénite, bien que présente dans toutes les lithologies, reste une phase secondaire, contribuant de 5 à 8% du niobium selon les cas. Pour le rutile Nb-Nd, il est surtout présent dans la brèche. Ces résultats montrent que la pyrochlore constitue le principal minéral porteur de Nb dans le gisement Ashram, spécifiquement dans les lithologies les plus carbonatées. Les autres phases, bien que minoritaires, ne doivent pas être négligées, car leur comportement de libération et leur enclavement peuvent influencer la récupération du niobium lors de traitement métallurgiques ou de scénarios de valorisation des stériles.

Tableau 5.7 Distribution élémentaire des minéraux porteurs de Nb

Minéral porteur de Nb (%)	Lamprophyre	Fénite	Carbonatite	Brèche
Ferricolumbite	6,00	55,9	0,35	29,7
Euxenite	5,34	7,51	7,10	7,41
Pyrochlore	87,6	35,6	92,3	53,00
Rutile_Nb-Nd	1,06	1,02	0,26	9,95

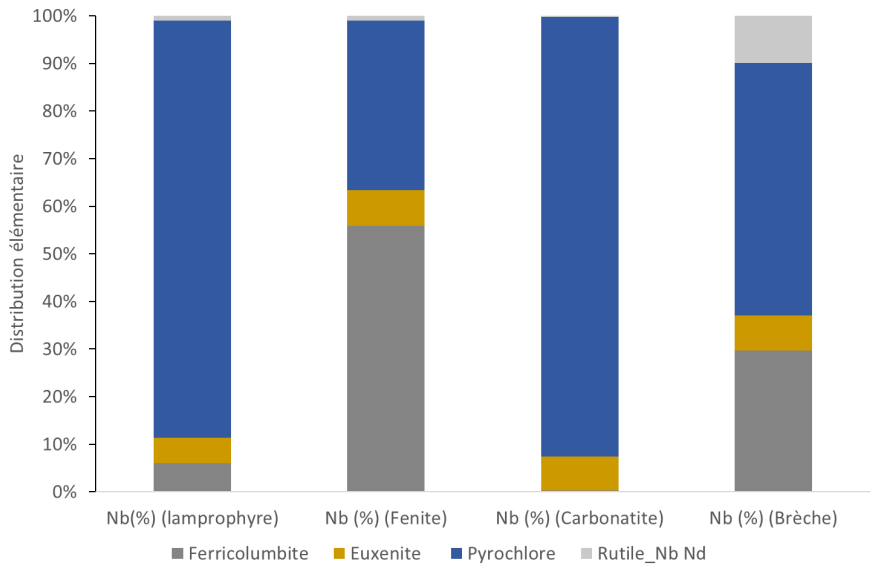

Figure 5.6 Distribution élémentaire de niobium dans les quatre lithologies

Les phases porteuses de niobium identifiées par MEB-MLA sont principalement le pyrochlore, l'euxénite et le rutile-Nb (Figure 5.7). Les résultats de degré de libération (Figure 5.7) montrent que la majorité de ces minéraux se trouvent dans la fraction enfermée, notamment dans la carbonatite (environ 70%) et la brèche (près de 60%). De plus, la fénite présente une proportion élevée de minéraux libérés (jusqu'à 30%), ce qui pourrait être lié à la présence de pyrochlore et d'euxénite plus accessibles en raison de leur altération texturale ou à leur granulométrie

relativement fine, notamment le pyrochlore, dont de plus de 95% des grains présentent un diamètre inférieur à 90 µm selon le MEB MLA. Cette variabilité suggère que la récupération du niobium pourrait être envisagée de manière ciblée, en particulier dans les lithologies ou la libération des minéraux porteurs est plus élevée, comme dans la brèche et la carbonatite. Selon la distribution élémentaire, le pyrochlore est de loin la phase dominante, représentant jusqu'à 92% du niobium dans la carbonatite et plus de 50% dans la brèche, tandis que la ferricolumbite et l'euxénite sont présentes en proportions secondaires. La proportion intermédiaire partiellement libérée observée dans le lamprophyre et la fénite suggère un potentiel de récupération modéré, dépendant des techniques de traitement utilisées. Outre la flottation, des méthodes, telle que la séparation magnétique ou gravimétrique, pourraient également être envisagées selon les propriétés spécifiques des phases porteuses de niobium. La récupération du niobium pourrait être envisagée à travers une séparation magnétique à haute intensité (par exemple le WHIMS), particulièrement adoptée à la pyrochlore, identifiée comme la principale phase porteuse de Nb dans la carbonatite et la brèche. Bien que cette étape ne soit pas intégrée au flowsheet actuel de projet Ashram, elle pourrait être ajoutée en amont d'un circuit secondaire de valorisation des stériles. Ce procédé permettrait de produire un concentré enrichi en niobium, à condition d'atteindre un degré de libération suffisant, notamment dans les fractions les plus riches.

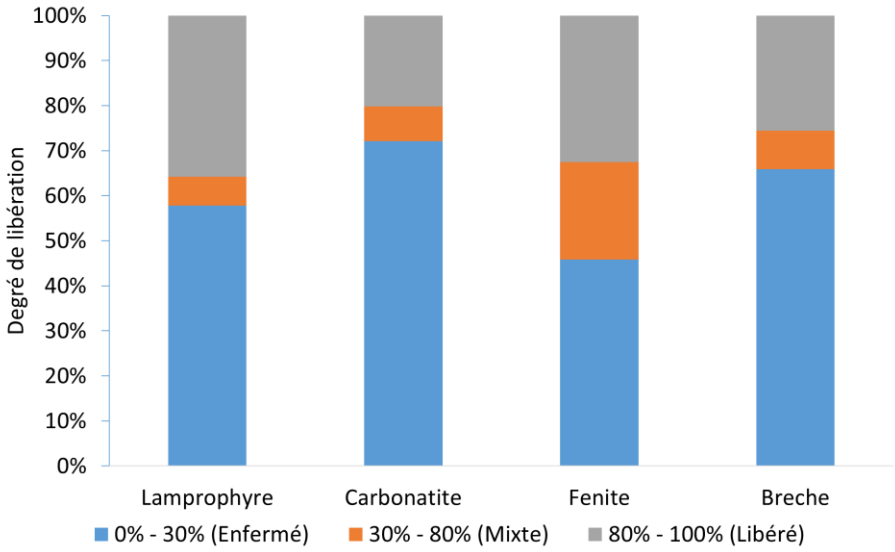

Figure 5.7 Degré de libération des minéraux porteurs de niobium, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché

Les résultats présentés dans le Tableau 5.8 montrent que les minéraux porteurs de niobium sont majoritairement enclavés, c'est-à-dire associés à deux phases ou plus, dans l'ensemble des lithologies analysées. La carbonatite présente le taux de libération le plus faible, avec seulement 16,9% des minéraux de niobium identifiés comme étant complètement libérés. Cela signifie que plus de 83% du niobium y est incorporé dans des assemblages complexes, ce qui limite considérablement son accessibilité sans traitement mécanique supplémentaire. Dans le lamprophyre, le taux de libération des minéraux de Nb atteint 23.3%, ce qui représente une légère amélioration, bien que près de 77% restent liés à d'autres phases. La situation est relativement similaire dans la fénite et la brèche, ou environ 27-28% des minéraux de niobium sont libérés. Ces données confirment que le traitement des stériles pour la récupération du niobium nécessiterait un broyage fin, voire très fin afin d'augmenter la libération des phases porteuses, car l'essentiel du niobium selon la distribution granulométrique est contenu dans des particules de petite dimension, En effet, plus de 95% des grains de pyrochlore ont un diamètre équivalent à 90 µm, et environ 50% se situent sous les 40-50 µm selon les résultats de MEB MLA.

Tableau 5.8 Répartition des minéraux porteurs de niobium entre les phases libérées et les phases enclavées dans les lithologies étudiées

Lithologie	Minéraux de niobium libérés (%)	Minéraux de niobium liés à deux phases minérales ou plus (%)
Carbonatite	16,9	83,1
Lamprophyre	23,3	76,8
Brèche	28,2	71,8
Fénite	26,9	73,1

L'étude de la distribution élémentaire du tantale (Figure 5.8) met en évidence deux phases minérales principales responsables de sa portabilité dans les lithologies étudiées : l'euxénite et la columbite-(Ti-Y). Dans l'ensemble, c'est la columbite (Ti-Y) qui apparait comme la phase dominante pour le tantale, avec des proportions variant de 63% à 90% selon les lithologies. Cette

dominance est particulièrement marquée dans le lamprophyre, ou la columbite porte jusqu'à 90% du tantale, contre seulement 10% pour l'euxénite. Cette tendance est également observée dans la brèche, bien que dans une moindre mesure (78% columbite, 22% euxénite). La carbonatite et la fénite présentent des répartitions légèrement plus équilibrées. Dans la carbonatite, l'euxénite représente 37% du Ta, ce qui en fait une contribution non négligeable. Dans la fénite, la répartition est similaire, avec 31% du tantale hébergé par l'euxénite. En résumé, la columbite (Ti-Y) est le principal minéral porteur du tantale dans les échantillons reçus du gisement Ashram, avec une contribution secondaire mais significative de l'euxénite, notamment dans les lithologies plus enrichies en ETR. Ces observations sont essentielles pour orienter les stratégies de valorisation ciblée du Ta, en tenant compte des comportement spécifiques de ces deux minéraux au sein de chaque lithologie.

Tableau 5.9 Distribution élémentaire des minéraux porteurs de Ta

Minéral porteur de Ta (%)	Lamprophyre	Fénite	Carbonatite	Brèche
Euxenite	9,56	31,2	37,0	21,9
Columbite Ti-Y	90,4	68,8	63,0	78,1

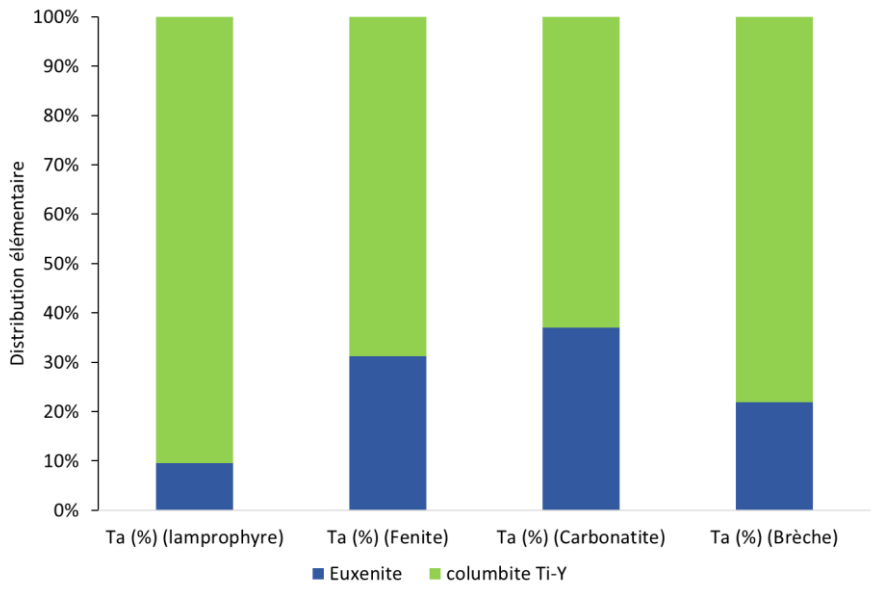

Figure 5.8 Distribution élémentaire de tantale dans les quatre lithologies

Pour le tantale, les phases porteuses détectées par MLA (Figure 5.9) sont l'euxénite et la columbite (Ti-Y). La columbite (Ti-Y), représente la phase dominante dans toutes les lithologies (entre 63% et 90% du Ta total) et l'euxénite, montre une proportion plus faible. Le profil de libération est similaire à celui du niobium, avec une forte proportion de minéraux enfermés dans le lamprophyre et la brèche (plus que 65%). Cependant, les carbonatites montrent une libération plus élevée (jusqu'à 22%), ce qui pourrait s'expliquer par la présence localisée de columbite (Ti-Y), parfois observée faiblement enclavée dans une matrice carbonatée. Cette configuration minéralogique suggère des contextes favorables à la séparation, notamment par séparation magnétique ou par séparation gravimétrique, compte tenu de la densité et du caractère faiblement magnétique de la columbite. Bien que la columbite représente une proportion modeste de la minéralogique globale (inférieure à 1%), sa concentration relative en tantale, combinée à sa libération partielle, justifie d'envisager une récupération ciblée dans les fractions riches. Dans un scénario réaliste, ces concentrés ne seraient pas traités immédiatement sur site, mais pourraient être mis de côté, séparément des résidus stériles, afin de préserver leur potentiel économique futur, notamment en vue d'un traitement ultérieur dans une usine spécialisée Nb-Ta, si un tel projet venait à voir le jour à proximité du site d'Ashram.

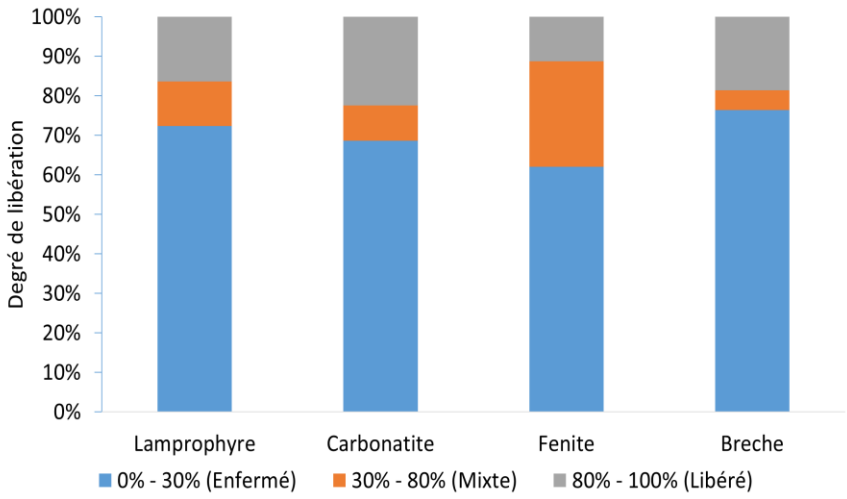

Figure 5.9 Degré de libération des minéraux porteurs de tantale, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché.

Les données présentées au Tableau 5.10, indiquent que les minéraux porteurs de tantale, sont majoritairement enclavés dans toutes les lithologies, ce qui limite leur récupération directe. La fénite présente le taux de libération le plus faible, avec seulement 10,4% de minéraux de tantale totalement libérés, ce qui signifie que près de 90% de ces phases sont associées à d'autres minéraux. Les lamprophyres et les brèches montrent également une forte proportion de grains enclavés (83,3% et 80,9% respectivement), bien que leurs taux de libération soient légèrement plus élevés que dans la fénite. La carbonatite est la lithologie la plus favorable, avec 21.9% de minéraux de tantale libérés, ce qui demeure toutefois relativement faible pour envisager une récupération directe. De manière générale, ces résultats confirment que les minéraux de tantale présents dans les stériles d'Ashram sont faiblement libérés, car l'essentiel du tantale selon la distribution granulométrique est contenu dans des particules de petite dimension. En effet, plus de 95% des grains de columbite Ti-Y ont un diamètre équivalent à 75 µm, et environ 50% se situent sous les 40-50 µm, tans disque l'euxénite, les grains présentent une taille inférieure à 52 µm, et jusqu'à 90% sont contenus dans les fractions <20 à 30 µm.

Tableau 5.10 Répartition des minéraux porteurs de tantale entre les phases libérées et les phases enclavées dans les lithologies étudiées

Lithologie	Minéraux de tantale libérés (%)	Minéraux de tantale liés à deux phases minérales ou plus (%)
Carbonatite	21,9	78,1
Lamprophyre	16,7	83,3
Brèche	19,1	80,9
Fénite	10,4	89,6

L'analyse de la distribution élémentaire du thorium dans les différentes lithologies révèle une hétérogénéité marquée des phases minérales porteuses. Quatre minéraux sont identifiés comme les principaux minéraux porteurs de thorium : la monazite (Ce), l'euxénite, la thorite-(Y) et la thorite. Dans la fénite et la brèche, le thorium est presque exclusivement contenu dans la monazite-(Ce), qui représente respectivement plus de 75% et près de 70% du Th total. Cela témoigne d'une forte concentration du thorium dans des phases associées aux ETR, ce qui pourrait avoir un impact sur la récupération conjointe des ETR et du Th. Dans la carbonatite, la répartition est plus équilibrée, environ 30% du Th est contenu dans la monazite, mais la part de l'euxénite atteint plus de 40% ce qui en fait la phase dominante dans cette lithologie. La thorite-(Y) y contribue également à hauteur de 25%, avec une faible proportion de thorite pure. La lithologie la plus contrastée est le lamprophyre, ou la monazite-(Ce) ne représente qu'environ 18% du Th, tandis que la thorite-(Y) est dominante avec près de 65-70% du total. L'euxénite et la thorite sont aussi présentes, mais dans des proportions moindres. De ce fait, les résultats indiquent que la monazite-(Ce) est le principal minéral porteur de Th dans les lithologies silicatées (fénite, brèche), tandis que les phases de thorite dominent dans les lamprophyres. L'euxénite joue un rôle crucial dans la carbonatite, souvent en co-association avec les Nb-Ta et les ETR. Sur le plan métallurgique et environnemental, cette distribution suggère que le thorium peut être partiellement mobilisé dans certains circuits de traitement d'ETR, en particulier, si la monazite-(Ce) est ciblée. Cela pose la question en particulier

à propos sa gestion en tant qu'éléments radioactif potentiel, notamment en lien avec les futures stratégies de valorisation ou de confinement des résidus.

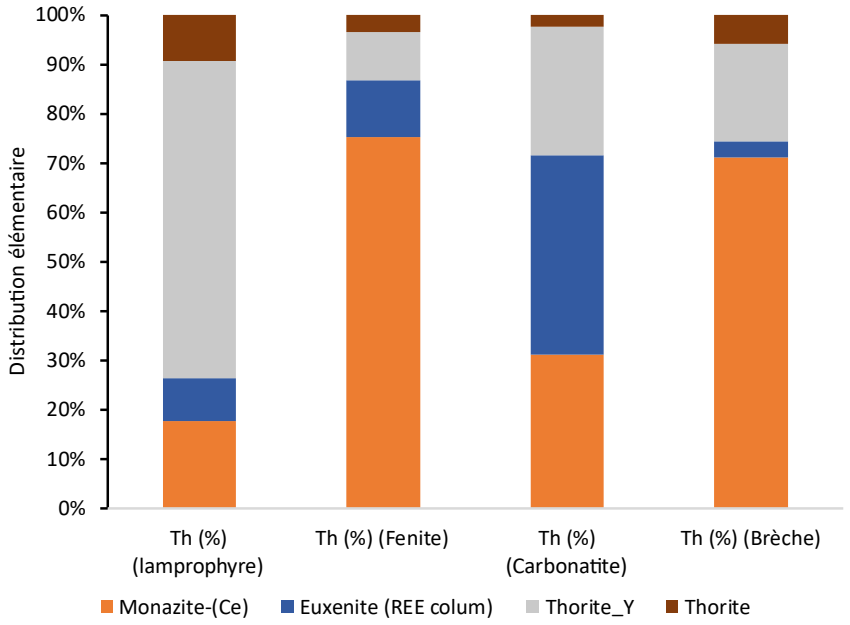

Figure 5.10 Distribution élémentaire de thorium dans les quatre lithologies

Les minéraux porteurs de thorium, tels que la monazite-(Ce), la thorite-Y, l'euxénite et la thorite, leur contribution relative varie selon la lithologie, par exemple, dans la fénite et la brèche, la monazite-(Ce), représente relativement environ 75% et 70% du thorium total. Dans la carbonatite, la distribution est plus équilibrée, avec environ 30% du Th présent dans la monazite, 40% dans l'euxénite et le reste réparti entre la thorite-Y et la thorite pure. Ces minéraux sont principalement classés dans la catégorie enfermée, notamment dans la fénite et la brèche (plus de 80%; Figure 5.11). Les résultats des essais en colonne montrent que le thorium demeure peu mobile, avec des concentrations systématiquement inférieures aux seuils de détection ou très faibles dans les lixiviats. Cette faible mobilité s'explique par la très faible solubilité du thorium et par sa forte affinité pour des phases minérales stables comme la monazite-(Ce), la thorite et l'euxénite, identifiées par l'analyse minéralogique, ce qui limite considérablement sa libération dans les scénarios de lixiviation.

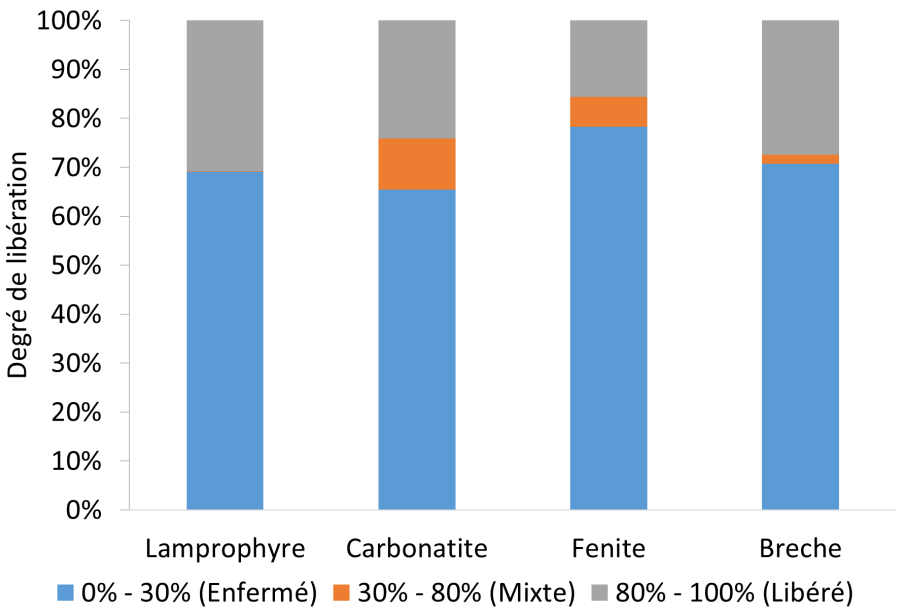

Figure 5.11. Degré de libération des minéraux porteurs du thorium, enfermé = inclus dans la matrice, mixte = partiellement libéré, libéré = totalement détaché

5.4 Valorisation potentielle des stériles du gisement Ashram

5.4.1 Justifications de la valorisation

Dans le cadre du projet Ashram, les stériles miniers représentent une proportion significative du matériel extrait (6,6 MT), avec une variabilité lithologique notable. Bien qu'ils soient considérés comme non rentables dans le schéma d'extraction principal, ces stériles contiennent toutefois des concentrations non négligeables d'éléments à valeur économique tels que le fluor, le niobium et le tantale. La valorisation de ces matériaux s'inscrit donc dans une démarche d'optimisation des ressources, de réduction des déchets et d'intégration dans une perspective d'économie circulaire.

La présente étude vise à évaluer la faisabilité d'une récupération sélective de ces éléments à partir des stériles, en s'appuyant sur les données minéralogiques obtenues par MLA et DRX, et les résultats de l'ICP et FRX, ainsi que le flowsheet de traitement initialement proposé pour le gisement Ashram.

5.4.2 Synthèse des phases valorisables identifiées

L'analyse de la répartition élémentaire a permis d'identifier plusieurs phases porteuses de fluor, niobium et tantale dans les différentes lithologies :

- ⇒ Le fluor est principalement contenu dans la fluorite, la parisite, la bastnaésite (Ce) et, dans une moindre mesure, l'apatite. La fluorite domine dans le lamprophyre et les brèches, tandis que les fluoro-carbonates prédominent dans les carbonatites et fénites;
- ⇒ Le niobium est essentiellement hébergé par la pyrochlore, accompagnée de la ferricolumbite et de l'euxénite, avec des variations selon la lithologie, la pyrochlore domine dans la carbonatite alors que la fénite et la brèche présentent des associations plus diversifiées;
- ⇒ Le tantale se retrouve principalement dans la columbite (Ti-Y) et l'euxénite, avec une nette prédominance de la columbite, notamment dans le lamprophyre.

L'analyse de libération a révélé que la majorité de ces phases sont partiellement enclavées, avec des taux de libération faibles à modérés (13 à 22%). Cela suggère qu'un broyage complémentaire est requis pour améliorer leur récupération potentielle.

5.4.3 Proposition de schéma de traitement simplifié

Bien que le niobium, le tantale et le fluor ne soient pas quantifiés par l'analyse chimique (ICP sur solide) en raison des limites analytiques de la méthode utilisée, leur présence a été confirmée par l'analyse minéralogique (MEB-MLA). En effet, plusieurs phases porteuses de ces éléments ont été identifiées dans les stériles, notamment la pyrochlore, la columbite et l'euxénite pour le Nb et le Ta, ainsi que la fluorite, la parisite et la bastnaésite-(Ce) pour le F. L'observation de ces phases, combinée à leur granulométrie fine (<90 µm) et à leur libération partielle, permet d'envisager des stratégies de récupération basées sur des méthodes physiques telles que la séparation gravimétrique et magnétique pour le Nb et le Ta, et une séparation chimique (flottation) pour le fluor. Même si les teneurs sont faibles, la concentration localisée de ces minéraux dans certaines fractions pourrait justifier une récupération secondaire, notamment dans le cadre d'un traitement complémentaire au procédé principal.

Sur la base du schéma de traitement proposé pour le traitement du minerai d'Ashram, un schéma simplifié de valorisation a été élaboré spécifiquement pour les stériles (Figure 5.12). Ce schéma repose sur une séquence d'opérations adaptée aux phases minéralogique identifiées :

- ⇒ Broyage fin (inférieure à 75 µm) est nécessaire, afin d'atteindre une libération suffisante des minéraux d'intérêt;

⇒ Préconcentration gravimétrique, suivie éventuellement d'une séparation magnétique à haute intensité, pourrait être envisagée pour améliorer la récupération des phases porteuses de Nb et Ta;

⇒ Flottation, visant à récupérer les minéraux fluorés tels que la fluorite, la parisite et la bastnaésite (Ce);

⇒ Récupération des concentrés, qui pourraient être stockés séparément ou intégrés à d'autres circuits de valorisation;

⇒ Gestion intégrée de résidus, avec possibilité de valorisation secondaire (matériaux de construction d'infrastructure et des routes dans la région).

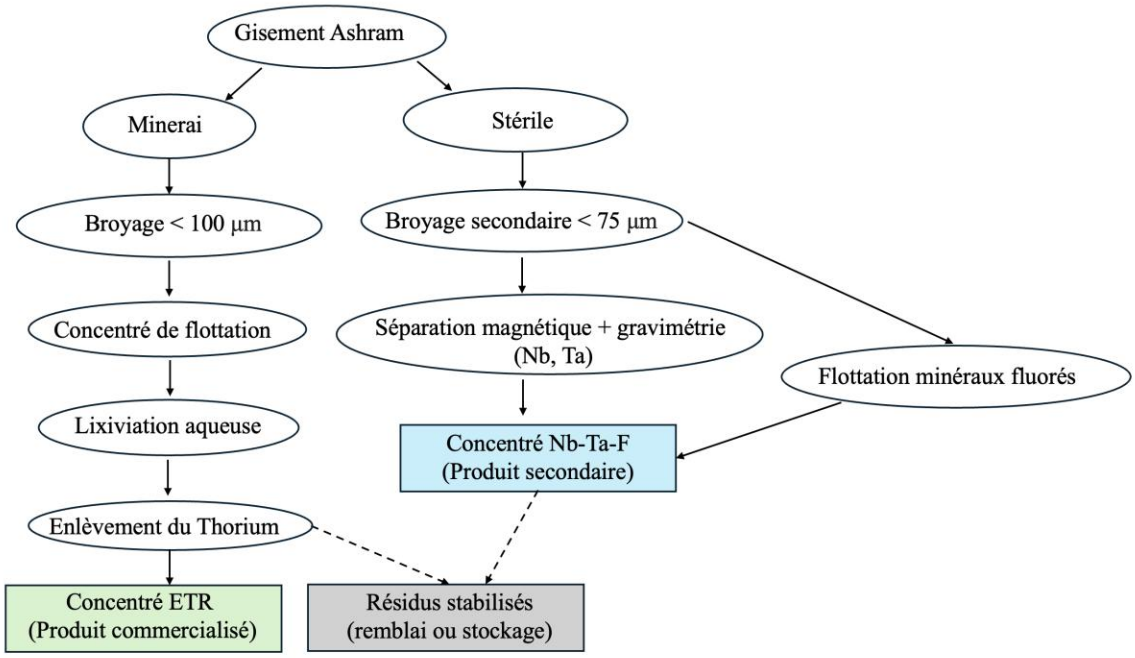

Figure 5.12 Esquisse proposée pour la valorisation des stériles d'Ashram

5.4.4 Discussion sur la faisabilité

La valorisation des stériles issus de l'exploitation du gisement Ashram offre une opportunité à la fois stratégique et responsable, particulièrement dans le contexte de demande croissante pour des minéraux critiques et stratégiques tels que le niobium et le tantale ainsi que le fluor. La récupération de ces éléments à partir des stériles représente une piste prometteuse dans le contexte de notre étude. Au-delà de l'intérêt économique, cette approche contribue aussi à réduire les volume de

stériles à entreposer à long terme, limitant les risques environnementaux liés à la génération de lixiviats et en simplifiant la gestion des résidus.

Une estimation du potentiel de valorisation économique des éléments critiques présents dans les stériles du gisement Ashram a été réalisée pour le fluor (F), le niobium (Nb) et le tantale (Ta), en se basant sur les proportions minéralogiques issues des analyses MEB-MLA et DRX, ainsi que sur la masse totale projetée des stériles (6,6 millions de tonnes). Pour le fluor, principalement contenu dans la fluorite et la parisite, la masse totale récupérable a été estimée à environ 1009 tonnes de fluor, dont 634,6 t proviennent de la fluorite et 374,5 t de la parisite. En considérant un prix moyen de 1 900 $/kg, la valeur économique potentielle s'élèverait à 1,9 milliard de dollars canadiens. Toutefois, ce chiffre doit être interprété avec prudence, car il repose sur une valeur marchande brute non corrigée des coûts de traitement, de purification ou de séparation sélective, ainsi qu'une efficacité de récupération de 100%. En ce qui concerne le niobium, présent principalement sous forme de pyrochlore, les calculs indiquent une masse récupérable de 1413,8 tonnes, avec une valeur économique estimée à 181 millions de dollars, basée sur un prix de 128 $/kg. De même, le tantale, concentré essentiellement dans la columbite-(Ti-Y), présente une masse totale de 597 tonnes, correspondant à une valeur d'environ 186,56 millions de dollars au prix actuel de 312,49 $/kg. Ces estimations démontrent que, sur le plan théorique, la récupération de ces éléments pourrait s'avérer économiquement intéressante, notamment pour le niobium et le tantale qui possèdent des marchés bien établis.

Cela dit, certaines limites doivent être prises en compte. Le taux de libération relativement faible de phases porteuses, en particulier dans la carbonatite, indique qu'un broyage plus fin serait requis pour atteindre un degré de libération adéquat, ce qui pourrait augmenter les coûts opérationnels. En outre, la proportion minéralogique relative des phases ciblées, bien que clairement identifiée, reste modeste, et les teneurs chimiques en Nb, Ta et F sont elles aussi modérées à faibles. Cette double contrainte de libération et de teneur souligne la nécessité d'une évaluation technique et économique approfondie pour juger la viabilité industrielle d'un tel circuit de valorisation.

5.5 Les radionucléides

Les analyses des radionucléides réalisées sur certains lixiviats des colonnes montrent que les teneurs en ^{210}Pb, ^{226}Ra, ^{228}Th, ^{230}Th et ^{232}Th sont très faibles, souvent inférieures aux limites de détection (Tableau 5.11). Ces valeurs sont en-deçà des limites réglementaires généralement établies

pour la protection de l'environnement et de la santé publique par la directive 019. Bien que le ^{226}Ra et le ^{228}Th montrent des variations légères selon les configurations, ces concentrations restent faibles et conformes aux normes environnementales pour la gestion des matières radioactives naturelles (MERN). Ces résultats suggèrent une faible mobilité des radionucléides dans les conditions expérimentales étudiées.

Tableau 5.11 Résultats des analyses radionucléides en Bq/L

Colonne	Flush R1, R2, R3, R4, R5, R6	Flush R10, R11, R12, R13, R14, R15
Colonne mélange	210Pb: <0.02	210Pb: <0.02
	226Ra: 0,06	226Ra: 0,03
	228Th: 0,04	228Th: 0,03
	230Th: <0,01	230Th: <0,01
	232Th: <0,01	232Th: <0,01
Colonne stratifiée	210Pb: <0.02	210Pb: <0.02
	226Ra: 0,09	226Ra: 0,03
	228Th: 0,03	228Th: 0,07
	230Th: 0,01	230Th: <0,01
	232Th: <0,01	232Th: <0,01
Colonne ennoyée	210Pb: <0.02	210Pb: <0.02
	226Ra: 0,10	226Ra: 0,07
	228Th: 0,03	228Th: 0,06
	230Th: <0,01	230Th: <0,01
	232Th: <0,01	232Th: <0,01

Tableau 5.11 Résultats des analyses radionucléides en Bq/l (suite)

Colonne	Flush R1, R2, R3, R4, R5, R6	Flush R10, R11, R12, R13, R14, R15
Colonne avec couche appauvrie en ETR au fond	210Pb: <0.04	210Pb: <0.02
	226Ra: 0,02	226Ra: 0,02
	228Th: 0,07	228Ra: 0,04
	230Th: <0,01	230Th: <0,01
	232Th: <0,01	232Th: <0,01

Les concentrations en uranium lixiviées des colonnes sont présentées à la Figure 5.13. Les concentrations d'uranium montrent des variations demeurant inférieures à 0,036 mg/L pour la carbonatite, 0,035 mg/L pour la colonne ennoyée, 0,031 mg/L pour la colonne mélange, et 0,022 mg/L pour la colonne de fénite. Ces variations semblent plutôt aléatoires et ne pas avoir de lien avec les variations de volumes de rinçages. Il appert donc que tous les matériaux testés montrent des potentiels de lixiviation d'uranium à peu de choses près équivalentes. À titre comparatif, le critère de qualité d'eau de surface au Québec est de 0,32 mg/L; les lixiviats des colonnes montrent donc des concentrations inférieures d'environ 1 ordre de grandeur.

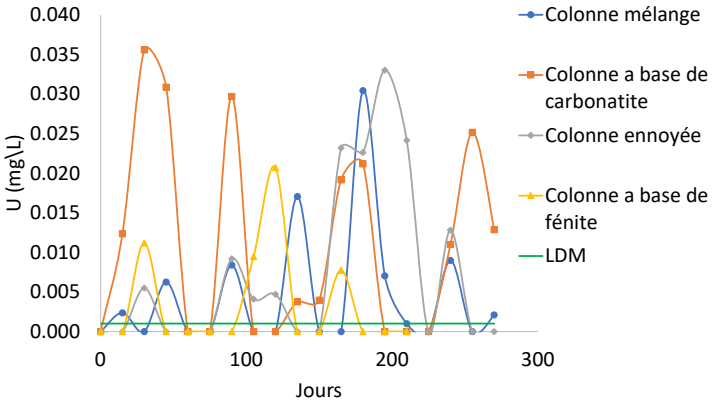

Figure 5.13 Évolution de la concentration en uranium (mg/L) dans les lixiviats au cours des essais en colonnes

CHAPITRE 6 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

6.1 Conclusions

Ce mémoire a exploré le comportement géochimique et la valorisation des stériles issus du gisement Ashram, en se concentrant sur l'évolution du comportement géochimique et de la mobilité des ETR dans des conditions neutres. Les caractérisations chimiques et minéralogiques ainsi que les essais cinétiques ont permis d'identifier les principaux mécanismes influençant la libération et la rétention des ETR et autres éléments.

Les résultats obtenus soulignent que la composition minéralogique des stériles joue un rôle clé dans leur réactivité chimique. En particulier, la présence dominante des carbonates dans les échantillons étudiés favorise une capacité importante de neutralisation d'acide, ce qui élimine la génération d'un drainage minier acide (DMA). Toutefois, les essais ont montré que des concentrations notables d'ETR et de métaux peuvent persister dans les lixiviats. Toutes les concentrations observées demeurent largement en dessous des seuils établis par la directive 019, tant pour les ETR que les métaux / métalloïdes tels que le Cu, Zn, As, et Fe, ce qui suggère une faible mobilité environnementale et un risque minimal associé au lixiviat généré.

Les calculs thermodynamiques effectués avec Visual MINTEQ ont suggéré que les ETR restent majoritairement en solution, bien que des phases secondaires telles que la fluorite, et le barite puissent théoriquement précipiter, les conditions observées dans les essais en colonne, notamment un pH légèrement alcalin (8,2 – 8,7), ainsi que des concentrations modérées en fluor et en sulfate sont propices à leur formation. Toutefois, aucun indicateur direct de précipitation n'a été observé, suggérant que ces phases pourraient se maintenir proches de l'équilibre sans précipitation significative. Cette dynamique met en lumière l'importance des interactions entre la minéralogie initiale et les processus géochimiques dans la gestion environnementale des stériles.

Enfin, les résultats des essais cinétiques indiquent que la colonne stratifiée représente la meilleure configuration pour minimiser la libération des ETR et d'autres contaminants, par rapport à la stratégie de stratification étudiée et d'ennoiement. Ces résultats fournissent des bases pour la conception de stratégies environnementales adaptées au contexte de gisement Ashram, mais également pour l'élaboration de scénarios de valorisation secondaire des stériles, en tenant compte des phases minéralogiques identifiées et de leur réactivité.

6.2 Recommandations

À la lumière des résultats obtenus dans cette étude, plusieurs recommandations sont émises afin de guider les recherches futures et d'améliorer les pratiques industrielles et environnementales liées à la gestion des stériles du gisement Ashram.

- Réaliser des essais cinétiques supplémentaires sur différentes granulométries, notamment en incluant des fractions granulométriques plus représentatives des conditions réelles d'entreposage, afin d'évaluer l'impact de la surface spécifique et d'identifier les tendances de libération des ETR et des métaux en conditions variées;
- Étudier les liens ETR-colloïdes;
- Effectuer des analyses approfondies sur les phases secondaires formées pendant les essais cinétiques en réalisant des caractérisations post-démantèlement (par DRX, MEB-MLA ou microsonde électronique) afin de mieux comprendre les mécanismes de précipitation et leur stabilité à long terme;
- Évaluer la spéciation chimique des ETR dans les lixiviats et dans les phases secondaires précipitées par des analyses de spéciation (spectroscopie XAS) afin de mieux comprendre les mécanismes de mobilité et d'immobilisation des ETR;
- Réaliser des essais en cellules d'humidité afin d'évaluer à moyen et à long terme la libération des ETR et les métaux associés sous des conditions contrôlées simulant les interactions air-eau-roche représentatives du site Ashram;
- Investiguer l'effet de la température sur la dissolution des minéraux carbonatés, notamment dans des conditions de basses températures représentatives du climat local, afin d'anticiper leur comportement saisonnier dans le contexte nordique du gisement Ashram;
- Mettre en œuvre des essais de toxicité (aigus et chroniques) sur les lixiviats obtenus pour évaluer précisément entre le risque environnemental associé à la libération des ETR et d'autres éléments, en utilisant des organismes aquatiques représentatifs des écosystèmes locaux;
- Conduire des essais de terrain complémentaires à plus grande échelle avec des échantillons représentatifs des stériles afin de valider les résultats obtenus en laboratoire et de mieux prévoir l'évolution géochimique réelle sur site;

- Mettre en place un suivi environnemental à long terme sur site, impliquant des analyses régulières des eaux, sols et végétaux, afin de vérifier les résultats obtenus en laboratoire et d'assurer une gestion proactive des risques environnementaux;
- Classifier les différents stériles en fonction de leur potentiel de mobilisation des terres rares et de génération de contaminants, et proposer des stratégies différenciées de gestion (par exemple, stratification optimisée, ennoiement sélectif) selon leur niveau de risque environnemental identifié;
- Compte tenu de la présence simultanée de fluor, de niobium et de tantale dans les stériles, une stratégie intégrée de co-récupération pourrait améliorer la rentabilité économique. Le regroupement des procédés de séparation ciblant plusieurs éléments critiques à la fois permettrait d'optimiser les investissements en infrastructure et de réduire les coûts unitaires;
- Les analyses indiquent que certaines lithologies, notamment les carbonatites et les fénites, contiennent des concentrations plus élevées de phases porteuses de fluor, de niobium et de tantale comme la fluorite, la pyrochlore et la parisite. Un tri préalable ou une séparation granulométrique ciblée de ces fractions pourrait améliorer le rendement global;
- Avant toute mise en œuvre à grande échelle, il est recommandé de réaliser une étude pilote incluant le broyage, la séparation et la récupération sur des volumes représentatifs. Cette étape permettra de valider les hypothèses de rendement, d'optimiser les conditions opératoires et de mieux estimer les coûts.

RÉFÉRENCES

Ait-Khouia, Y., Benzaazoua, M., & Demers, I. (2021). Environmental desulfurization of mine wastes using various mineral processing techniques: Recent advances and opportunities. *Minerals Engineering*, *174*, 107225.

Ali, S. H. (2014). Social and environmental impact of the rare earth industries. *Resources*, *3*(1), 123-134.

Alves Dias, P., Bobba, S., Carrara, S., & Plazzotta, B. (2020). The role of rare earth elements in wind energy and electric mobility. *European Commission: Luxembourg*.

Andersen, A. K., Larson, P. B., & Cosca, M. A. (2019). C–O stable isotope geochemistry and 40Ar/39Ar geochronology of the Bear Lodge carbonatite stockwork, Wyoming, USA. *Lithos*, *324*, 640-660.

Appelo, C. (1994). Geochemistry, groundwater and pollution Balkema. *Rotterdam*, 142-148.

Appelo, C. A. J., & Postma, D. (2004). *Geochemistry, groundwater and pollution*. CRC press.

ASTM. (2013). Standard test method for laboratory weathering of solid materials using a humidity cell. In (Vol. 1104, pp. 23): American Society for Testing and Materials International West Conshohocken, PA.

Aubertin, M., Bussière, B., Bernier, L., Chapuis, R., Julien, M., Belem, T., Simon, R., Mbonimpa, M., Benzaazoua, M., & Li, L. (2002). La gestion des rejets miniers dans un contexte de développement durable et de protection de l'environnement. *Congrès annuel de la Société canadienne de génie civil*, 5-8.

Aubertin, M., Pabst, T., Bussière, B., James, M., Mbonimpa, M., Benzaazoua, M., & Maqsoud, A. (2015). Revue des meilleures pratiques de restauration des sites d'entreposage de rejets miniers générateurs de DMA. Symposium 2015 sur l'environnement et les mines,

Bagdonas, D., Enriquez, A., Coddington, K., Finnoff, D., McLaughlin, J., Bazilian, M., Phillips, E., & McLing, T. (2022). Rare earth element resource evaluation of coal byproducts: A case study from the Powder River Basin, Wyoming. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, *158*, 112148.

Balaram, V. (2019). Rare earth elements: A review of applications, occurrence, exploration, analysis, recycling, and environmental impact. *Geoscience Frontiers*, *10*(4), 1285-1303.

Bâlgăr, A.-C. (2021). Implications and Challenges of China's Supremacy on the Global Rare Earths Market. *Global Economic Observer*, *9*(1), 55-68.

Barakos, G., & Mischo, H. (2021). Insertion of the social license to operate into the early evaluation of technical and economic aspects of mining projects: Experiences from the Norra Kärr and Bokan Dotson rare earth element projects. *The Extractive Industries and Society*, *8*(2), 100814.

Bebbington, A., Hinojosa, L., Bebbington, D. H., Burneo, M. L., & Warnaars, X. (2008). Contention and ambiguity: Mining and the possibilities of development. *Development and change*, *39*(6), 887-914.

Beland, C. M., & Williams-Jones, A. E. (2021). The genesis of the Ashram REE deposit, Quebec: Insights from bulk-rock geochemistry, apatite-monazite-bastnäsite replacement reactions and mineral chemistry. *Chemical Geology*, *578*, 120298.

Beland, C. M. J. (2021). *The contrasting geochemical behaviour of Sc and the other REE as exemplified by the Crater Lake and Ashram deposits, Québec, Canada*. McGill University (Canada).

Belem, T., & Benzaazoua, M. (2008). Design and application of underground mine paste backfill technology. *Geotechnical and Geological Engineering*, *26*, 147-174.

Ben Cherifa, A., Rogez, J., Jemal, M., & Mathieu, J. (2001). Dissolution de l'hydroxyapatite et du phosphate tricalcique β dans les solutions d'acide nitrique. *Journal of thermal analysis and calorimetry*, *63*, 689-697.

Benjamin, M. M., & Leckie, J. O. (1981). Multiple-site adsorption of Cd, Cu, Zn, and Pb on amorphous iron oxyhydroxide. *Journal of Colloid and Interface Science*, *79*(1), 209-221.

Benzaazoua, M., Bussière, B., Dagenais, A.-M., & Archambault, M. (2004). Kinetic tests comparison and interpretation for prediction of the Joutel tailings acid generation potential. *Environmental geology*, *46*, 1086-1101.

Bilal, E., Marciano, V., Marques, J., Neves, C., Fuzikawa, K., Riffel, B. F., Nalini, H. A., Fernandes, M. L., & Nasraoui, M. (1998). Altération hydrothermale des monazites-(Ce) des pegmatites du district de Santa Maria de Itabira (Minas Gerais, Brésil). *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences-Series IIA-Earth and Planetary Science*, *326*(10), 693-700.

Binnemans, K., Jones, P. T., Blanpain, B., Van Gerven, T., Yang, Y., Walton, A., & Buchert, M. (2013). Recycling of rare earths: a critical review. *Journal of cleaner production*, *51*, 1-22.

Birkett, T., & Clark, T. (1991). A lower Proterozoic carbonatite at Lac Lemoyne, northern Quebec: geology and mineral potential. Geological Survey of Canada, Current Activities Forum,

Blowes, D. (2013). PREDICTING THE DURATION AND EXTENT OF ACID DRAINAGE RELEASE FROM SULFIDE BEARING MINE WASTES. 2013 GSA Annual Meeting in Denver,

Blowes, D., Ptacek, C., Jambor, J., & Weisener, C. (2005). The geochemistry of acid mine. *Environ. Geochem*, *9*, 149.

Blowes, D. W., Ptacek, C. J., Frind, E. O., Johnson, R. H., Robertson, W. D., & Molson, J. W. (1994). Acid-neutralization reactions in inactive mine tailings impoundments and their effect on the transport of dissolved metals. International Land Reclamation and Mine Drainage Conference and the Third International Conference on the Abatement of Acid Drainage, Pittsburgh,

Boulanger, J.-F. (2021). Extraction des éléments de terres rares (ETR) par flottation-traitement caustique-lixiviation HCI/Jean-François Boulanger.

Boulanger, J., Bazin, C., & Turgeon, K. (2016). Literature Review of the Concentration of Rare Earth Elements (REE) through Flotation Processes. *Rapport Technique pour CanMET mining, http://reechromite. ca/en/rare-earth-elements/publications*, 1-68.

Bouzahzah, H. (2013). *Modification et amélioration des tests statiques et cinétiques pour une prédiction fiable du drainage minier acide* Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue].

Bouzahzah, H., Benzaazoua, M., Bussiere, B., & Plante, B. (2014a). Prediction of acid mine drainage: importance of mineralogy and the test protocols for static and kinetic tests. *Mine Water and the Environment*, *33*(1), 54.

Bouzahzah, H., Benzaazoua, M., Bussière, B., & Plante, B. (2014). Revue de littérature détaillée sur les tests statiques et les essais cinétiques comme outils de prédiction du drainage minier acide. *Environnement, Ingénierie & Développement*, 14-31.

Bright, D., & Sandys, N. (2015). Beyond ML/ARD: the many faces of neutral mine drainage in the context of mine closure.

Bulatovic, S. M. (2007). *Handbook of flotation reagents: Chemistry*. Elsevier Science.

Bussiere, B. (2007). Colloquium 2004: Hydrogeotechnical properties of hard rock tailings from metal mines and emerging geoenvironmental disposal approaches. *Canadian Geotechnical Journal*, *44*(9), 1019-1052.

canada, R. n. (2022). *Faits sur les éléments des terres rares*. https://ressources-naturelles.canada.ca/mineraux-exploitation-miniere/donnees-statistiques-analyses-exploitation-miniere/faits-mineraux-metaux/faits-elements-terres-rares

Castor, S. B., & Hedrick, J. B. (2006). Rare earth elements. *Industrial minerals and rocks*, *7*, 769-792.

Chakhmouradian, A. R., & Zaitsev, A. N. (2012). Rare earth mineralization in igneous rocks: sources and processes. *Elements*, *8*(5), 347-353.

Champagne, K. (2014). *Cadre de référence sur l'exploitation des terres rares au Québec selon le développement durable* éditeur non identifié].

Chan, T. (1992). A new beneficiation process for the treatment of supergene monazite ore. *Rare earths: extraction, preparation and applications, San Diego*, 77-94.

Chang, N. (2019). Countering China's grip on rare earth commodities.

Charles, N., Tuduri, J., Lefebvre, G., Pourret, O., Gaillard, F., & Goodenough, K. (2021). Ressources en terres rares de l'Europe et du Groenland: un potentiel minier remarquable mais tabou? In: ISTE Science Publishing Ltd; Wiley.

Chen, Z., Hu, Z., & Li, K. (2021). The spillover effect of trade policy along the value Chain: Evidence from China's rare earth-related sectors. *The World Economy*, *44*(12), 3550-3582.

Cheng, Z., Jiang, J., Fajardo, O., Wang, S., & Hao, J. (2013). Characteristics and health impacts of particulate matter pollution in China (2001–2011). *Atmospheric environment*, *65*, 186-194.

Cherepovitsyn, A., & Solovyova, V. (2022). Prospects for the Development of the Russian Rare-Earth Metal Industry in View of the Global Energy Transition—A Review. *Energies*, *15*(1), 387. https://www.mdpi.com/1996-1073/15/1/387

Chopard, A., Benzaazoua, M., Bouzahzah, H., Plante, B., & Marion, P. (2017). A contribution to improve the calculation of the acid generating potential of mining wastes. *Chemosphere*, *175*, 97-107.

Church, C., & Crawford, A. (2020). Minerals and the metals for the energy transition: Exploring the conflict implications for mineral-rich, fragile states. *The geopolitics of the global energy transition*, 279-304.

Ciuculescu, T., Foo, B., Gowans, R., Hawton, K., Jacobs, C., & Spooner, J. (2013). Technical report disclosing the results of the feasibility study on the Nechalacho Rare Earth Elements project. *Micon International Limited for Quest Rare Minerals: Toronto, ON, Canada*.

Clark, T., & Wares, R. (2006). *Lithotectonic and metallogenic synthesis of the new Québec Orogen (Labrador Trough)*. Géologie Québec [Ressources naturelles et faune Québec].

Corriveau, L. (2007). Iron oxide copper-gold (±Ag±Nb±P±REE±U) deposits: a Canadian perspective. *Mineral deposits of Canada: a synthesis of major deposit-types, district metallogeny, the evolution of geological provinces, and exploration methods: Geological Association of Canada, Mineral Deposits Division, Special Publication*, *5*, 265-278.

Costis, S., Mueller, K. K., Coudert, L., Neculita, C. M., Reynier, N., & Blais, J.-F. (2021). Recovery potential of rare earth elements from mining and industrial residues: A review and cases studies. *Journal of Geochemical Exploration*, *221*, 106699.

Cravotta III, C. A. (2008). Dissolved metals and associated constituents in abandoned coal-mine discharges, Pennsylvania, USA. Part 2: Geochemical controls on constituent concentrations. *Applied Geochemistry*, *23*(2), 203-226.

Cruz, R., Bertrand, V., Monroy, M., & González, I. (2001). Effect of sulfide impurities on the reactivity of pyrite and pyritic concentrates: a multi-tool approach. *Applied Geochemistry*, *16*(7-8), 803-819.

Dalpé-Mainville, M., Boulanger, J.-F., & Coudert, L. (2021). Métaux critiques et stratégiques rejetés au Québec et au Canada: une analyse des données de l′ inventaire national des rejets de polluants (INRP).

Demers, I., Bussière, B., Aachib, M., & Aubertin, M. (2011). Repeatability evaluation of instrumented column tests in cover efficiency evaluation for the prevention of acid mine drainage. *Water, Air, & Soil Pollution*, *219*, 113-128.

Dobbins, M., Dunn, P., & Sherrell, I. (2009). Recent advances in magnetic separator designs and applications. The 7th International Heavy Minerals Conference "What next", The Southern African Institute of Mining and Metallurgy,

Dorozhkin, S. V. (2002). A review on the dissolution models of calcium apatites. *Progress in crystal growth and characterization of materials*, *44*(1), 45-61.

Dushyantha, N., Batapola, N., Ilankoon, I., Rohitha, S., Premasiri, R., Abeysinghe, B., Ratnayake, N., & Dissanayake, K. (2020). The story of rare earth elements (REEs): Occurrences, global distribution, genesis, geology, mineralogy and global production. *Ore Geology Reviews*, *122*, 103521.

Edahbi, M. (2018). Mobility of rare earth elements in mine drainage: Influence of iron oxides, carbonates, and phosphates. *Chemosphere*, *199*, 647-654.

Edahbi, M., Plante, B., & Benzaazoua, M. (2019). Environmental challenges and identification of the knowledge gaps associated with REE mine wastes management. *Journal of cleaner production*, *212*, 1232-1241.

Edahbi, M., Plante, B., Benzaazoua, M., & Pelletier, M. (2018). Geochemistry of rare earth elements within waste rocks from the Montviel carbonatite deposit, Québec, Canada. *Environmental Science and Pollution Research*, *25*, 10997-11010.

Einsele, G. (2000). Sedimentary basins: evolution, facies, and sediment budget.

Etemad, H. (2020). Managing uncertain consequences of a global crisis: SMEs encountering adversities, losses, and new opportunities. *Journal of International Entrepreneurship*, *18*, 125-144.

Éthier, M.-P. (2011). *Évaluation du comportement géochimique en conditions normale et froides de différents stériles présents sur le site de la mine Raglan* École Polytechnique de Montréal].

Everingham, J.-A., Svobodova, K., Lèbre, É., Owen, J. R., & Worden, S. (2022). Comparative capacity of global mining regions to transition to a post-mining future. *The Extractive Industries and Society*, *11*, 101136.

Fernández-Caliani, J. C., & Grantcharova, M. M. (2021). Enrichment and fractionation of rare earth elements in an estuarine marsh soil receiving acid discharges from legacy sulfide mine wastes. *Soil Systems*, *5*(4), 66.

Ferré, E., Gleizes, G., & Caby, R. (2002). Obliquely convergent tectonics and granite emplacement in the Trans-Saharan belt of Eastern Nigeria: a synthesis. *Precambrian research*, *114*(3-4), 199-219.

Ferron, C. J., Bulatovic, S. M., & Salter, R. S. (1991). Beneficiation of rare earth oxide minerals. Materials Science Forum,

Gagnon, G., Rousseau, G., Camus, Y., & Gagné, J. (2015a). *Ashram Rare Earth Deposit. Preliminary Economic Assessment*.

Gagnon, G., Rousseau, G., Camus, Y., & Gagné, J. (2015b). NI 43-101 Technical report preliminary economic assessment Ashram rare earth deposit for Commerce Resources Corp. *SGS Canada, Inc*.

Gavin, B. (2013). China's growing conflict with the WTO: The case of export restrictions on rare earth resources. *Intereconomics*, *48*(4), 254-261.

Goonan, T. G. (2011). *Rare earth elements: End use and recyclability*. US Department of the Interior, US Geological Survey Reston, VA, USA.

Gromet, L. P., Haskin, L. A., Korotev, R. L., & Dymek, R. F. (1984). The "North American shale composite": Its compilation, major and trace element characteristics. *Geochimica et cosmochimica acta*, *48*(12), 2469-2482.

Gruber, C., Kutuzov, I., & Ganor, J. (2016). The combined effect of temperature and pH on albite dissolution rate under far-from-equilibrium conditions. *Geochimica et cosmochimica acta*, *186*, 154-167.

Gustafsson, J. (2013). Visual MINTEQ ver. 3.1. 2013. *URL: http://vminteq. lwr. kth. se*.

Halka, M., & Nordstrom, B. (2019). *Lanthanides and actinides*. Infobase Holdings, Inc.

Hansen, T. (2020). *Securing US Access to Rare Earth Elements*. Center for Strategic & International Studies.

Haque, N., Hughes, A., Lim, S., & Vernon, C. (2014). Rare earth elements: Overview of mining, mineralogy, uses, sustainability and environmental impact. *Resources*, *3*(4), 614-635.

Harper, F., Wiid, G., Siegfried, P., Brown, J., Hall, M., Njowa, G., Vivier, J., Zietsman, R., & Duke, V. (2015). National Instrument 43-101 Independent Technical Report on the Results of a Preliminary Feasibility Study on the Zandkopsdrift Rare Earth Element and Manganese By-Product Project in the Northern Cape Province of South Africa for Frontier Rare Earths Limited. In: VenmynDeloitte.

Heikkinen, P., Räisänen, M., & Johnson, R. (2009). Geochemical characterisation of seepage and drainage water quality from two sulphide mine tailings impoundments: acid mine drainage versus neutral mine drainage. *Mine Water and the Environment*, *28*, 30-49.

Hoenderdaal, S., Espinoza, L. T., Marscheider-Weidemann, F., & Graus, W. (2013). Can a dysprosium shortage threaten green energy technologies? *Energy*, *49*, 344-355.

Hu, Z., Lu, D., Zheng, X., Wang, Y., Xue, Z., & Xu, S. (2023). Development of a high-gradient magnetic separator for enhancing selective separation: A review. *Powder Technology*, 118435.

Ilankoon, I., Dushyantha, N., Mancheri, N., Edirisinghe, P., Neethling, S., Ratnayake, N., Rohitha, L., Dissanayake, D., Premasiri, H., & Abeysinghe, A. (2022). Constraints to rare earth elements supply diversification: Evidence from an industry survey. *Journal of Cleaner Production*, *331*, 129932.

Jaireth, S., Hoatson, D. M., & Miezitis, Y. (2014). Geological setting and resources of the major rare-earth-element deposits in Australia. *Ore Geology Reviews*, *62*, 72-128.

Jha, M. K., Kumari, A., Panda, R., Kumar, J. R., Yoo, K., & Lee, J. Y. (2016). Review on hydrometallurgical recovery of rare earth metals. *hydrometallurgy*, *165*, 2-26.

Jordens, A., Cheng, Y. P., & Waters, K. E. (2013). A review of the beneficiation of rare earth element bearing minerals. *Minerals Engineering*, *41*, 97-114.

Jouini, M., Neculita, C., Genty, T., & Benzaazoua, M. (2019). Environmental Assessment of Residues from Multi-Step Passive Treatment of Fe-AMD: Field Case Study of the Lorraine Mine Site, Quebec, Canada. *Proceedings of Tailings and Mine Waste, Vancouver, BC, Canada*.

Kanazawa, Y., & Kamitani, M. (2006). Rare earth minerals and resources in the world. *Journal of alloys and compounds*, *408*, 1339-1343.

Kato, Y., Fujinaga, K., Nakamura, K., Takaya, Y., Kitamura, K., Ohta, J., Toda, R., Nakashima, T., & Iwamori, H. (2011). Deep-sea mud in the Pacific Ocean as a potential resource for rare-earth elements. *Nature geoscience*, *4*(8), 535-539.

Kwitko-Ribeiro, R. (2012). New sample preparation developments to minimize mineral segregation in process mineralogy. Proceedings of the 10th International Congress for Applied Mineralogy (ICAM),

Lammers, K., Smith, M. M., & Carroll, S. A. (2017). Muscovite dissolution kinetics as a function of pH at elevated temperature. *Chemical Geology*, *466*, 149-158.

Leybourne, M. I., Goodfellow, W. D., Boyle, D. R., & Hall, G. M. (2000). Rapid development of negative Ce anomalies in surface waters and contrasting REE patterns in groundwaters associated with Zn–Pb massive sulphide deposits. *Applied Geochemistry*, *15*(6), 695-723.

Li, J., Peng, K., Wang, P., Zhang, N., Feng, K., Guan, D., Meng, J., Wei, W., & Yang, Q. (2020). Critical rare-earth elements mismatch global wind-power ambitions. *One Earth*, *3*(1), 116-125.

Li, L. Z., & Yang, X. (2014). China's rare earth ore deposits and beneficiation techniques. 1st Eur. Rare Earth Resour. Conf,

Li, X.-Y., Ge, J.-P., Chen, W.-Q., & Wang, P. (2019). Scenarios of rare earth elements demand driven by automotive electrification in China: 2018–2030. *Resources, Conservation and Recycling*, *145*, 322-331.

Lim, H., Ibana, D., & Eksteen, J. (2016). Leaching of rare earths from fine-grained zirconosilicate ore. *Journal of Rare Earths*, *34*(9), 908-916.

Lingawi, H., Barbour, M., Lynch, R., & Anderson, P. (2011). Effect of zinc ions (Zn+ 2) on hydroxyapatite dissolution kinetics studied using scanning microradiography. In *ORCA 2011, Kaunas*.

Liu, S.-L., Fan, H.-R., Liu, X., Meng, J., Butcher, A. R., Yann, L., Yang, K.-F., & Li, X.-C. (2023). Global rare earth elements projects: New developments and supply chains. *Ore Geology Reviews*, 105428.

Lord, V. (2021). *Étude du comportement hydrogéochimique des rejets d'une mine de graphite*. Ecole Polytechnique, Montreal (Canada).

Lorenz, T., & Bertau, M. (2020). 1.3 Rare earth resources and processing. *Rare Earth Chemistry*, 37.

Lusty, P., & Walters, A. (2010). Rare earth elements.

Ma, L., Jin, L., & Brantley, S. L. (2011). How mineralogy and slope aspect affect REE release and fractionation during shale weathering in the Susquehanna/Shale Hills Critical Zone Observatory. *Chemical Geology*, *290*(1-2), 31-49.

Machado, N., Clark, T., David, J., & Goulet, N. (1997). U–Pb ages for magmatism and deformation in the New Quebec Orogen. *Canadian Journal of Earth Sciences*, *34*(5), 716-723.

Maest, A. S., & Nordstrom, D. K. (2017). A geochemical examination of humidity cell tests. *Applied Geochemistry*, *81*, 109-131.

Mancheri, N. A., Sprecher, B., Bailey, G., Ge, J., & Tukker, A. (2019). Effect of Chinese policies on rare earth supply chain resilience. *Resources, Conservation and Recycling*, *142*, 101-112.

Mariano, A. (1989). Nature of economic mineralization in carbonatites and related rocks. *Carbonatites: genesis and evolution*, 149-176.

Marion, C. (2020). *A Mineralogical Investigation into the Beneficiation of a Rare-Earth Mineral Deposit Using Physical Separations*. McGill University (Canada).

Marmier, V., Plante, B., Demers, I., & Benzaazoua, M. (2025a). Development of a Neutral Mine Drainage Prediction Method Using Modified Kinetics Tests and Assessment of Sorption Capacities. *Mine Water and the Environment*, 1-14.

Marmier, V., Plante, B., Demers, I., & Benzaazoua, M. (2025b). Neutral Mine Drainage prediction for different waste rock lithologies–Case study of Canadian Malartic. *Journal of Geochemical Exploration*, 107685.

Marsh, D. (2013). Avalon's Nechalacho Project Metallurgical Process Optimization Yielding Improved Ree Recoveries. *Avalon News Release*, 1-3.

Mattigod, S., Sposito, G., & Page, A. (1981). Factors affecting the solubilities of trace metals in soils. *Chemistry in the soil environment*, *40*, 203-221.

Medeiros, C. A. D., & Trebat, N. M. (2017). Transforming natural resources into industrial advantage: the case of China's rare earths industry. *Brazilian Journal of Political Economy*, *37*, 504-526.

Menezes, D. R. (2022). The Case for a Five Eyes Critical Minerals Alliance Focusing on Greenland. *POLAR COUSINS*, *2022*, 109.

Merkus, H. G. (2009). *Particle size measurements: fundamentals, practice, quality* (Vol. 17). Springer Science & Business Media.

Michaud, M. L. (2016). *Développement d'une méthode de prédiction cinétique du drainage neutre contaminé avec agent complexant: application au projet Minier BlackRock*. Ecole Polytechnique, Montreal (Canada).

Michaud, M. L., Plante, B., Bussière, B., Benzaazoua, M., & Leroux, J. (2017). Development of a modified kinetic test using EDTA and citric acid for the prediction of contaminated neutral drainage. *Journal of Geochemical Exploration*, *181*, 58-68.

Miretzky, P., & Fernandez-Cirelli, A. (2008). Phosphates for Pb immobilization in soils: a review. *Environmental Chemistry Letters*, *6*, 121-133.

Mitchell, R. H., & Smith, D. L. (2017). Geology and mineralogy of the Ashram zone carbonatite, Eldor Complex, Quebec. *Ore Geology Reviews*, *86*, 784-806.

Nadeau, O., Cayer, A., Pelletier, M., Stevenson, R., & Jébrak, M. (2015). The Paleoproterozoic Montviel carbonatite-hosted REE–Nb deposit, Abitibi, Canada: Geology, mineralogy, geochemistry and genesis. *Ore Geology Reviews*, *67*, 314-335.

Nazari, S., Hassanzadeh, A., He, Y., Khoshdast, H., & Kowalczuk, P. B. (2022). Recent developments in generation, detection and application of nanobubbles in flotation. *Minerals*, *12*(4), 462.

Nordstrom, D. K., Blowes, D. W., & Ptacek, C. J. (2015). Hydrogeochemistry and microbiology of mine drainage: An update. *Applied Geochemistry*, *57*, 3-16.

Opare, E. O., Struhs, E., & Mirkouei, A. (2021). A comparative state-of-technology review and future directions for rare earth element separation. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, *143*, 110917.

Paktunc, A. (1999). Mineralogical constraints on the determination of neutralization potential and prediction of acid mine drainage. *Environmental geology*, *39*, 103-112.

Pell, R., Wall, F., Yan, X., Li, J., & Zeng, X. (2019). Mineral processing simulation based-environmental life cycle assessment for rare earth project development: A case study on the Songwe Hill project. *Journal of environmental management*, *249*, 109353.

Peres Menezes, M. (2004). *Exploitations minières et politiques de gestion environnementale. Utilisation de l'expertise canadienne en fermeture de mines pour le site de l'ancienne mine d'uranium de l'INB à Caldas (Minas Gerais, Brésil)[ressource électronique]* Université Laval].

Plante, B. (2010). *Évaluation des principaux facteurs d'influence sur la prédiction du drainage neutre contaminé* Université du Québec à en Abitibi-Témiscamingue].

Plante, B., Benzaazoua, M., & Bussière, B. (2011). Predicting geochemical behaviour of waste rock with low acid generating potential using laboratory kinetic tests. *Mine Water and the Environment*, *30*, 2-21.

Plante, B., Benzaazoua, M., Bussière, B., Biesinger, M., & Pratt, A. (2010). Study of Ni sorption onto Tio mine waste rock surfaces. *Applied Geochemistry*, *25*(12), 1830-1844.

Plante, B., Benzaazoua, M., Bussière, B., Kandji, E.-H.-B., Chopard, A., & Bouzahzah, H. (2015). Use of EDTA in modified kinetic testing for contaminated drainage prediction from waste rocks: case of the Lac Tio mine. *Environmental Science and Pollution Research*, *22*, 7882-7896.

Plante, B., Bussière, B., & Benzaazoua, M. (2014). Lab to field scale effects on contaminated neutral drainage prediction from the Tio mine waste rocks. *Journal of Geochemical Exploration*, *137*, 37-47.

Plante, B., Schudel, G., & Benzaazoua, M. (2021). Prediction of acid mine drainage. *Hard rock mine reclamation. CRC Press, Boca Raton*, 21-46.

Prigiobbe, V., & Mazzotti, M. (2013). Precipitation of Mg-carbonates at elevated temperature and partial pressure of CO2. *Chemical engineering journal*, *223*, 755-763.

Purdy, C. (2014). *The geochemical and mineralogical controls on the environmental mobility of rare earth elements from tailings, Nechalacho deposit, Northwest Territories* Queen's University].

Rasmussen, H. (2021). Characterization of Uranium, Lead, and Rare Earth Element Pollution in Natural Soils and Sediments.

Raszkiewicz, E. (2014). Lab Technology Face Off: ICP-AES vs. ICP-OES vs. ICP-MS. *Retirado a*, *12*(1), 2017.

Reynolds, L. J. (2000). Geology of the olympic dam Cu-U-Au-Ag-REE deposit. *Hydrothermal iron oxide copper-gold and related deposits: A global perspective*, *1*, 93-104.

Robertson, J. A., & Gould, K. L. (1983). *Uranium and thorium deposits of northern Ontario*.

Salim, H., Sahin, O., Elsawah, S., Turan, H., & Stewart, R. A. (2022). A critical review on tackling complex rare earth supply security problem. *Resources Policy*, *77*, 102697.

Sappin, A., & Beaudoin, G. (2015). Classification des principaux indices en éléments de terres rares au Québec (Canada): contexte géologique et évaluation de leur intérêt économique. *Ministère des Ressources naturelles et de la Faune du Québec. MB*, *10*, 76.

Sappin, A., Beaudoin, G., Simandl, G., & Neetz, M. (2015). Rare earth elements in Québec, Canada: main deposit types and their economic potential. Symposium on Strategic and Critical Materials Proceedings. Edited by GJ Simandl and M. Neetz. British Columbia Ministry of Energy and Mines, British Columbia Geological Survey Paper,

Schmid, M. (2019). Mitigating supply risks through involvement in rare earth projects: Japan's strategies and what the US can learn. *Resources Policy*, *63*, 101457.

Schriner, D. (2016). *Advanced beneficiation of bastnaesite ore through centrifugal concentration and froth flotation*. Colorado School of Mines.

Schulz, B., Merker, G., & Gutzmer, J. (2019). Automated SEM mineral liberation analysis (MLA) with generically labelled EDX spectra in the mineral processing of rare earth element ores. *Minerals*, *9*(9), 527.

Seaman, J. (2019). Rare earths and China. *A review of changing criticality in the new economy*.

Serrano, M. J. G., Sanz, L. F. A., & Nordstrom, D. K. (2000). REE speciation in low-temperature acidic waters and the competitive effects of aluminum. *Chemical Geology*, *165*(3-4), 167-180.

Sherlock, E., Lawrence, R., & Poulin, R. (1995). On the neutralization of acid rock drainage by carbonate and silicate minerals. *Environmental geology*, *25*, 43-54.

Sholkovitz, E. R. (1995). The aquatic chemistry of rare earth elements in rivers and estuaries. *Aquatic geochemistry*, *1*, 1-34.

Shuai, J., Zhao, Y., Shuai, C., Wang, J., Yi, T., & Cheng, J. (2023). Assessing the international co-opetition dynamics of rare earth resources between China, USA, Japan and the EU: An ecological niche approach. *Resources Policy*, *82*, 103446.

Simandl, G. (2014). Geology and market-dependent significance of rare earth element resources. *Mineralium Deposita*, *49*(8), 889-904.

Simandl, G. J. (2015). Carbonatites and related exploration targets. *British Columbia Geological Survey*, 31-37.

Simandl, G. J., & Paradis, S. (2018). Carbonatites: related ore deposits, resources, footprint, and exploration methods. *Applied Earth Science*, *127*(4), 123-152.

Sneller, F., Kalf, D., Weltje, L., & Van Wezel, A. (2000). Maximum permissible concentrations and negligible concentrations for rare earth elements (REEs).

Sobek, A. A. (1978). *Field and laboratory methods applicable to overburdens and minesoils*. Industrial Environmental Research Laboratory, Office of Research and ….

Spandler, C., Slezak, P., & Nazari-Dehkordi, T. (2020). Tectonic significance of Australian rare earth element deposits. *Earth-science reviews*, *207*, 103219.

Steffen, W., Broadgate, W., Deutsch, L., Gaffney, O., & Ludwig, C. (2015). The trajectory of the Anthropocene: the great acceleration. *The Anthropocene Review*, *2*(1), 81-98.

Stegen, K. S. (2015). Heavy rare earths, permanent magnets, and renewable energies: An imminent crisis. *Energy Policy*, *79*, 1-8.

Stein, R. T., Kasper, A. C., & Veit, H. M. (2022). Recovery of Rare Earth Elements Present in Mobile Phone Magnets with the Use of Organic Acids. *Minerals*, *12*(6), 668. https://www.mdpi.com/2075-163X/12/6/668

Stille, P., Pierret, M.-C., Steinmann, M., Chabaux, F., Boutin, R., Aubert, D., Pourcelot, L., & Morvan, G. (2009). Impact of atmospheric deposition, biogeochemical cycling and water–mineral interaction on REE fractionation in acidic surface soils and soil water (the Strengbach case). *Chemical Geology*, *264*(1-4), 173-186.

Stille, P., Steinmann, M., Pierret, M.-C., Gauthier-Lafaye, F., Aubert, D., Probst, A., Viville, D., & Chabaux, F. (2006). The impact of vegetation on fractionation of rare earth elements (REE) during water–rock interaction. *Journal of Geochemical Exploration*, *88*(1-3), 341-344.

Thomas, P. J., Carpenter, D., Boutin, C., & Allison, J. E. (2014). Rare earth elements (REEs): effects on germination and growth of selected crop and native plant species. *Chemosphere*, *96*, 57-66.

Thrane, K., Kalvig, P., & Keulen, N. (2014). REE deposits and occurrences in Greenland. ERES2014: 1st European Rare Earth Resources Conference, Milos, Greece,

Tracy, B. (2020). An overview of rare earth elements and related issues for congress.

USGS, E.-U. G. s. (2010). *Rare earth elements—critical resources for high technology*. https://doi.org/https://pubs.usgs.gov/fs/2002/fs087-02/

Van Gosen, B. S., Verplanck, P. L., Seal II, R. R., Long, K. R., & Gambogi, J. (2017). *Rare-earth elements* (1411339916).

Verret, F.-O. (2006). Développement d'un capteur de taux de rétention d'air pour une colonne de flottation.

Villeneuve, M. (2004). *Évaluation du comportement géochimique à long terme de rejets miniers à faible potentiel de génération d'acide à l'aide d'essais cinétique*. École Polytechnique de Montréal.

Wang, C., Liang, Y., & Xu, W. (2015). On the significance of temperatures derived from major element and REE based two-pyroxene thermometers for mantle xenoliths from the North China Craton. *Lithos*, *224*, 101-113.

Wang, L., & Liang, T. (2014a). Accumulation and fractionation of rare earth elements in atmospheric particulates around a mine tailing in Baotou, China. *Atmospheric Environment*, *88*, 23-29.

Wang, L., & Liang, T. (2014b). Effects of exogenous rare earth elements on phosphorus adsorption and desorption in different types of soils. *Chemosphere*, *103*, 148-155.

Wang, S. J., Liu, Q. M., & Zhang, D. F. (2004). Karst rocky desertification in southwestern China: geomorphology, landuse, impact and rehabilitation. *Land degradation & development*, *15*(2), 115-121.

Widmer, J. D., Martin, R., & Kimiabeigi, M. (2015). Electric vehicle traction motors without rare earth magnets. *Sustainable Materials and Technologies*, *3*, 7-13.

Witt, W., Hammond, D., & Hughes, M. (2019). Geology of the Ngualla carbonatite complex, Tanzania, and origin of the Weathered Bastnaesite Zone REE ore. *Ore Geology Reviews*, *105*, 28-54.

Yang, X. J., Lin, A., Li, X.-L., Wu, Y., Zhou, W., & Chen, Z. (2013). China's ion-adsorption rare earth resources, mining consequences and preservation. *Environmental Development*, *8*, 131-136.

Yu, G., Xiong, C., Xiao, J., He, D., & Peng, G. (2022). Evolutionary analysis of the global rare earth trade networks. *Applied Mathematics and Computation*, *430*, 127249.

Yu, H. (2017). Motivation behind China's 'One Belt, One Road'initiatives and establishment of the Asian infrastructure investment bank. *Journal of Contemporary China*, *26*(105), 353-368.

Yusoff, Z. M., Ngwenya, B. T., & Parsons, I. (2013). Mobility and fractionation of REEs during deep weathering of geochemically contrasting granites in a tropical setting, Malaysia. *Chemical Geology*, *349*, 71-86.

Zampa, C. (2021). RARE EARTHS ELEMENTS: DYNAMICS IN THE GLOBAL MARKET.

Zhang, J., & Edwards, C. (2012). A review of rare earth mineral processing technology. 44th annual meeting of the Canadian mineral processors. CIM, Ottawa,

Zhang, J., Zhao, B., & Schreiner, B. (2016). *Separation hydrometallurgy of rare earth elements* (Vol. 449). Springer.

Zhanheng, C. (2011). Global rare earth resources and scenarios of future rare earth industry. *Journal of rare earths*, *29*(1), 1-6.

Zhao, P., Wavrant, L.-M., Sappin, A.-A., Beland, CMJ, Chartier-Montreuil, W., Fleury, F., Zhao, P., Beaudoin, G., Barnes, S.-J., Cheng, LZ, Chouteau, M., Constantin, M., Dare, S., Dupuis, C., Stevenson, R., et Williams-Jones, . (2017). Projet terre rares au Québec.

Zhao, Y., Pohl, O., Bhatt, A. I., Collis, G. E., Mahon, P. J., Rüther, T., & Hollenkamp, A. F. (2021). A review on battery market trends, second-life reuse, and recycling. *Sustainable Chemistry*, *2*(1), 167-205.