POLYPUBLIE
Polytechnique Montréal

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL
UNIVERSITÉ D'INGÉNIERIE

Titre: Title:	Une analyse hydrogéochimique de l'efficacité de recouvrements multicouches pour le drainage minier acide
Auteur: Author:	Anne-Marie Joanes
Date:	1999
Type:	Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis
Référence: Citation:	Joanes, A.-M. (1999). Une analyse hydrogéochimique de l'efficacité de recouvrements multicouches pour le drainage minier acide [Master's thesis, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. https://publications.polymtl.ca/8902/

Document en libre accès dans PolyPublie
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: PolyPublie URL:	https://publications.polymtl.ca/8902/
Directeurs de recherche: Advisors:	Michel Aubertin, & Robert P. Chapuis
Programme: Program:	Unspecified

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

https://publications.polymtl.ca

NOTE TO USERS

This reproduction is the best copy available.

UMI

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

UNE ANALYSE HYDROGÉOCHIMIQUE DE L'EFFICACITÉ DE RECOUVREMENTS MULTICOUCHES POUR LE DRAINAGE MINIER ACIDE

ANNE-MARIE JOANES
DÉPARTEMENT DES GÉNIES CIVIL, GÉOLOGIQUE ET DES MINES
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE MINÉRAL)
AVRIL 1999

© Anne-Marie Joanes, 1999.

National Library of Canada
Acquisitions and Bibliographic Services
395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque nationale du Canada
Acquisitions et services bibliographiques
395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-46652-3

Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

UNE ANALYSE HYDROGÉOCHIMIQUE DE
L'EFFICACITÉ DE RECOUVREMENTS MULTICOUCHES POUR
LE DRAINAGE MINIER ACIDE

Présenté par : JOANES Anne-Marie

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

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

M. MARCOTTE, Denis, Ph.D., président

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

M.CHAPUIS, Robert, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M.BERNIER, Louis,Ph.D., membre

REMERCIEMENTS

Je remercie d'abord mon directeur de recherche, Michel Aubertin et mon codirecteur Robert Chapuis. Leurs conseils avisés, leur confiance et leur appui m'ont permis de progresser tout au long de mon projet.

Je voudrais exprimer ma gratitude à Louis Bernier, qui a partagé avec moi les mystères et surprises de la géochimie.

Je remercie aussi Antonio Gatien et Étienne Bélanger, pour leur collaboration à la phase expérimentale ainsi que le centre de recherche minérale du Québec (CRM), Christian Dallaire, Marcel Dugual et Paul Samson pour leur collaboration technique.

Une appréciation toute particulière est adressée à Lucette de Gagné, pour les milles et un petits services rendus, ainsi qu'à Michel Julien, Bruno Bussière et Mostafa Aachib.

Je tiens finalement à souligner la participation financière du NEDEM (Itec Mineral, CANMET et le MRN) qui a rendu disponible la réalisation de ce projet.

RÉSUMÉ

Dans le but de contrôler la production de drainage minier acide (DMA) engendrée par les rejets sulfureux, l'utilisation de couvertures avec effets de barrières capillaires (CEBC) constitue souvent la seule méthode envisageable. Le présent projet vise à comparer en laboratoire différentes barrières de recouvrement pour limiter l'apport d'oxygène et prévenir l'acidification du lixiviat. Huit colonnes ont été montées selon le principe de recouvrement multicouche, soit un matériel grossier (sable) à la base suivi d'un matériau à faible perméabilité et d'un sable dans la partie supérieure. Cette séquence fait appel au concept de barrière capillaire dans lequel un haut degré de saturation est maintenu à l'intérieur du matériau fin. Les matériaux utilisés comme couches à rétention capillaire peu perméables sont des résidus miniers non-sulfureux (non réactifs) de la mine Sigma de type grossier, fin et amendé et finalement du till. Deux colonnes de référence de 50 cm de résidus miniers de Manitou ont été montées sans couverture afin de vérifier l'effet de recouvrement sur la production d'acide due à l'oxydation des minéraux sulfureux.

Des études sur le terrain (Aubertin et al., 1997, 1999) ont été effectuées en parallèle avec celles effectuées en laboratoire, afin d'établir une corrélation des résultats.

Périodiquement, pendant environ 20 mois, on a simulé les effets mouillage séchage en versant une certaine quantité d'eau dans chaque colonne.

Les différentes méthodes utilisées afin d'évaluer la performance des CEBC se sont avérées efficaces. Le suivi régulier des teneurs en eau a servi à tracer le profil du comportement hydrique des couvertures et à valider les simulations numériques, lesquelles permettent de prédire la performance des CEBC. Les flux théoriques d'oxygène ont permis de vérifier la capacité des colonnes à réduire le DMA. Les analyses du lixiviat portant sur la conductivité électrique, le pH, le Eh et les teneurs en

sulfates et en métaux dissous ont également confirmé l'efficacité des systèmes de recouvrement. La géochimie des résidus sur le terrain (non recouverts) a permis de contraster les changements géochimiques qui se sont produits avec les résidus miniers des couvertures multicouches et de vérifier l'efficacité des CEBC à limiter le DMA.

Les divers matériaux et les diverses configurations utilisés ont également rendu possible la comparaison de différents scénarios de façon à mieux percevoir l'influence des divers facteurs sur la performance des CEBC.

ABSTRACT

One possible means of controlling the production of acid mine drainage (AMD) caused by the oxidation of reactive tailings, is to use multilayered covers. This technique is often considered the most viable as it limits effectively the flow of water and oxygen to reactive tailings. The aim of the present study was to conduct a laboratory experiment using different configurations of covers to limit oxygen diffusion and thereby preventing acidification. To cover the reactive tailings, a capillary layer of fine grained material has been sandwiched between 2 layers of coarser material. This structure is referred to as a cover with capillary barrier effects. It allows the fine grained material layer to remain at a high degree of saturation while the coarser materials drain and usually stays fairly dry.

The materials used for the retention layer consisted of non-reactive tailings from the Sigma mine, identified as Sigma coarse, Sigma fine and Sigma coarse mixed with bentonite; a till from the surrounding area was also used for one of the covers. Field experiment conducted close to Val D'Or, using the same cover configurations, were conducted in parallel with those in the laboratory to correlate results.

To simulate wet and dry cycles, during the column tests, controlled quantities of water were added periodically to the columns over a 20 months period. Laboratory testing showed that results are in close agreement with numerical simulations. Oxygen flux and leachate analysis similarly confirmed the efficiency of the covers to reduce AMD. Comparisons made between reactive tailings in the field from an uncovered cell and column geochemistry has confirmed the beneficial role of covers.
Laboratory testing makes it possible to examine different options as well as the influence of different factors on the performance of covers.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS ..... **iv**

RÉSUMÉ ..... **v**

ABSTRACT ..... **vii**

TABLE DES MATIÈRE ..... **viii**

LISTE DES TABLEAUX ..... **xi**

LISTE DES FIGURES ..... **xiv**

LISTE DES ANNEXES ..... **xvii**

LISTE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS ..... **xviii**

INTRODUCTION **1**

CHAPITRE I REVUE DE LITTÉRATURE **4**

1.1 Réactions chimiques et le drainage minier acide 5

1.2 Processus géochimiques 6

1.2.1 Processus de transfert de masse 7

1.2.2 Processus contrôlant la cinétique 17

1.3 Modélisation géochimique 24

1.3.2 Modèles géochimiques existants 28

1.4 Prévention de la production d'acide par les barrières de recouvrement 36

1.4.1 Principe de barrière capillaire 36

1.4.2 Composantes des barrières de recouvrement 38

1.4.3 Comportement des barrières de recouvrement avec des rejets non réactifs 40

CHAPITRE II PROGRAMME EXPÉRIMENTAL ET MODÉLISATION 48

2.1 Propriétés des matériaux 49
2.1.1 Analyses minéralogiques 50
2.1.2 Résultats des analyses granulométriques et de compactage 51
2.1.3 Conductivité hydraulique 52

2.2 Configuration des essais en colonne 54
2.2.1 Colonnes de drainage 54
2.2.2 Colonnes témoins 55

2.3 Démarche expérimentale 56
2.3.1 Protocole expérimental 57
2.3.2 Simulations sur SEEP/W 58
2.3.3 Caractéristiques au démontage 59
2.3.4 Flux d'oxygène 60
2.3.5 Géochimie des résidus de terrains 61
2.3.6 Modélisation avec Minteqa2 62

CHAPITRE III CARACTÉRISTIQUES DES MATÉRIAUX 76

3.1 Caractéristiques hydriques des matériaux 77
3.1.1 Résultats des analyses numériques sur SEEP/W 77
3.1.2 Valeurs de saturation en fonction du temps 81
3.1.3 Caractéristiques au démontage 82
3.1.4 Discussion 83

3.2 Diffusion d'oxygène de l'oxygène 84
3.2.1 Coefficients de diffusion effectif 84
3.2.2 Calculs de flux d'oxygène 84

3.3 Dernières remarques 87

CHAPITRE IV GÉOCHIMIE ET HYDROGÉOCHIMIE 107

4.1 Caractéristiques des eaux de percolation 108
4.1.1 Évolution du pH, Eh et de la conductivité 108
4.1.2 Teneurs en métaux et sulfates 108
4.1.3 Flux d'oxygène estimés avec la méthode des sulfates 110
4.1.4 Modélisation avec Minteqa2 111

4.2 Caractéristiques des résidus sulfureux 111
4.2.1 Résultats des analyses géochimiques 111
4.2.2 Discussion 113

4.3 Géochimie des résidus miniers sur le terrain 114
4.3.1 Résultats des analyses minéralogiques des résidus de terrains 115
4.3.2 Résultats des analyses géochimiques des résidus 116
4.3.3 Résultats des analyses chimiques des solutions de rinçage 119
4.3.4 Discussion 121

CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS 162

RÉFÉRENCES 165

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1:Classification des principaux processus géochimiques (Perkins et al., 1995)..... 7
Tableau 1-2 : Sulfates de fer et autres sulfates solubles (Tiré de Alpers et al., 1994).... 13
Tableau 1-3 : Sulfates du groupe de l'alunite-jarosite et de la barite (Tiré de Blowes et Ptacek, 1994)..... 14
Tableau 1-4 :Principaux oxydes et hydroxydes de fer et d'aluminium présents comme minéraux secondaires (Alpers et al., 1994)..... 14
Tableau 1-5 : Principaux minéraux secondaires de carbonates (Alpers et al., 1994)..... 15
Tableau 1-6 : Résumé des caractéristiques des principales catégories de modèles géochimiques existants (Perkins et al., 1995)..... 30
Tableau 1-7 :Résumé des caractéristiques des codes basés sur des modèles d'équilibre thermodynamique (Perkins et al., 1995)..... 31
Tableau 1-8 : Résumé des principaux modèles de transfert de masse (Perkins et al., 1995)..... 32
Tableau 1-9 :Résumé de certains modèles de transfert de masse-écoulement (Perkins et al., 1995)..... 34
Tableau 1-10 : Identification de certains modèles de soutien (Perkins et al., 1995)..... 35
Tableau 1-11 :Résumé des principaux modèles empiriques et d'ingénierie (Perkins et al., 1995)..... 35
Tableau 2-1: Résultats de l'analyse minéralogique du résidu Sigma (Bernier, 1996).... 50
Tableau 2-2 :Résultats de l'analyse minéralogique du Till (Bernier, 1996)..... 50
Tableau 2-3 :Résultats de l'analyse minéralogique des résidus Manitou (Bernier, 1996)..... 51
Tableau 2-4 : Résultats des analyses granulométriques (Monzon, 1998) (voir aussi figure 2.1)..... 52

Tableau 2-5 : Résultats des essais de compactage (Monzon, 1998) 52
Tableau 2-6 : Résultats des essais de perméabilité au perméamètre (Monzon, 1998).... 53
Tableau 2-7 Caractéristiques de la colonne 1 (Monzon, 1998) 63
Tableau 2-8 Caractéristiques de la colonne 2 (Monzon, 1998) 64
Tableau 2-9 :Caractéristiques de la colonne 3 (Monzon, 1998) 65
Tableau 2-10 :Caractéristiques de la colonne 4 (Monzon, 1998) 66
Tableau 2-11 : Caractéristiques de la colonne 5 (Monzon, 1998) 67
Tableau 2-12 :Caractéristiques de la colonne 8 (Monzon, 1998) 68
Tableau 2-13 : Caractéristiques de la colonne 9 (Monzon, 1998) 69
Tableau 2-14 : Paramètres du modèle Van Genuchten utilisés pour déterminer les courbes de rétention d'eau et de conductivité hydraulique non saturée (tiré de Monzon, 1999)..... 70
Tableau 3-1 :Coefficients de diffusion estimés pour les colonnes 1 à 9 calculés à partir de l'équation de Millington et Schearer modifiée par Collin..... 85
Tableau 3-2 : Flux stationnaires calculés avec la solution analytique de Crank et la solution numérique de Pollute..... 86
Tableau 3-3 : Comparaison entre les différents flux stationnaires et l'atteinte du régime permanent de chacune des couvertures..... 86
Tableau 3-4: Caractéristiques des matériaux des colonnes..... 88
Tableau 4-1 : Résultats d'analyses chimiques de roche totale des résidus Manitou des colonnes 2, 4, 5 et 8 effectuées à l'école Polytechnique..... 112
Tableau 4-2 : Pourcentage de gypse lessivé, résiduel et initialement présent dans les colonnes 112
Tableau 4-3 : Caractéristiques principales les réactions cinétiques vs d'équilibre (d'après Morin et al., 1997)..... 113
Tableau 4-4: Analyse par diffraction au rayons-X des résidus miniers Manitou prélevés sur la cellule expérimentale non recouverte (d'après Bernier, 1998)..... 115

Tableau 4-5: Résultats d'analyses de la roche totale effectuées à l'École Polytechnique sur les résidus Manitou prélevés sur la cellule expérimentale non recouverte 116

Tableau 4-6 : Résultats d'analyses de la roche totale effectuées au CRM sur les résidus Manitou prélevés sur la cellule expérimentale non recouverte 117

Tableau 4-7 :Pourcentage de pyrite dans les résidus Manitou de la cellule expérimentale calculé d'après les teneurs en Soufre et en sulfates analysés au CRM..... 118

Tableau 4-8: Calculs des changements de masse pour le site d'échantillonnage 2 (d'après Bernier, 1998) 119

Tableau 4-9: Données physico-chimiques et résultats des analyses sur les solutions de rinçage effectuées au CRM. (Concentrations en mg/L) 120

Tableau 4-10 : Résultats des balance de charge et des indices de saturation calculés avec Minteqa2 121

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Développement des zones de pH durant les phases d'oxydation en présence des minéraux acidivores (Blowes et Ptacek, 1994) 9
Figure 1.2 : Courbes de rétention d'eau pour un sable et un silt (Tiré de Aubertin et al., 1997) 37
Figure 1.3 : Courbes de conductivité hydraulique non saturée pour un sable et un silt (tiré de Aubertin et al., 1997) 38
Figure 1.4: Profil d'une barrière de recouvrement (Tiré de Aubertin et Chapuis, 1991) 40
Figure 2.1 : Courbes granulométriques des matériaux étudiés (Monzon, 1998) 70
Figure 2.2 Colonnes de drainage 1 à 5 71
Figure 2.3 Colonnes de drainage 8 et 9 72
Figure 2.4 : Ancien et nouveau montage des colonnes 6 et 7 73
Figure 2.5 :Courbe de conductivité hydraulique des matériaux utilisés dans les colonnes (Monzon, 1998); valeurs déduites à partir du modèle de Mualem-Van Genuchten disponible dans RETC (Van Genuchten et al., 1991 74
Figure 2.6 :Courbes de teneur en eau volumique des matériaux utilisés dans les colonnes (Monzon, 1998). 74
Figure 2.7: Schéma des points d'échantillonnage sur la cellule de résidus miniers non recouverts au site Manitou 75
Figure 3.1 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 1 91
Figure 3.2 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 2 92
Figure 3.3 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 3 93
Figure 3.4 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 4 94
Figure 3.5 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 5 95
Figure 3.6 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 8 96
Figure 3.7 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 9 97

Figure 3.8 : Évolution du degré de saturation pour les différentes couches des couvertures telles que mesurées à l'aide des sondes RDT corrigées après calibration..... 98
Figure 3.9 : Variation du degré de saturation en fonction du temps pour les cycles 6-7-8 pour les différentes couches de la colonne 9..... 101
Figure 3.10 : Flux d'oxygène calculé avec la méthode de Crank pour m = 0 à 1000 et avec la solution numérique de Pollute pour les colonnes 1 à 9..... 102
Figure 3.11 :Comparaison entre les flux d'oxygène calculés avec la solution de Crank pour l'ensemble des colonnes 106
Figure 4.1: Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 1 123
Figure 4.2:Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 2 126
Figure 4.3 Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 3 129
Figure 4.4 : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 4 132
Figure 4.5 : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 5 135
Figure 4.6 : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 8 138
Figure 4.7 : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 9 141
Figure 4.8 : Corrélation entre les ions Mg^{2+} et SO_4^{2-} dans les eaux de percolation des colonnes 1, 2 et 8 pour le premier cycle correspondant à l'ouverture des valves. 144
Figure 4.9: Taux de dissolution calculés pour la colonne 1 144
Figure 4.10 : Taux de dissolution calculés pour la colonne 3 145
Figure 4.11 : Taux de dissolution calculés pour la colonne 5 145
Figure 4.12 : Taux de dissolution calculés pour la colonne 8 145
Figure 4.13 : Flux d'oxygène calculés avec la méthode des sulfates 146
Figure 4.14 : Indices de saturation des eaux de percolation des colonnes 3 et 5 148
Figure 4.15 :Résultats de la qualité géochimique de l'eau de percolation des colonnes 3 et 5 dans le diagramme Eh-pH des champs de stabilité du système Fe-H_2O pour les cycles 1, 5, 10, 22 et 25. 149

Figure 4.16 : Concentration des ions SO_4 et Ca en fonction du pH lors de la dissolution d'équilibre du gypse 150
Figure 4.17 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, de soufre total et teneur en métaux en fonction de la profondeur pour le résidu Manitou de la colonne 2 151
Figure 4.18 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, de soufre total et teneur en métaux en fonction de la profondeur pour le résidu Manitou de la colonne 4 152
Figure 4.19: Concentration des oxydes d'éléments majeurs, de soufre total et teneur en métaux en fonction de la profondeur pour le résidu Manitou de la colonne 5 153
Figure 4.20 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, de soufre total et teneur en métaux en fonction de la profondeur pour le résidu Manitou de la colonne 8 154
Figure 4.21 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, des sulfures 155
Figure 4.22 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, des sulfures 156
Figure 4.23 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, des sulfures 157
Figure 4.24 : Diagrammes montrant les changements de masse calculés au..... 158
Figure 4.25 : Teneur en métaux en fonction de la profondeur dans la 159
Figure 4.26 Teneur en métaux en fonction de la profondeur dans la 160
Figure 4.27 : Teneur en métaux en fonction de la profondeur dans la 161

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE I Survol des modèles géochimiques 179

ANNEXE II Résultats des essais de calibration des sondes RDT 193

ANNEXE III Analyses par DRX et à la microsonde électronique (spectres EDS). 197

ANNEXE IV Données expérimentales 207

LISTE DES SYMBOLES ET ABRÉVIATIONS

A	Constante
AEV	Pression d'entrée d'air [L]
a_i	Coefficient d'activité
B	Constante
C	Concentration d'oxygène [ML^{-3}]
C_L	Concentration d'oxygène à l'interface couverture résidus [ML^{-3}]
C(t)	Concentration d'oxygène dans la phase gazeuse [ML^{-3}]
C_U	Coefficient d'uniformité = D_{60}/D_{10}
D_{10}	Diamètre des grains pour avoir 10 % de la masse avec un plus petit diamètre [L]
D_{60}	Diamètre des grains pour avoir 60 % de la masse avec un plus petit diamètre [L]
D_e	Coefficient de diffusion effectif [$L^{-2}T^{-1}$]
D_a^*	Coefficient de diffusion de l'oxygène dans l'air [$L^{-2}T^{-1}$]
D_w^*	Coefficient de diffusion de l'oxygène dans l'eau [$L^{-2}T^{-1}$]
D_a^*	Coefficient de diffusion de l'oxygène dans l'air [$L^{-2}T^{-1}$]
DMA	Drainage minier acide
DRS	Diffraction des Rayons X
D_r	Densité relative des grains solides
D_w^*	Coefficient de diffusion de l'oxygène dans l'eau [$L^{-2}T^{-1}$]
e	Indice des vides
EDS	Energy dispersive spectroscopy
F	Flux d'oxygène [$ML^{-2}T^{-1}$]

H	Constante de solubilité d'un gaz dans l'eau (constante de la loi de Henry)
H_b	Épaisseur de la couche capillaire [L]
I	Force ionique
P.A.I	Indice du produit de solubilité de l'ion
I.S.	Indice de saturation
Kps	Constante du produit de solubilité
k_r	Constante de réaction cinétique de premier ordre [T^{-1}]
L	Longueur [L]
[L]	Matrice des coordonnées des éléments
m_i	Concentration molale
n	Porosité
q	débit spécifique [LT^{-1}]
RDT	Réflectométrie dans le domaine du temps
Sr	Degré de saturation
T	Température en degré Celcius
V-G	Modèle RETC de van Genuchten et al. (1991)
w_{opt}	Teneur en eau à l'optimum Proctor
z	cote prise positivement vers le bas du sol à partir de la surface du sol [L]
z_i	Charge électrique d'un ion
γ_d	Poids volumique sec [$ML^{-2}T^{-2}$]
γ_w	Poids volumique de l'eau [$ML^{-2}T^{-2}$]
γ_i	Coefficient d'activité molal
η	Porosité corrigée
ψ_a	Pression d'entrée d'air ("Air Entry Value") [$ML^{-1}T^{-2}$]
ψ_x	Succion au point x d'une courbe caractéristique de succion schématisée [$ML^{-1}T^{-2}$]

ψ_r	Pression (ou succion) résiduelle [$ML^{-1}T^{-2}$]
θ_a	Teneur en air volumique du milieu poreux (V_{air}/V_{total})
θ_w	Teneur en eau volumique
θ_r	Teneur en eau résiduelle

INTRODUCTION

L'exploitation minière dans plusieurs pays est responsable de la présence de nombreux sites d'entreposage où sont stockés des résidus miniers (rejets de concentrateur). Au Québec seulement, on dénombre 103 sites d'accumulation de résidus miniers encore utilisés, dont le quart seraient potentiellement dangereux pour l'environnement (Marcotte, 1994). En effet, les rejets qui contiennent des composés sulfureux, une fois exposés à l'oxygène et l'eau sont générateurs de drainage minier acide (DMA) susceptible de causer des dommages aux eaux de surface et souterraines.

La cause principale des problèmes environnementaux reliés aux résidus miniers résulte de l'oxydation de minéraux sulfureux comme la pyrite (FeS_2), pyrrothite ($Fe_{x-1}S_2$), sphalérite (ZnS) et la galène (PbS). L'acidification de ces derniers provoque alors la mise en solution de divers métaux lourds (Cu, Zn, Pb, Hg, As) dans les eaux de ruissellement.

Des méthodes de contrôle qui consistent à prévenir la génération d'eaux acides ont été développées. Parmi celles-ci, les barrières de recouvrement sont considérées depuis quelques années pour réduire le flux d'oxygène à l'intérieur des résidus miniers (Akindunni et al., 1991; Aubertin et Chapuis, 1991; Collin, 1987; Magnusson et Rasmuson, 1983; Nicholson et al., 1989; SRK, 1989).

Les barrières utilisées peuvent être composées d'un couvert aqueux (déposition des résidus en fond de lac ou inondation du parc à résidus) qui limite la migration de l'oxygène vers les rejets, de matériaux synthétiques et/ou de matériaux meubles d'origine naturelle (géologique). L'utilisation de matériaux géologiques, qui semble actuellement être l'alternative la plus répandue, tant pour des raisons sociales,

environnementales et légales que pour des raisons techniques et économiques, vise principalement à limiter l'apport d'oxygène par le maintien d'une couche de matériau fin placée entre deux couches à granulométrie plus grossière. Cette configuration permet à la couche de matériau fin, ou couche à rétention capillaire, de demeurer saturée pendant longtemps, même lorsque située bien au-dessus de la nappe phréatique. Toutefois, les difficultés et les coûts d'approvisionnement, de transport et de mise en place inhérents à ces matériaux, jumelés à leur vulnérabilité face aux effets climatiques ont mené certains auteurs à explorer d'autres alternatives. Aubertin et Chapuis (1990, 1991) ont proposé l'utilisation de rejets miniers non réactifs comme matériaux de recouvrement. En étant déjà présents à proximité, ces derniers représentent un avantage économique non négligeable face aux matériaux meubles d'origine naturelle.

Aubertin et al., 1995 et Aachib (1997), dans le cadre d'essais en laboratoire sur des couvertures multicouches, ont montré qu'il était possible de limiter le DMA en utilisant des barrières de recouvrement construites à partir de matériaux grossiers (sable par exemple) et de matériaux fins (rejets de concentrateur non réactifs) comme couche capillaire.

Le présent projet vise à tester et à comparer l'efficacité de différentes configurations de barrière de recouvrement construites à partir de matériaux meubles d'origine naturelle ou de rejets de concentrateur non réactifs. Pour ce faire, des essais ont été réalisés dans des colonnes de contrôle.

Les informations obtenues lors de ces expériences se sont ajoutées à nos connaissances actuelles sur le comportement hydrique, hydrogéotechnique et sur les mécanismes de diffusion des barrières de recouvrement. Ce projet visait également à mieux décrire et mieux comprendre les processus géochimiques propres aux résidus miniers sulfurés à faible teneur en sulfures.

Parallèlement aux essais en colonnes, des essais réalisés sur le terrain ont été entrepris, dans le but de valider, dans un cadre plus réaliste et plus représentatif, les essais de laboratoire. Bien que ces recherches fassent l'objet d'un projet séparé (Aubertin et al., 1997, 1999), certains résultats obtenus sur le terrain seront présentés brièvement ici.

Suite à l'introduction, le chapitre 1 présente les réactions chimiques propres au DMA ainsi qu'une revue de littérature sur les différents processus géochimiques reliés à l'oxydation des résidus miniers, suivie d'une présentation des différents modèles géochimiques applicables au phénomène du DMA.

Le chapitre 2 décrit le programme expérimental suivi tout au long du projet. Les propriétés des matériaux utilisés dans les barrières de recouvrement, le montage expérimental ainsi que le protocole suivi au cours des essais de laboratoire sont présentés.

Au chapitre 3, le comportement hydrique des matériaux utilisés dans les couvertures est examiné, suivi d'une section portant sur la diffusion gazeuse.

Le chapitre 4 aborde l'aspect géochimique et hydrogéochimique des matériaux de recouvrement ainsi que des eaux de percolation des colonnes. Les caractéristiques des résidus oxydés provenant de la cellule expérimentale non recouverte de terrain sont également présentées.

Enfin, le chapitre 5 traite de l'hydrogéochimie des eaux de percolation des couvertures ainsi que de la géochimie des matériaux des couvertures. Certains résultats des analyses géochimiques des résidus miniers non recouverts provenant de la cellule expérimentale de terrain sont également présentés.

Une conclusion et des recommandations terminent enfin ce mémoire.

CHAPITRE I

REVUE DE LITTÉRATURE

La revue de littérature présentée dans ce chapitre résume tout d'abord les réactions chimiques se rapportant aux résidus miniers pour ensuite s'intéresser aux processus géochimiques des composés sulfureux en milieu non saturé. Elle explore ensuite les différents modèles géochimiques développés dans le but de comprendre et de prévoir les interactions entre les différents processus. Le contrôle de la production d'acide par l'utilisation de barrières de recouvrement pour limiter le DMA est ensuite décrit.

1.1 RÉACTIONS CHIMIQUES ET LE DRAINAGE MINIER ACIDE

Le processus chimique à la base de la formation du DMA dans les résidus réactifs est l'oxydation des sulfures lorsque ceux-ci sont en contact avec l'oxygène et l'eau. On présente généralement les équations chimiques de production de DMA avec la pyrite puisque cette dernière est le minéral sulfureux le plus abondant. L'oxydation de la pyrite, largement traitée dans la littérature (Stumm et Morgan, 1981 ; Nordstrom, 1982 ; SRK, 1989 ; Hutchison et Ellison, 1992; Aachib et al., 1993 ; Blowes et Ptacek, 1994 ; Aubertin et al., 1995; Perkins et al., 1995), se présente de la façon suivante.

La première réaction importante est l'oxydation du minéral donnant du fer ferreux, du sulfate et de l'hydrogène dissous (H^+) (oxydation directe):

$$FeS_2 + 7/2O_2 + H_2O \rightarrow Fe^{2+} + 2H^+ + 2SO_4^{2-} \quad (1.1)$$

Les ions dissous Fe^{2+}, SO_4^{2-} et H^+ augmentent le contenu des matières en solution et augmentent le pH de l'eau. Lorsque le potentiel d'oxydation est suffisamment élevé, le Fe^{2+} s'oxyde en Fe^{3+} selon l'équation suivante :

$$Fe^{2+} + 1/4O_2 + H^+ \rightarrow Fe^{3+} + 1/2H_2O \quad (1.2)$$

De plus, lorsque le pH est encore relativement élevé, (≥3.5 environ), le Fe^{3+} précipite sous forme d'hydroxyde ferrique ($Fe(OH)_{3(s)}$), et d'autres ions H^+ sont libérés, ce qui acidifie davantage le milieu :

$$Fe^{3+} + 3H_2O \rightarrow Fe(OH)_{3(s)} + 3H^+ \quad (1.3)$$

À pH bas (pH ≤ 3.5), une quantité significative de Fe^{3+} demeure en solution et réagit avec la pyrite selon la réaction suivante (oxydation indirecte):

$$FeS_2 + 14Fe^{3+} + 8H_2O \rightarrow 15Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 16H^+ \quad (1.4)$$

La réaction d'oxydation de la pyrite par le Fe^{3+} est beaucoup plus rapide qu'avec le Fe^{2+} (Stumm et Morgan, 1981 ; Blowes, 1994).

La réaction globale (somme des équations (1.1), (1.2) et (1.3)) peut aussi s'écrire de la façon suivante :

$$FeS_2 + 15/4O_2 + 7/2H_2O \rightarrow Fe(OH)_3 + 2H_2SO_4 \quad (1.5)$$

D'après le guide technique préliminaire sur le drainage minier acide (SRK, 1989), les principaux facteurs qui influencent le taux de production d'acide sont:

- le pH ;
- la température ;
- la quantité d'oxygène dans la phase gazeuse (si la saturation est incomplète) ;
- la concentration d'oxygène en phase aqueuse ;
- le degré de saturation en eau ;
- l'activité chimique de Fe^{3+};
- la surface de métal exposé ;
- la granulométrie ;
- l'écoulement de l'eau;
- la vitesse de réaction (cinétique).

1.2 PROCESSUS GÉOCHIMIQUES

Le tableau 1-1 classifie les différents processus géochimiques en deux grandes catégories (Perkins et al., 1995) : les mécanismes de transfert de masse et ceux qui contrôlent la cinétique des réactions géochimiques. La production du DMA qui résulte

de l'oxydation de la pyrite dans la zone non saturée et la dissolution de la calcite constituent quelques-uns des processus de transfert de masse qui se produisent à l'interface entre les solides, les gaz et la solution. La cinétique de ces réactions, quant à elle, peut être contrôlée par le transport de l'oxygène à travers ces différentes phases.

Vu leur rôle important dans le développement du DMA, seuls les processus de transfert de masse comprenant la dissolution et la précipitation ainsi que la diffusion de l'oxygène qui contrôle la cinétique seront abordés ici.

Tableau 1-1:Classification des principaux processus géochimiques (Perkins et al., 1995)

Processus de transfert de masse	Processus contrôlant la cinétique	Facteurs modifiant la cinétique
Dissolution	Diffusion	Catalyseurs -bactéries
Précipitation	Nucléation	-abiotique
Échange d'ion	Réaction de surface	Température
Désintégration radioactive	Adsorption	Pression

1.2.1 Processus de transfert de masse

La précipitation et la dissolution des minéraux sont parmi les processus de transfert de masse les plus importants. Les différentes phases de dissolution de minéraux acidivores (qui consomment l'acidité) en contact avec les minéraux sulfureux ainsi que les phases de précipitation qui en résultent sont décrites dans la section suivante.

1.2.1.1 Dissolution des minéraux

La présence ou non de minéraux acidivores dans l'environnement immédiat joue un rôle important sur l'ampleur du DMA. Ces minéraux acidivores agissent comme bases solides qui se dissolvent et neutralisent l'acide.

Ces bases solides sont principalement des carbonates, hydroxydes et silicates d'aluminium (Blowes et Ptacek, 1994). Contrairement à l'oxydation des sulfures, les réactions de neutralisation sont indépendantes de la présence d'oxygène. Les réactions de neutralisation peuvent se produire à n'importe quel endroit à travers les résidus et sous la nappe phréatique. Elles ne sont limitées que par l'apport de minéraux acidivores. Alors que pour les réactions qui consomment des ions H^-, le pH est bas dans la zone oxydante près de la surface et augmente en profondeur (figure 1.1). Conséquemment, l'eau présente à la base des résidus miniers peut avoir un pH neutre (seulement si beaucoup de carbonates sont présents) mais peut contenir des concentrations élevées de Fe^{2-}, en sulfates et autres produits issus de l'oxydation en surface (Blowes et Ptacek, 1994).

Dissolution des carbonates

Les carbonates se caractérisent tous par le groupe CO_3^{2-}. Ce type de minéraux est divisé en groupes dont les plus importants sont ceux de la calcite, de la dolomite et de l'aragonite. La dissolution des carbonates est différente selon que l'on est dans un système fermé ou un système ouvert, c'est-à-dire en présence ou non de la phase gazeuse. Cette dernière aura un impact sur l'équilibre des carbonates en solution. L'effet des carbonates dans la zone non saturée (où il y a présence de gaz) d'un parc à résidus miniers (système ouvert) sera très différent de celui des carbonates situés sous la nappe phréatique (système fermé). La différence entre les deux est la présence du CO_2 dans le système ouvert (Bussière et al., 1998). Ici, seul le cas du système fermé sera traité puisqu'il s'applique à notre étude. En système fermé, selon le pH et l'acidité de la solution, 2 types de dissolution des carbonates sont observés (Strömberg, 1997) :

$$CaCO_3 + H^+ \rightarrow Ca^{2+} + HCO^-_3 \quad (pH \geq 6.3) \qquad (1.6)$$

$$CaCO_3 + 2H^+ \rightarrow Ca^{2+} + CO_2 + H_2O \quad (pH < 6.3) \qquad (1.7)$$

La réaction consomme des minéraux carbonatés et des ions H^+, libère des cations dissous dans l'eau interstitielle et augmente l'alcalinité de l'eau. En général, la calcite ($CaCO_3$) est neutralisée en premier, suivi de la dolomite ($CaMg(CO_3)_2$), l'ankérite ($Ca(Fe,Mg)(CO_3)_2$) et la sidérite ($FeCO_3$) (Blowes et Ptacek, 1994). La dissolution de la calcite se fait généralement rapidement et le taux de dissolution se fait de façon à maintenir un pH entre 6.5 et 7.5 et à maintenir des conditions d'équilibre pour la calcite. On estime que le processus de dissolution de la calcite à faible pH (pH<4) est contrôlé par la diffusion alors qu'à des pH supérieurs, le processus serait contrôlé par des réactions de surface (Berner, 1978).

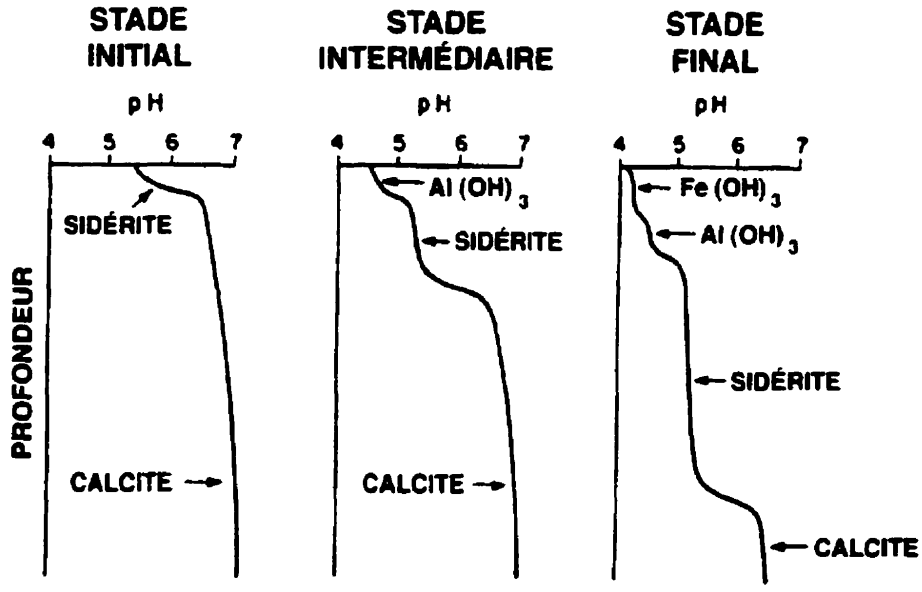


Figure 1.1 : Développement des zones de pH durant les phases d'oxydation en présence des minéraux acidivores (Blowes et Ptacek, 1994)

Dissolution des hydroxydes

Lorsque la production d'acide augmente et que la réserve en carbonates s'appauvrit, le pH diminue jusqu'à ce que la dissolution d'hydroxydes et d'oxydes soit favorisée. Par exemple, la dissolution de la gibbsite ($Al(OH)_3$) fait hausser le pH de l'eau interstitielle autour de 4.5 (Blowes et Ptacek, 1994) :

$$2Al(OH)_3 + 3H_2SO_4 \rightarrow 2Al^{3-} + 3SO_4^{2-} + 9/2H_2O \qquad (1.8)$$

Une fois la gibbsite complètement consommée, le pH de la solution diminue, favorisant ainsi la dissolution de la ferrihydrite ($Fe(OH)_3$) (Perkins et al., 1995):

$$2Fe(OH)_3 + 3H_2SO_4 \rightarrow 2Fe^{3-} + 3SO_4^{2-} + 9/2H_2O \qquad (1.9)$$

Cette réaction est stable à un pH de l'ordre de 4.2 environ.

Dissolution des silicates

L'unité cristalline de base des silicates se caractérise par un atome de silicium entouré de 4 atomes d'oxygène placés sous la forme d'un tétraèdre régulier. Entre les polyèdres ou tétraèdres des orthosilicates, se retrouvent des cations de différentes nature ; Na^{-}, K^{-}, Ca^{2-}, Mg^{2-}, Fe^{2-} etc...

La dissolution des aluminosilicates peut se faire de façon congruente (dissolution complète en composés solubles) ou incongruente, où le minéral se dissout pour former à partir des produits de la réaction, un minéral secondaire. Ce dernier type de dissolution est le plus fréquent chez les silicates.

Lorsque le pH se situe entre 2 et 4, et que l'apport en carbonates et en hydroxydes est épuisé, la neutralisation par les silicates débute. Par exemple, l'albite neutralise l'acide selon la réaction suivante (Perkins et al., 1995):

$$NaAlSi_3O_8 + 2H_2SO_4 \rightarrow Na^{-} + Al^{3-} + 3SiO_2\,(aq) + 2SO_4^{2-} + 2H_2O \qquad (1.10)$$

Une réaction similaire se produit avec l'anorthite (Perkins et al., 1995) :

$$CaAl_2Si_2O_8 + 4H_2SO_4 \rightarrow Ca^{2+} + 2Al^{3+} + 2SiO_2(aq) + 4SO_42- + 4H_2O \qquad (1.11)$$

Des phyllosilicates comme la biotite, la muscovite et les minéraux argileux ont également un certain pouvoir de neutralisation. Ainsi, la kaolinite ($Al_2Si_2O_5(OH)_4$) peut neutraliser l'acide selon la réaction suivante (Perkins et al., 1995) :

$$Al_2Si_2O_5(OH)_4 + 3H_2SO_4 \rightarrow 2Al^{3-} + + 2SiO_2\,(aq) + 3SO_4^{2-} + 5H_2O \qquad (1.12)$$

Contrairement aux carbonates, la dissolution des silicates est contrôlée par les réactions de surface uniquement.

1.2.1.2 Précipitation de minéraux secondaires

La neutralisation s'accompagne généralement de l'hydrolyse des ions métalliques en solution et par leur précipitation. Lorsque le produit de solubilité des ions dissous en solution excède l'état d'équilibre et atteint un état de saturation ou de sursaturation, il y a précipitation de minéraux secondaires. Il existe deux types de précipitation de minéraux secondaires ; (1) la précipitation d'oxyhydroxydes résultant de l'hydrolyse, qui affecte la concentration en ions H^+ dans la solution et (2), la précipitation de sels, ne consommant ou ne produisant pas d'ions H^+ (Perkins et al., 1995).

Les divers minéraux secondaires ont des solubilités différentes. On peut les classer par groupes selon leur degré de solubilité. Ces groupes sont, du plus soluble au moins soluble : les sulfates solubles, les sulfates insolubles, les oxydes et hydroxydes et les carbonates. Leur nature dépend de la composition, de l'abondance et des propriétés chimiques de la solution incluant le pH, le Eh des solutés.

Détermination du produit de solubilité

La précipitation et la dissolution de minéraux secondaires limite la concentration aqueuse maximale de métaux dissous en solution. On peut représenter cette approche à l'équilibre par l'indice de saturation (*I.S.*) (Nordstrom 1982 ; Alpers et al., 1994) :

$$I.S. = log\frac{P.A.I.}{K_{sp}} \qquad (1.13)$$

où $P.A.I$ est le produit d'activité de l'ion calculé à partir des concentrations de la solution, et K_{sp} est la constante du produit de solubilité à une température donnée. Un indice de saturation inférieur à zéro indique que l'eau est sous-saturée par rapport à la phase minérale, un *I.S.* supérieur à zéro indique une sursaturation et un *I.S.* de zéro exprime des conditions d'équilibre.

Sulfates solubles

Les sulfates de fer sous forme oxydée et autres sulfates solubles présentés au tableau 1-2 sont parmi les minéraux secondaires les plus abondants.

À des valeurs de pH inférieur à 4, le fer ferrique est l'espèce dominante pour l'oxydation de la pyrite (Alpers et al.,1994) (équation 1.4). La mélantérite ($FeSO_4 7H_2O$)

est le minéral le plus commun formé par la combinaison du Fe^{3+} et de l'ion SO_4^{2-} (Perkins et al., 1995) :

$$FeS_2 + 7/2O_2 + 8H_2O \rightarrow FeSO_4 7H_2O + H_2SO_4 \quad (1.14)$$

Sa mise en solution fait diminuer le pH autour de 3.

Tableau 1-2 : Sulfates de fer et autres sulfates solubles (Tiré de Alpers et al., 1994)

Sulfates de fer solubles	**Formule chimique**	Sulfates solubles	**Formule chimique**
mélantérite	$FeSO_4 \bullet 7H_2O$	epsomite	$MgSO_4 \bullet 7H_2O$
ferrohexahydrite	$FeSO_4 \bullet 6H_2O$	bianchite	$ZnSO_4 \bullet 6H_2O$
siderotil	$FeSO_4 \bullet 5H_2O$	gypse	$CaSO_4 \bullet 2H_2O$
rozenite	FeSO4•H2O	anhydrite	$CaSO_4$
rhomboclase	$HFe(SO_4)_2 \bullet 4H_2O$	mirabilite	$Na_2(SO_4) \bullet 10H_2O$
kornelite	$Fe_2(SO_4)_3 \bullet 7H_2O$	thenardite	$Na_2(SO_4)$

Sulfates peu solubles

Le groupe de l'alunite-jarosite a pour forme générale $AB_3^{3+}(SO_4)2(OH)_6$, où le site A est rempli d'ions monovalents K^+, Na^+, H_3O^+, NH_4^+, Ag^+ ou Pb^+, et le site B rempli de cation trivalents Fe^{3+} (jarosite) ou Al^{3+} (alunite). On les retrouve dans les zones météorisées de gisements de sulfures. Généralement, les eaux sont sursaturées en jarosite et alunite. Ainsi, la neutralisation continue de l'acide par la gibbsite et la ferrihydrite (réactions 1.8 et 1.9) produit une augmentation des concentrations des ions Al^{3+}, Fe^{3+} et SO_4^{2-} en solution et pourrait causer la précipitation de minéraux secondaires tels la jarosite et l'alunite (Perkins et al., 1995). Les principaux minéraux de ce groupe sont présentés au tableau 1-3.

Tableau 1-3 : Sulfates du groupe de l'alunite-jarosite et de la barite (Tiré de Blowes et Ptacek, 1994)

Sulfates peu solubles	Formule chimique	Sulfates peu solubles	Formule chimique
Groupe de l'alunite		**Groupe de la barite**	
jarosite	$Kfe_3(SO_4)_2OH)_6$	celestite	$SrSO_4$
natrojarosite	$NaFe_3(SO_4)_2(OH)_6$	anglesite	$PbSO_4$
alunite	$KAl_3(SO_4)_2(OH)_6$	barite	$BaSO_4$

Tableau 1-4 :Principaux oxydes et hydroxydes de fer et d'aluminium présents comme minéraux secondaires (Alpers et al., 1994)

Oxyde/hydroxyde	Formule chimique
hématite	Fe_2O_3
magnétite	$FeOFe_2O_3$
goethite	FeO(OH)
lépidocrocite	FeO(OH)
ferrihydrite	$Fe_5HO_84H_2O$
corindon	Al_2O_3
gibbsite	$Al(OH)_3$

Oxydes et hydroxydes de fer et d'aluminium

De nombreuses similarités existent entre la géochimie du fer ferrique et de l'aluminium. On observe notamment une charge trivalente et des minéraux de même structure et de composition similaire. Une différence importante réside toutefois dans le pH auquel la réaction d'hydrolyse se produit. En effet, la réaction d'hydrolyse de l'aluminium se produit à un pH de 5 alors qu'un pH de 2.2 est nécessaire pour hydrolyser le fer (Alpers et al., 1994). Le tableau 1-4 présente les principaux oxydes et hydroxydes de fer et d'aluminium dénombrés comme minéraux secondaires.

Carbonates

La combinaison d'ions bicarbonate aux ions Fe^{2+} libérés par l'oxydation de la pyrite (réaction 1.5) peut résulter en une saturation ou une sursaturation de carbonates ayant des solubilités plus faibles que la calcite. Par exemple, la précipitation de la sidérite, s'il y suffisamment de Fe^{2+} en solution, peut s'effectuer selon la réaction suivante (Perkins et al., 1995) :

$$Fe^{2+} + HCO_3^- \rightarrow FeCO_3(s) + H^+ \qquad (1.15)$$

La précipitation de la sidérite diminue l'efficacité de la neutralisation par la dissolution de la calcite en libérant des ions H^+ dans la solution (Blowes et Ptacek, 1994). Parmi les carbonates présentés au tableau 1-5, la calcite, la sidérite, la dolomite et l'ankérite sont les plus fréquemment retrouvés dans les résidus miniers.

Tableau 1-5 : Principaux minéraux secondaires de carbonates (Alpers et al., 1994)

Carbonates	Formule chimique
Calcite	$CaCO_3$
Magnésite	$MgCO_3$
Sidérite	$FeCO_3$
Dolomite	$CaMg(CO_3)_2$
Ankérite	$Ca(Fe,Mg)(CO_3)_2$
Aragonite	$CaCO_3$
Strontianite	$SrCO_3$
Cérussite	$PbCO_3$

1.2.1.3 Effets de la précipitation des minéraux secondaires sur le potentiel de neutralisation

La réaction combinée d'oxydation de la pyrite et de la dissolution de la calcite se présente comme suit (Perkins et al., 1995) :

$$FeS_2 + 7/2O_2 + H_2O + 2CaCO_3 \rightarrow Fe^{2+} + 2Ca^{2+} + 2HCO_3^- + 2SO_4^{2-} \quad (1.16)$$

Lorsque la sidérite est formée comme minéral secondaire, on obtient la relation suivante (Perkins et al., 1995) :

$$FeS_2 + 7/2O_2 + H_2O + 3CaCO_3 \rightarrow FeCO_3 + 3Ca^{2+} + 2HCO_3^- + 2SO_4^{2-} \quad (1.17)$$

En comparant les équations (1.16) et (1.17), on remarque que la précipitation de la sidérite augmente de 50% la quantité de calcite nécessaire pour neutraliser l'acide sulfurique produite par la dissolution de la pyrite oxydée. Dans le cas où la ferrihydrite précipiterait (1.18), la quantité de calcite requise pour neutraliser l'acide augmenterait de 100% (Perkins et al., 1995) :

$$FeS_2 + 9/2O_2 + 4CaCO_3 + 2H_2O \rightarrow Fe(OH)_3 + Ca^{2+} + 4HCO_3^- + 2SO_4^{2-} \quad (1.18)$$

Ainsi, la nature du minéral secondaire influence le potentiel d'acidité nette (Perkins et al., 1995). Il est à noter que dans les réactions (1.10) et (1.11), la présence de Ca^{2+} et de SO_4^{2-} en solution peut éventuellement mener à la précipitation du gypse, qui n'a aucune influence sur le potentiel d'acidité.

1.2.2 Processus contrôlant la cinétique

Tel que mentionné précédemment, l'oxygène est nécessaire à l'oxydation des minéraux sulfurés. Le transport de l'oxygène par diffusion, processus géochimique important qui contrôle la cinétique de réaction d'oxydation sera décrit plus en détail dans cette section.

1.2.2.1 Diffusion

Le mécanisme de transport dominant de l'oxygène à travers un milieu dont les pores sont remplis d'air est la diffusion. Elle résulte de l'effet des gradients de pression partielle entre le gaz de l'atmosphère et le gaz compris dans les pores.

Dans les matériaux fins, tels les résidus miniers ou les barrières capillaires, le transport de l'oxygène se fait principalement par diffusion moléculaire (Collin, 1987; Nicholson et al., 1989). Dans les matériaux partiellement saturés, l'oxygène diffuse à la fois dans la phase gazeuse et dans la phase aqueuse occupant les espaces interstitiels.

Pour un milieu non réactif, en supposant la phase air immobile, le flux d'oxygène est donné par la première loi de Fick (Hillel, 1971; Freeze et Cherry, 1979, Nicholson et al, 1989).

$$F = -D_e \frac{\partial C}{\partial z} \tag{1.19}$$

où :

F: flux diffusif de l'oxygène (ML^2T^{-1})

D_e: coefficient de diffusion effectif (L^2T^{-1})

C: concentration d'oxygène (ML^{-3})

z : distance (L)

Le signe négatif signifie que l'oxygène se déplace d'une région à forte concentration vers une région à concentration plus faible. La première loi de Fick implique que le taux de transfert d'une substance qui diffuse à travers une unité de surface est proportionnel à son gradient de concentration. Le rapport de proportionnalité entre le flux diffusif et le gradient de concentration est appelé le coefficient de diffusion effectif de l'élément qui diffuse, noté D_e.

Le flux d'oxygène est une mesure de la quantité d'oxygène par unité de surface qui se déplace à travers un matériau. Il contrôle le taux de production d'acide théorique, c'est-à-dire la quantité d'acide qui serait produite si tout l'oxygène qui entre dans les résidus était consommé par l'oxydation de la pyrite. On peut relier le flux d'oxygène au taux de production d'acide généré par la réaction d'oxydation de la pyrite par la relation (1.5). Cette réaction implique que 3.75 moles d'oxygène oxydent 1 mole de pyrite (FeS_2) en présence d'eau et produisent 2 moles d'acide sulfurique (H_2SO_4).

Par conséquent, le flux d'oxygène est un paramètre critique lorsqu'on compare la production d'acide. Il est contrôlé par le coefficient D_e. Une diminution du coefficient entraîne une diminution du flux d'oxygène.

En régime transitoire (qui implique une variation de la concentration en fonction du temps) il est possible de déterminer le flux d'oxygène en combinant l'équation 1.19 à la seconde loi de Fick (Freeze et Cherry, 1979):

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \qquad (1.20)$$

En diffusant à travers les résidus réactifs, l'oxygène sera consommé par la pyrite selon une réaction cinétique de premier ordre (Nicholson et al., 1989). En combinant le terme cinétique avec la deuxième loi de Fick, on obtient :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - k_r c \qquad (1.21)$$

où k_r est la constante de réaction cinétique de premier ordre (T^{-1}). Pour un taux d'oxydation bactérienne de la pyrite moyen à élevé, sa valeur correspond à 300 an^{-1} (Nicholson et al., 1989).

La fraction non saturée d'eau de porosité joue un rôle important dans la diffusivité de l'oxygène. Elle représente l'espace disponible dans le matériau poreux pour le transport des gaz par diffusion.

D'autres facteurs, comme la forme des particules, particulièrement en milieu sec, jouent sur la vitesse de diffusion (Currie, 1960).

Puisque la diffusion se fait plus facilement à travers les pores remplis d'air, le degré de saturation en eau influence directement le coefficient de diffusion. Pour l'oxygène, le coefficient de diffusion dans l'eau est d'environ 10^4 fois plus faible que dans l'air ($D_a^o \cong 1.8 \times 10^{-5}$ m^2/s et $D_w^o \cong 2.5 \times 10^{-9}$ m^2/s pour l'air et l'eau respectivement). La diffusion de l'oxygène à travers l'eau interstitielle devient importante lorsque le degré de saturation est élevé (supérieur à environ 90%, Aubertin et al., 1993, 1995). A faible degré de saturation, l'eau peut être considérée comme un obstacle à la diffusion et D_e est souvent remplacé par l'équation suivante (Aubertin et al., 1998, 1999):

$$D_e = \theta_a D_a^* \qquad (1.22)$$

où θ_a est la porosité à l'air du milieu et s'exprime comme suit :

$$\theta_a = n(1 - S_r) \qquad (1.23)$$

où n est la porosité totale et S_r est le degré de saturation et $D_a^* = D_e/\theta_a$.

Lorsque le degré de saturation est supérieur à 90% environ, le coefficient de diffusion est influencé par la teneur volumique en eau du milieu ($\theta_w = n - \theta_a$) et s'exprime comme suit (Aubertin et al., 1998):

$$D_e = D_a + D_w = \theta_a D_a^* + \theta_w D_w^* \tag{1.24}$$

ici, D_a^* et D_w^* représentent la composante de diffusion dans l'air et l'eau respectivement.

L'équation de Millington et Shearer modifiée par Collin et Rasmuson (1988) est souvent utilisée pour déterminer les valeurs des paramètres D_a et D_w, on peut alors écrire :

$$D_a = D_a^\circ (1 - S_r)^2 \left[n(1 - S_r) \right]^{2x} \tag{1.25a}$$

ou

$$D_a = D_a^\circ \frac{1}{n^2} \theta_a^{\,2(1-x)} \tag{1.25b}$$

$$D_w = H D_w^\circ S_r^{\,2} (nS_r)^{2y} \tag{1.26a}$$

ou

$$D_w = H D_w^\circ \frac{1}{n^2} \theta_w^{\,2(1-y)} \tag{1.26b}$$

Les valeurs de x et y s'obtiennent par :

$$\left[n(1 - S_r) \right]^{2x} + \left[1 - n(1 - S_r) \right]^{x} = 1 \tag{1.27}$$

$$(nS_r)^{2y} + (1 - nS_r)^y = 1 \qquad (1.28)$$

Pour des sols, x et y se situent entre 0.5 et 0.75.

Solution à l'équation de diffusion pour le régime permanent

Lorsqu'une couverture est placée sur des résidus réactifs, l'oxygène diffuse tout d'abord à travers la couverture pour être ensuite consommé par les résidus. En régime permanent, lorsque $\partial C/\partial t = 0$ et quand $C(0) = C_o$ (à $z=0$) et $C(\infty) = 0$ (à $z \rightarrow \infty$) la solution à l'équation 1.21 correspond à (Nicholson et al., 1989):

$$C = C_o \exp(-z(k_r/D_e)^{1/2}) \qquad (1.29)$$

Le flux stationnaire à travers une couverture de matériaux non réactifs peut alors s'exprimer par la relation suivante (Nicholson et al., 1989) :

$$F = D_e(C_o - C_L)/L \qquad (1.30)$$

où C_L représente la concentration d'oxygène à l'interface couverture-résidus et L l'épaisseur de la couverture.

Lorsque C_L est négligeable comparativement à C_o, le flux total à travers la couverture devient :

$$F = D_e(C_o/L) \qquad (1.31)$$

La valeur de C_o correspond à la concentration en oxygène de l'atmosphère (9 moles/m^3≈0.28 kg/m^3≈20.9%).

Solution à l'équation de diffusion pour le régime transitoire

Des solutions numériques et analytiques à la seconde loi de Fick pour le régime transitoire permettent de déterminer le flux de diffusion de l'oxygène à travers un matériau. On présente ici une solution analytique tirée de Crank (1975) et des solutions numériques obtenues avec le logiciel Pollute de Rowe et al. (1994).

Solution analytique

En régime transitoire, qui implique ici une variation de la concentration en fonction du temps), une solution analytique de l'équation (1.21) est donnée par Crank (1975) pour le cas où l'on suppose une consommation rapide d'oxygène dès qu'il atteint la base de l'échantillon (concentration nulle en oxygène sous la couche), soit le cas de la diffusion d'oxygène à travers un matériau de recouvrement au-dessus de résidus sulfureux (Nicholson et al., (1989); Aachib et al., (1993); Tremblay (1995)).

$$F(t) = 2C_o\theta_{eq}\left(\frac{4D^*}{\pi t}\right)^{1/2}\sum_{m=1}^{\infty}\exp\left[\frac{-(2m+1)^2L^2}{4D^*t}\right] \qquad (1.32)$$

Dans cette solution, pour le cas où S_r>90% environ, on doit tenir compte de la diffusion dans l'eau, θ_a devient θ_{eq} et s'exprime comme suit :

$$\theta_{eq}=\theta_a + H\theta_w \qquad (1.33)$$

où H est la constante de solubilité de l'oxygène à l'équilibre (0.03). Le coefficient D devient alors D^* et se définit comme suit:

$$D^* = \frac{D_e}{\theta_{eq}} \tag{1.34}$$

Pour une couverture sur un dépôt de résidus sulfureux, les conditions suivantes aux limites sont applicables:

- Concentration constante à la surface de la couverture: $C(z \leq 0, t>0) = C_o \approx 20.9\%$
- Concentration initiale d'oxygène nulle à travers l'épaisseur de la couverture: $C(z>0, t = 0) = 0$
- Concentration à la base de la couverture supposée nulle en tout temps: $C(z>L, t>0) = 0$

Solution numérique

Rowe et Brooker, (1985) ont proposé une solution numérique à la loi de Fick pour le cas où la concentration à la sortie de l'échantillon reste nulle durant toute la période de l'essai. Cette solution peut être résolue à partir du logiciel POLLUTEV6 (Rowe et al, 1994). POLLUTEV6 est un logiciel qui calcule une solution à une équation unidimensionnelle de dispersion-advection dans un dépôt constitué de couches d'épaisseur finie ou infinie.

Le flux massique, F, du transport d'un élément par diffusion est donné par la relation suivante (Rowe et al, 1994):

$$F = -\theta_{eq} D^* \frac{\partial C}{\partial z} \tag{1.35}$$

où :

C : concentration du contaminant à une profondeur z au temps t

D^*: coefficient de diffusion

θ_{eq} : porosité corrigée (avec $D_e = \theta_{eq} D^*$)

Souvent on prendra $\eta=\theta_{eq}$ pour le calcul des concentrations en fonction du temps lorsque $S_r > 90\%$.

1.3 MODÉLISATION GÉOCHIMIQUE

Depuis les années 80 on fait de plus en plus appel aux modèles géochimiques pour aider à la compréhension des différents processus géochimiques qui interviennent dans l'oxydation des résidus miniers (Ritchie, 1977 ; Harries et Ritchie, 1981, 1983 ; Davies et Ritchie, 1982, 1986 ; Senes et Break, 1986 - voir aussi SRK, 1989; Hutchison et Ellison, 1992; Appello et Postma, 1993). Ceux-ci sont répartis en différentes catégories, selon leur application.

L'objectif principal de la modélisation géochimique consiste à décrire les différents processus géochimiques applicables aux résidus et à prédire la qualité des eaux de drainage.

Dans cette section, les différents paramètres nécessaires à la modélisation géochimique sont introduits. Un survol des principales catégories de modèles géochimiques est ensuite présenté.

1.3.1.1 Paramètres requis pour la modélisation géochimique

Les paramètres d'entrée utilisés en modélisation géochimique incluent la composition de l'eau, la minéralogie, l'activité bactérienne, la surface exposée, la température, l'apport d'oxygène, le taux d'infiltration de l'eau, et finalement les données thermodynamiques et cinétiques qui permettent de prédire les réactions de précipitation et de dissolution dans le résidu.

Composition de l'eau

Les analyses de l'eau devraient inclure l'acidité ou l'alcalinité, le pH, les métaux dissous (Fe, Cu, Zn, Pb, Mn, etc), les cations importants (Ca, Mg, Na, K), les sulfates et autres anions en solution, le potentiel redox (Eh) et le couple (fer ferreux/fer ferrique). Le carbone inorganique total (TIC) et la silice (SiO_2) devraient être aussi analysés, ceux-ci permettant de définir les taux de dissolution des carbonates et silicates (Perkins et al., 1995).

Minéralogie

Les minéraux producteurs d'acide et les minéraux neutralisateurs doivent être identifiés et quantifiés. La détermination des minéraux secondaires s'avère importante et parfois difficile étant donné le caractère amorphe et la taille des grains, c'est pourquoi différentes méthodes analytiques doivent être utilisées. De plus, les minéraux de la gangue peuvent également affecter la composition de l'eau.

Transport de l'oxygène

Tel que vu à la section 1.2.2.1, le transport de l'oxygène à travers les résidus miniers se fait essentiellement par diffusion et constitue un paramètre critique dans la détermination de la production d'acide.

Température

La température doit être spécifiée pour effectuer les calculs thermodynamiques. Pour la modélisation, on utilise usuellement une fourchette de température entre 0° et 100°C, soient les points de congélation et de fusion de l'eau respectivement. À ces

températures, une erreur de 5°C ne devrait pas influencer les calculs de façon significative (Perkins et al., 1995).

Données thermodynamiques

Certaines données thermodynamiques sont essentielles à la modélisation géochimique. Elles servent à estimer les coefficients d'activité des espèces en solution et les indices de saturation des minéraux en solution.

Les coefficients d'activité (a_i) sont généralement définis sous forme de molalité et exprimés en terme de leur concentration molale (m_i) et de leur coefficient d'activité molal (γ_i) (Wolery, 1992a) :

$$a_i = m_i \gamma_i \tag{1.36}$$

Dans les solutions électrolytes, les coefficients d'activité sont influencés principalement par leurs interactions électriques. Leur comportement peut être relié en terme de force ionique I (Wolery, 1992a).

$$I = m_i z_i \tag{1.37}$$

où z_i est la charge électrique.

Cependant, la force ionique ne représente toutefois pas un moyen fiable pour prédire le coefficient d'activité (Wolery, 1992a).

Il existe plusieurs équations théoriques utilisées pour calculer les coefficients d'activité pour les espèces aqueuses (Nordstrom et Munoz, 1994). En voici quelques-uns :

Debye-Huckel (1923)

$$\log \gamma_i = -\frac{Az_i^2\sqrt{I}}{1+a_iB\sqrt{I}} + BI \tag{1.38}$$

où a_i est le diamètre des espèces et A et B sont des constantes. Cette équation est aussi valable que celle de Davies (ci-après), mais s'applique à des températures allant jusqu'à 300°C.

Davies (1962)

$$\log \gamma = -Az_i^2\left(\frac{\sqrt{I}}{1+\sqrt{I}} + 0.3I\right) \tag{1.39}$$

où A est une constante. On utilise cette équation à des température proches de 25°C et pour des forces ioniques I inférieures à 1.

Équations de Pitzer (1973)

Pitzer a formulé une série d'équations empiriques pour estimer les coefficients d'activité a_i des espèces aqueuses. Ces dernières sont réputées pour leur applicabilité aux solutions concentrées (voir Pitzer et Kim, 1974). Des modèles utilisant ces équations ont été développés pour décrire les propriétés des solutions aqueuses et l'équilibre entre ces solutions et des sels minéraux. Une présentation détaillée de ces équations excède le cadre de ce projet mais celles-ci sont bien documentées dans la littérature (Pitzer 1973; Wolvery, 1992b).

1.3.2 Modèles géochimiques existants

Les modèles géochimiques existants se répartissent en cinq catégories : les modèles thermodynamiques à l'équilibre, les modèles de transfert de masse, les modèles de transfert de masse-écoulement, les modèles de soutien et les modèles d'ingénierie. Chaque catégorie de modèle s'adresse à des objectifs de prédiction différents (Perkins et al., 1995).

Ainsi, les modèles thermodynamiques s'emploient pour l'identification des espèces de métaux solubles et mobiles dans l'eau de drainage acide. Les modèles de transfert de masse sont utiles pour déterminer les concentrations maximales de métaux et leur évolution avec le temps. L'application des modèles de transfert de masse-écoulement s'avère efficace pour déterminer la concentration et les charges en fonction du temps. Enfin, les modèles géochimiques d'ingénierie conviennent pour examiner des options de restauration. Une présentation sommaire des caractéristiques des diverses catégories de modèles est présentée au tableau 1.6. Les différents modèles sont résumés sous forme de tableaux pour chacune des catégories dans les sections qui suivent. L'annexe I présente une description un peu plus détaillée des différents modèles appartenant à chacun des groupes.

1.3.2.1 Modèles thermodynamiques

Les modèles thermodynamiques sont des modèles où les paramètres d'entrée (composition de l'eau, température et pression) sont utilisés pour déterminer les concentrations et les activités des espèces aqueuses les plus importantes en solution. Ils permettent également de calculer les indices de saturation des phases minérales et gazeuses lesquelles évaluent les conditions de saturation et de précipitation (Perkins et al., 1995). Ces modèles font suite aux travaux sur la spéciation des ions en eaux naturelles de Garrels et Thompson (1962), qui ont été les premiers à implanter les modèles thermodynamiques permettant de calculer l'équilibre thermodynamique entre

les espèces aqueuses d'une solution. La plupart des programmes de cette catégorie permettent d'effectuer des corrections pour des analyses incomplètes de l'eau, en laissant à l'utilisateur la liberté de modifier les paramètres d'entrée.

À noter que des différences majeures entre les divers modèles peuvent être reliées à la précision de la base de données thermodynamiques. Bien qu'il existe plusieurs modèles de coefficient d'activité pour la modélisation des eaux, la plupart des modèles géochimiques utilisent les équations de Davies ou de Debye-Huckel. Le tableau 1-7 résume certaines caractéristiques des modèles thermodynamiques existants.

Parmi tous les modèles géochimiques disponibles, MINTEQA2 semble offrir le plus de flexibilité pour la modélisation des réactions de surface (Allison et al., 1991). En plus d'évaluer la différenciation aqueuse et la solubilité, ce modèle permet de calculer l'échange d'ions et l'adsorption superficielle par divers isothermes d'activité (i.e. kd, Langmuir et Freundlich). Les coefficients d'activité des espèces ioniques sont calculés à partir de l'équation de Davies. MINTEQA2 fonctionne avec PRODEFA2, un programme qui facilite l'entrée les données initiales du problème. Le modèle a été utilisé au cours de ce projet afin de simuler les réactions dans les divers colonnes de lixiviation. Les résultats obtenus sont présentés au chapitre 4.

Tableau 1-6 : Résumé des caractéristiques des principales catégories de modèles géochimiques existants (Perkins et al., 1995).

Type de modèle	Paramètres requis	Objectifs de prédiction
Thermodynamique	•Chimie de l'eau •Minéralogie •Température •Apport d'oxygène •Données d'équilibre thermodynamique	•Identification des espèces solubles •Concentration des métaux en solution •Indice de saturation
Transfert de masse	•Chimie de l'eau •Minéralogie •Surface spécifique •Température •Apport d'oxygène •Données d'équilibre thermodynamique/cinétique	•Identification des espèces solubles et métaux •Concentration des métaux en solution •Durée
Transfert de masse-écoulement	•Chimie de l'eau •Minéralogie •Surface spécifique •Température •Apport d'oxygène •Données d'équilibre thermodynamique/cinétique	•Identification des espèces solubles et métaux •Concentration des métaux en solution •Durée •Concentration vs temps •Options de désaffectation
Modèle d'ingénierie	•Chimie de l'eau •Minéralogie •Surface spécifique •Température •Apport d'oxygène •Données d'équilibre thermodynamique /cinétique	•Durée •Concentration vs temps •Options de désaffectation
Modèles de soutien	• Données thermodynamiques	•Diagrammes de phase •Diagrammes Eh-pH

Tableau 1-7 :Résumé des caractéristiques des codes basés sur des modèles d'équilibre thermodynamique (Perkins et al., 1995).

Code	Paramètres requis	Processus modélisés	Référence
EQ3	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2	Dissolution /précipitation Co-précipitation cycles gel-dégel	Wolery (1992)
SOLMINEQ .88	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2	Dissolution /précipitation Co-précipitation cycles gel-dégel	Kharaka et al. (1988)
PHREEQE PHRQPITZ	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2	Dissolution /précipitation Co-précipitation cycles gel-dégel	Parkhurst et al. (1980)
MINTEQA2	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2	Dissolution /précipitation Co-précipitation cycles gel-dégel	Allison et al. (1991)
WATEQ4F	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2	Dissolution /précipitation Co-précipitation cycles gel-dégel	Ball et Nordstrom (1991)
SOLVEQ	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2	Dissolution /précipitation Co-précipitation cycles gel-dégel	Reed (1982)

1.3.2.2 Modèles de transfert de masse

Les modèles de transfert de masse suivent l'évolution d'un système solide-liquide qui tend vers l'équilibre thermodynamique. Ces modèles utilisent les lois cinétiques qui gouvernent la précipitation et la dissolution des solides.

Les paramètres d'entrée requis sont la composition initiale du fluide ainsi que la minéralogie des phases solides et leur surface spécifique respective. A mesure que les minéraux de la roche se dissolvent, la composition de l'eau change. Des minéraux secondaires peuvent précipiter à partir de la nouvelle solution ou se dissoudre à nouveau. La quantité de produits solides change en fonction du temps jusqu'à ce que l'équilibre soit atteint. Le tableau 1-8 présente sommairement les différentes caractéristiques de certains modèles de transfert de masse.

Tableau 1-8 : Résumé des principaux modèles de transfert de masse (Perkins et al., 1995)

Modèle	Paramètres requis	Processus modélisés	Référence
PATHARC	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2 Taux cinétiques	Dissolution/précipitation Tampon/neutralisation	Conseil de recherche de l'Alberta (Perkins et al., 1995)
EQ6	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2 Taux cinétiques Cycles-mouillage-séchage	Dissolution/précipitation Tampon/neutralisation	Wolery (1992)
CHILLER	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2 Cycles mouillage-séchage	Dissolution/précipitation Tampon/neutralisation	Reed (1992)

Tableau 1-8 (suite): Résumé des principaux modèles de transfert de masse (Perkins et al., 1995)

Modèle	Paramètres requis	Processus modélisés	Référence
REACT	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2 Cycles mouillage-séchage Taux cinétiques	Dissolution/précipitation Tampon/neutralisation	Bethke (1992)
STEADYQL	Concentration des espèces dissoutes Eh, pH Température fO_2 Cycles mouillage-séchage	Dissolution/précipitation Tampon/neutralisation	Furrer et al. (1989)

1.3.2.3 Modèles de transfert de masse-écoulement

Les modèles de cette catégorie sont des modèles de transfert de masse mais comportent en plus des fonctions pour modéliser l'écoulement. Ce sont des programmes plus complexes et on les utilise pour simuler une grande variété de processus géochimiques. En plus de l'écoulement, ces modèles prennent en compte le transport des solutés et le transfert de chaleur. Les paramètres requis pour ces modèles incluent des analyses détaillées de l'eau qui décrivent la composition en fonction du temps, la minéralogie de la superficie étudiée, les taux d'écoulement entrant et sortant du système et les variations de température en fonction du temps. Au tableau 1-9 sont présentés les principaux modèles de transfert de masse-écoulement.

Tableau 1-9 :Résumé de certains modèles de transfert de masse-écoulement (Perkins et al., 1995)

Modèle	Processus modélisés	Référence
REACTRAN	Dissolution/précipitation Co-précipitation Tampon/neutralisation Cycles mouillage-séchage Écoulement 1D	Ortoleva et al., (1987)
MPATH	Dissolution/précipitation Co-précipitation Tampon/neutralisation Cycles mouillage-séchage Écoulement 1D	Lichtner (1985)
FMT	Dissolution/précipitation Tampon/neutralisation Écoulement 2D	Novak (1993)
KGEOFLOW	Dissolution/précipitation Tampon/neutralisation Écoulement 2D	Ségouvian et al. (1992)
CIRF.A	Dissolution/précipitation Co-précipitation Tampon/neutralisation Cycles mouillage-séchage Écoulement 1D	Ortoleva et al.,(1987)

1.3.2.4 Modèles de soutien

Les modèles géochimiques requièrent l'utilisation de bases de données thermodynamiques. Or, celles-ci sont rarement disponibles dans un format adéquat et nécessitent d'être manipulées ou extrapolées pour différentes conditions, d'où la commodité des modèles de soutien. En effet, ces derniers peuvent calculer les champs de stabilité pour différents minéraux ou espèces chimiques en fonction de la température, pression, Eh, et log d'activité des espèces aqueuses. Les modèles de soutien offrent également des solutions à l'inverse du problème, c'est-à-dire qui utilise la composition de l'eau, des minéraux et la composition de la roche pour identifier et

quantifier les réactions géochimiques en utilisant des contraintes de balance de masse. Le tableau 1-10 présente un aperçu de certains modèles de soutien.

Tableau 1-10 : Identification de certains modèles de soutien (Perkins et al., 1995)

Modèle	Paramètres requis	Références
SUPCRIT92	Données thermodynamiques	Johnson et al. (1992)
ACT2	Données thermodynamiques	Bethke (1992)
RXN	Données thermodynamiques	Bethke (1992)

1.3.2.5 Modèles d'ingénierie

Les modèles d'ingénierie étudient les relations entre les changements qui se produisent dans les variables géochimiques (pH, Eh,...) dans l'environnement et les changements qui résultent dans les propriétés physico-mécaniques. Ce sont des modèles relativement simples qui sont utiles pour des études comparatives.

Le tableau 1-11 illustre certains modèles avec leurs caractéristiques de modélisation.

Tableau 1-11 :Résumé des principaux modèles empiriques et d'ingénierie (Perkins et al., 1995)

Modèle	Processus modélisés	Références
WATAIL	Dissolution et précipitation Redox Tampon/neutralisation Cycles mouillage-séchage Taux cinétiques	Scharer et al. (1993)
FIDELHM	Cycles mouillage-séchage Taux cinétiques	Pantelis (1993)
QROCK	Dissolution et précipitation Redox Tampon/neutralisation Cycles mouillage-séchage Taux cinétiques	Chapman et al. (1994)

Tableau 1-11 (suite) :Résumé des principaux modèles empiriques et d'ingénierie (Perkins et al., 1995)

Modèle	Processus modélisés	Références
RATAP	Dissolution et précipitation Redox	Senes et Beak (1986)
ACIDROCK	Tampon/neutralisation Cycles mouillage-séchage Dissolution et précipitation Redox	Scharer et al. (1994)

1.4 PRÉVENTION DE LA PRODUCTION D'ACIDE PAR LES BARRIÈRES DE RECOUVREMENT

Comme il a été discuté dans ce chapitre, la cause principale de production d'acide est la présence d'oxygène dans des résidus renfermant des minéraux sulfureux réactifs. Le contrôle par le biais d'un système de recouvrement bien conçu qui permet de limiter la pénétration d'oxygène dans les résidus réactifs paraît être une solution efficace. Cette section porte sur le principe d'effet de barrière capillaire à la base de la conception des couvertures.

1.4.1 Principe de barrière capillaire

Frind et al., (1976) semblent avoir été les premiers à introduire le concept de barrière capillaire. Les différentes relations teneur en eau θ_w–succion ψ, et conductivité hydraulique k-teneur en eau θ_w propres à 2 matériaux sont responsables de l'effet de barrière capillaire. La figure 1.2 montre la relation $\psi(\theta_w)$ pour 2 matériaux de granulométrie différente, soit un silt et un sable. Sur cette figure, on note que les 2 matériaux restent saturés jusqu'à une pression d'entrée d'air ψ_a (ou AEV) respective. Quand la pression ψ diminue, les pores se drainent jusqu'à une teneur en eau résiduelle θ_r. Le sable se draine à partir d'une succion de quelques centimètres alors que le silt

reste saturé à une succion de plusieurs mètres. Un sol à granulométrie fine peut donc rester saturé même lorsque la nappe phréatique se trouve quelques mètres au-dessous de ce dernier. La figure 1.3 montre que pour une succion ψ_x, la conductivité hydraulique k dans le sable peut devenir plus faible que dans le silt. L'écoulement de l'eau dans le silt est ralenti à l'interface silt/sable par la faible conductivité du sable et favorise la saturation du silt. C'est ce phénomène qui est à la base de l'effet « barrière capillaire » (Nicholson et al., 1989; Collin et Rasmuson, 1990; Aubertin et al., 1993, 1995, 1996).

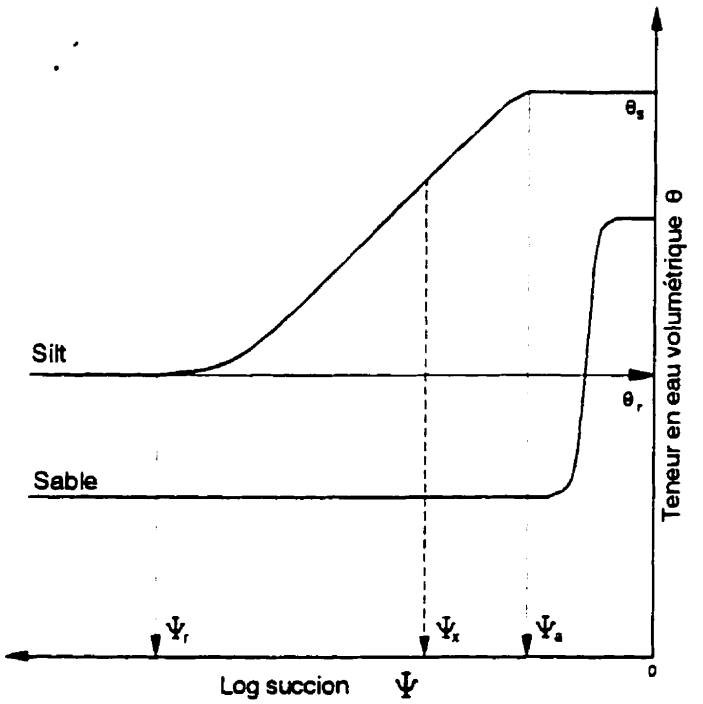


Figure 1.2 : Courbes de rétention d'eau pour un sable et un silt (Tiré de Aubertin et al., 1997)

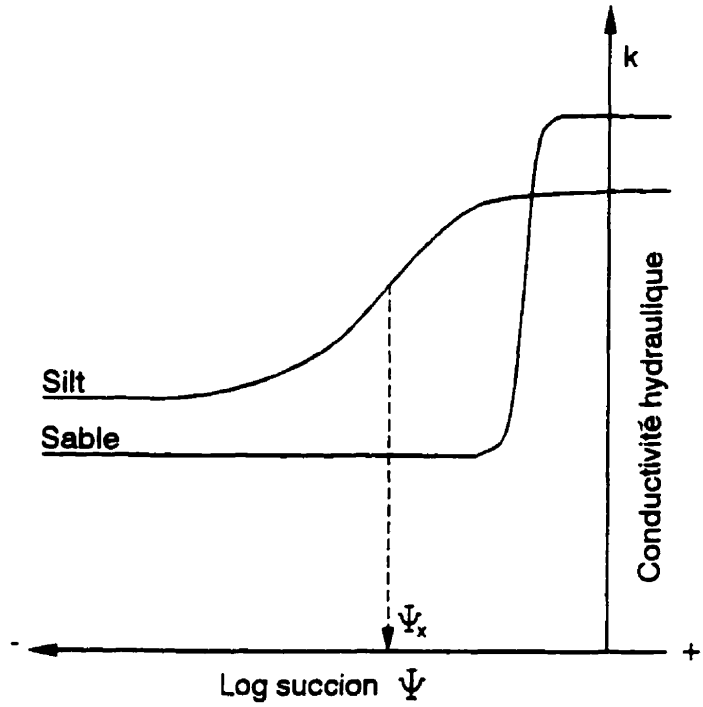


Figure 1.3 : Courbes de conductivité hydraulique non saturée pour un sable et un silt (tiré de Aubertin et al., 1997)

1.4.2 Composantes des barrières de recouvrement

Les barrières de recouvrement incluent jusqu'à 5 couches distinctes, lesquelles ont une ou des fonctions spécifiques. La figure 1.4 montre la configuration typique d'une barrière multicouches. Celle-ci se présente comme suit (Aubertin et Chapuis, 1991):

-une couche de surface servant à la croissance de plantes et à la rétention d'humidité,

-une couche de protection contre l'érosion profonde et contre les intrusions biologiques,

-une couche drainante,

-une couche de matériau fin peu perméable (couche capillaire)

-une couche de support non capillaire.

L'épaisseur de chacune des couches du système dépend de la nature et des propriétés hydriques des matériaux.

La couche de surface protège contre l'érosion. Elle sert à la croissance des plantes et à la rétention d'eau. Son épaisseur varie avec le type de végétation.

La couche de protection, d'une épaisseur entre 30 et 60 cm, constituée d'un matériau grossier, protège contre les intrusions biologiques et fournit une deuxième ligne de protection contre l'érosion. L'utilisation d'un gravier bien étalé de cailloux s'avère idéale.

La couche drainante est usuellement formée d'un sable ayant une conductivité hydraulique supérieure de 3 à 4 ordres de grandeur à celle de la couche de matériau fin. Cette couche sert de barrière non capillaire, qui réduit les pertes d'humidité dans la couche capillaire. Elle sert aussi à contrôler les infiltrations d'eau venant de la surface et à l'évacuer latéralement le long des surface inclinées.

La couche de matériau fin par sa fonction qui consiste à limiter l'infiltration de l'eau et à empêcher le passage de l'oxygène constitue la véritable barrière pédologique d'un système de recouvrement. Elle favorise le drainage dans la couche drainante ainsi que l'accumulation de l'eau dans les couches de protection et de surface, ce qui est bénéfique pour la végétation et l'évapotranspiration. Ce système devrait donc retenir l'eau dans les couches de surface et de protection, l'enlever par évapotranspiration et/ou l'évacuer latéralement. Grâce aux effets capillaires, l'eau interstitielle contenue dans la couche à texture fine sera maintenue en place par une pression négative et ainsi retenue si les couches supérieures et sous-jacentes sont constituées de matériaux à granulométrie plus grossière. En maintenant saturée cette couche peu perméable, on empêche de ce fait l'oxygène de s'infiltrer dans les couches inférieures, ainsi que la fissuration due au dessèchement.

La couche de support non-capillaire, à granulométrie grossière, sert de barrière contre la remontée d'eau contaminée des résidus vers la couche de matériau fin. Elle contribue

également à maintenir la couche de matériau fin dans un état saturé créant ainsi un effet de barrière capillaire. De plus, puisque sa perméabilité est diminuée lorsqu'elle est drainée, elle contribue également à réduire l'infiltration.

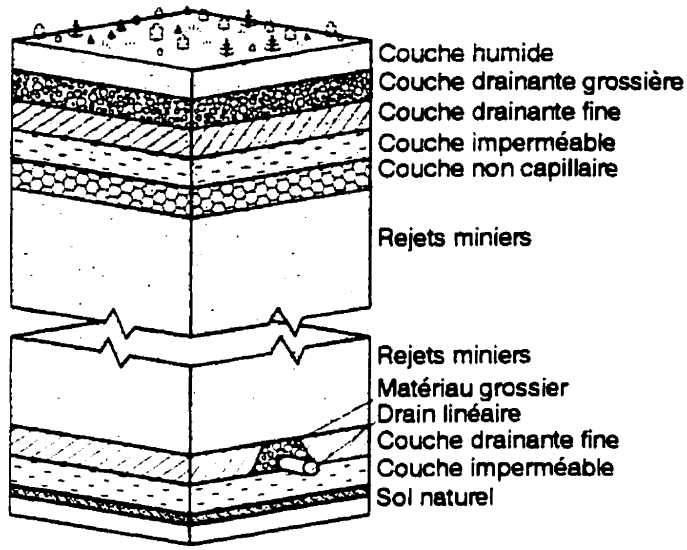


Figure 1.4: Profil d'une barrière de recouvrement (Tiré de Aubertin et Chapuis, 1991)

1.4.3 Comportement des barrières de recouvrement avec des rejets non réactifs

En 1991, ont débuté à l'École Polytechnique, dans le cadre du programme NEDEM (programme de neutralisation des eaux de drainage dans l'environnement minier), des travaux de recherche dont l'objectif consistait à évaluer les propriétés de résidus miniers en regard à leur utilisation dans un système multicouche pour limiter le DMA.

Dans le but de déterminer les caractéristiques pertinentes à la conception de barrières de recouvrement, Bussière (1993), dans le cadre d'un projet de maîtrise, a prélevé des échantillons de résidus miniers sur une trentaine de sites au Québec. Suite aux analyses préliminaires effectuées (minéralogie, densité du solide, limite de consistance,

sédimentométrie) une douzaine de matériaux ont été initialement retenus (Aubertin et al., 1995). Parmi ceux-ci, les rejets de trois sites ont été sélectionnés pour une étude approfondie de leurs propriétés hydrogéologiques. Ces trois types de rejets provenaient des sites Bevcon, Sigma et Senator, tous situés en Abitibi. Ces rejets ne sont pas générateurs de DMA, ne contenant pas de minéraux sulfureux. À ces trois matériaux s'est ajouté le résidu provenant du site Norebec-Manitou, qui contenait entre 3 et 7% de pyrite.

Des essais de granulométrie, de compaction, de minéralogie et de consolidation ont été réalisés sur chacun des matériaux homogénéisés. Afin d'évaluer les conditions hydriques dans la couverture, il a été nécessaire de déterminer les courbes de rétention d'eau des matériaux, à partir desquelles les relations conductivité hydraulique-succion ont pu être estimées. Finalement, comme le but principal des barrières de recouvrement est de limiter l'apport d'oxygène, les coefficients de diffusion effectif D_e des matériaux ont été évalués.

1.4.3.1 Essais en laboratoire

Les résultats des travaux de laboratoire étant prometteurs, Aachib (1997), dans le cadre de sa thèse, a utilisé ces matériaux pour la conception de barrières de recouvrement en laboratoire. Aux 4 résidus sélectionnés, se sont ajoutés les résidus réactifs du site Solbec-Cupra (SC), fortement générateurs de DMA, comme matériaux de référence. Pour évaluer la performance de la couverture, des colonnes de contrôle et de référence ont été mises en place. La teneur en eau volumique et la pression interstitielle ont été mesurées tout au long des essais. En plus de ces mesures, des analyses de pH, de Eh, de la conductivité électrique, de sulfates et de métaux dissous dans l'effluent ont été effectuées.

Huit colonnes de 150 cm de hauteur ont été construites (C1 et CD1, C2 et CD2, C3 et CD3, C4 et CD4), chaque paire représentant un des sites sélectionnés pour les matériaux

de recouvrement (Bevcon, Sigma, Senator, Manitou-Barvue). L'épaisseur de la couche capillaire était de 60 cm. Deux petites colonnes de référence, d'une hauteur de 50cm chacune, ont également été montées avec des résidus sulfureux SC sans couverture. À toutes les 4 semaines, 1819 g d'eau (10cm) ont été ajoutés aux colonnes.
Parallèlement à ces essais en colonnes, des essais en colonne de drainage ont aussi été effectués. Une colonne de 110 cm de hauteur, composée du haut vers le bas de 21 cm de sable (couche anti-évaporation), de 43 cm d'épaisseur pour la barrière capillaire et de 33 cm pour la couche de sable du bas, a été montée. Équipée de sondes mesurant la teneur en eau volumique et de capteurs de pression, elle a permis d'établir le comportement hydrique de la couverture.

À partir des propriétés hydriques des matériaux constituant la colonne de drainage, une modélisation numérique a été réalisée afin de déterminer les conditions d'écoulement. Les résultats ont montré que le degré de saturation dans la couche capillaire reste supérieur à 90% après plusieurs jours de drainage, sans apport d'eau. Les résultats ont également mis en évidence le rôle de la couche superficielle comme couche de protection contre l'évaporation dans la couche sous-jacente (Aachib et al., 1998). De plus, ces résultats ont permis de dégager quelques règles pratiques afin d'optimiser le dimensionnement d'un système de recouvrement. Ainsi, un système de recouvrement dont l'épaisseur de la couche capillaire est de l'ordre de 0,50 à 1 m serait théoriquement très efficace si la couche sous-jacente de matériau grossier remplit bien son rôle de support et de bris capillaire. Plus de détails sur ces travaux sont présentés dans Aubertin et al., (1995, 1997) et Aachib (1997).

Les essais en colonne de contrôle ont, quant à eux, servi à évaluer de façon plus spécifique l'efficacité réelle des recouvrements multicouches pour contrôler la production de DMA. Les résultats ont montré que la couche capillaire constituée de rejets miniers a conservé un haut degré de saturation (>90%) durant toute la période des essais (2 ans environ), même avec certaines périodes sèches de 90 jours. L'infiltration

d'oxygène vers les résidus réactifs a donc été limitée efficacement. Par ailleurs, aucune oxydation des rejets réactifs SC n'a été décelée. En ce qui concerne la composition du lixiviat recueilli dans les colonnes avec couverture, le pH du lixiviat a peu varié et s'est maintenu autour de 5-6 alors que dans les colonnes sans couverture, il est descendu proche de 2 (Aubertin et al., 1995; Aachib, 1997).

Les travaux de Aubertin et al., (1995) et Aachib (1997) ont montré qu'il est possible de concevoir, à partir de résidus miniers non réactifs, une couverture efficace pour contrer le DMA. Cependant, avant de passer à une application à l'échelle d'un parc à résidus miniers, il a été jugé nécessaire de poursuivre la campagne d'essais sur des cellules expérimentales in situ à une échelle intermédiaire. La section suivante présente les grandes lignes de ces travaux.

1.4.3.2 Essais in situ

Norebec-Manitou

Les essais de terrain (Aubertin et al., 1997, 1999) ont débuté à l'été 1995 et se sont terminés à l'automne 1998. Ces derniers ont servi à valider les résultats des essais en laboratoire (présentés ici) et à évaluer d'autres aspects qu'il n'est pas possible d'évaluer dans ces conditions (effets climatiques, difficultés de mise en place, tassement, ruissellement, pente, température dans le sol, etc...). Les parcelles expérimentales ont été construites à l'ancienne mine Manitou-Barvue (MB) en Abitibi, près de Val d'Or. Six cellules en forme de pyramide tronquée inversée ont été mises en place. Cinq d'entre elles sont recouvertes d'une barrière multicouche et une ne contient que des résidus réactifs. La configuration typique des cellules est la suivante (du haut vers le bas); une couche de sable de 30 cm, une couche à rétention capillaire formée de différents résidus miniers non réactifs dont l'épaisseur varie de 30 à 90 cm (Sigma fin, Sigma amendé à la bentonite, Sigma grossier et un till), une couche de sable de 40 cm, 1,5 m de résidus miniers sulfureux, une conduite avec crépine entourée d'un géotextile

et d'un sable filtrant reliée à un système de lysimètre, et une géomembrane reposant sur un sable densifié.
Le système est conçu pour pouvoir isoler les différentes composantes du bilan hydrique : ruisellement, évapotranspiration, écoulement latéral dans la couche de sable du haut et percolation à travers la barrière.

Les cellules ont été instrumentées de sondes servant à mesurer la teneur en eau dans les différents matériaux, de tensiomètres qui mesurent la succion matricielle et de senseurs à résistance électrique. Une station météorologique a été mise en place sur le site dans le but de mesurer les paramètres qui affectent les échanges atmosphériques à la surface (température sèche, humidité relative, rayonnement solaire, vitesse du vent).

Les résultats du suivi hydrique des matériaux ont indiqué que les teneurs en eau dans les couches de sable se situent entre 0,5 et 0,15 alors que celles dans les différentes couches de matériaux fins se situent au-dessus de 0,3 à 0,35. De plus, les mesures de succion dans les couches de matériaux grossiers du bas des cellules recouvertes se situent usuellement entre 1 et 5 kPa et celles mesurées dans les couches de matériaux fins sont inférieures à 15 kPa.

Les essais de consommation d'oxygène ont confirmé quant à elles que les flux d'oxygène disponibles pour l'oxydation des matériaux sulfureux ont pu être réduits par la mise en place d'une couverture avec effet de barrière capillaire.

Le suivi de la qualité géochimique à permis de constater que le pH de l'eau de percolation des cellules recouvertes est demeuré entre 6 et 7, contrairement à la cellule témoin (pH en bas de 3).

Ces travaux ont également permis de montrer que durant une sécheresse prolongée de 40 jours, les teneurs en eau volumiques sont restées élevées.

Enfin, des modélisations numériques ont permis de montrer que la forme des cellules n'affectait pas de façon significative les conditions d'écoulement de l'eau à proximité de la zone centrale. De plus, les profils de teneurs en eau volumique prédits par les modèles numériques concordent bien avec ceux mesurés expérimentalement. L'ensemble des résultats obtenus est présenté dans Aubertin et al. (1999).

En parallèle avec ces travaux réalisés in situ, des essais de laboratoire avec les mêmes matériaux que ceux utilisés dans les cellules construites sur le terrain, ont été menés afin d'aider à comprendre les effets propres aux matériaux et ceux reliés aux conditions d'exposition sur le site. Ce sont ces résultats qui seront présentés ici.

Les Terrains Aurifères

En 1996, les responsables du site *Les terrains Aurifères* (LTA) ont opté pour la conception d'une barrière de recouvrement afin de contrer la menace de DMA que constituait les 7,7Mt de tonnes de résidus miniers réactifs. Le site LTA près de la ville de Malarctic en Abitibi, a été le premier projet de grandeur réelle (60 hectares) au Canada à utiliser cette technologie comme outil de restauration (Ricard et al., 1997).

Une seule couverture a été construite sur tout l'ensemble du terrain. Les résidus alcalins utilisés comme matériaux fins provenaient de l'ancienne mine Malarctic Goldfields qui borde le terrain LTA à l'est et dont le ministère des ressources naturelles est propriétaire (MRN).

Lors de l'étude de faisabilité et de la conception de la couverture, la rétention d'eau lors des périodes de sécheresse, la résistance à l'érosion de surface, la capacité à gérer des précipitation extrêmes ainsi que le potentiel d'endommagement suite aux cycles de gel-dégel sont des paramètres dont les concepteurs ont dû tenir compte.

La stratigraphie sélectionnée pour la couverture multicouche est composée de 0,5m de sable agissant comme couche de bris capillaire, de 0,8m de résidus MRN qui servent de barrière contre la diffusion d'oxygène, et de 0,3m de sable et gravier grossier utilisé comme couche de protection.

Différents appareillages ont été utilisés dans le but d'effectuer un suivi adéquat de la performance de la couverture. Des sondes servant à calculer la teneur en eau in situ du matériau, des capteurs de pression et des sondes de mesure de concentration d'oxygène pour la mesure de consommation ont été installées à divers endroits sur le site.

Les résultats des mesures sur le terrain indiquent des degrés de saturation de l'ordre de 90% sur les pentes de la couverture et supérieurs à 90% et plus pour les sommets.

La technique de recouvrement utilisant l'effet de barrière capillaire a aussi été décrite dans la littérature pour d'autres projets. On pense notamment à Yanful, (1993), au projet Bersbo en Suède, (Collin, 1998), à la mine Silver Equity, en Colombie–Britannique (O'kane et al., 1998). Récemment, à l'hiver 1999, au site de Lorraine au Témiscamingue, on vient de terminer la mise en place d'une couverture avec effet de barrière capillaire constituée à partir des résultats issus du présent projet de maîtrise.

En résumé, on peut dire que les résultats issus des travaux réalisés en laboratoire par Aachib (1997) et Aubertin et al., (1995) ont motivé la poursuite de travaux sur le terrain et en laboratoire. Les travaux de terrain sont ceux entrepris au site Norebec-Manitou à l'été 1995. Le présent projet de recherche est consacré à la partie laboratoire de ces travaux.

Les principaux processus géochimiques décrits dans la revue de littérature (dissolution et précipitation des minéraux, diffusion de l'oxygène) serviront à mieux comprendre les mécanismes de diffusion dans les couvertures ainsi que leur comportement au point de

vue géochimique et hydrique. Le survol des principaux modèles géochimiques à permis d'identifier un modèle qui servira à vérifier la qualité des données analytiques des eaux de percolation.

Le chapitre suivant décrit le programme expérimental suivi.

CHAPITRE II

PROGRAMME EXPÉRIMENTAL ET MODÉLISATION

La revue de littérature a mis en évidence les principaux processus géochimiques reliés à l'exposition de résidus miniers réactifs aux conditions climatiques. L'utilisation des barrières de recouvrement a été proposée en guise de mesure de contrôle au problème du DMA.

Après la présentation des caractéristiques des matériaux utilisés pour la construction des couvertures, ce chapitre présente la méthodologie suivie pour évaluer l'efficacité des couvertures à limiter le DMA.

2.1 PROPRIÉTÉS DES MATÉRIAUX

Tel que mentionné à la section 1.3, des cellules expérimentales ont déjà été mises en place au site Manitou-Barvue près de Val D'Or. Dans le cadre des essais de laboratoire, les matériaux testés sont les mêmes que ceux utilisés pour construire les parcelles in situ (Aubertin et al., 1997).

Au total, six matériaux ont été employés. Quatre d'entre eux ont été utilisés à titre de couche à rétention capillaire peu perméable. De ces quatre matériaux, trois proviennent du même site; il s'agit des résidus de concentrateur de la mine Sigma, toujours active, située à Val D'Or. L'autre est un till naturel extrait d'un site situé près de Val D'Or. Le matériau utilisé comme couche drainante et non capillaire est un sable grossier. S'ajoute à ceux-ci comme matériau de référence, le résidu minier réactif provenant du site Manitou-Barvu à Val D'Or.

Les échantillons de résidus miniers prélevés sur le site de la mine Sigma ont été classés en trois catégories : Sigma fin, Sigma grossier et Sigma amendé (à la bentonite). Sigma fin et Sigma grossier se différencient principalement par l'emplacement de l'échantillonnage et Sigma amendé est le mélange de Sigma grossier avec environ 8% (en poids) de bentonite.

Afin de vérifier la capacité des rejets miniers à agir comme couche de matériau fin et peu perméable dans un système de recouvrement multicouche, il s'est avéré nécessaire d'en déterminer les propriétés. La sélection des matériaux et la campagne d'essais réalisés sur ces derniers ont fait l'objet du projet de maîtrise de Monzon (1998). Certains résultats seront rapportés dans cette section.

2.1.1 Analyses minéralogiques

Les résultats des analyses minéralogiques par diffraction au rayons-X (DRX) réalisées par Bernier (1996) sur le Till et le résidu Sigma présentés aux tableaux 2-1 et 2-2 montrent que ces résidus contiennent des minéraux acidivores tels que l'albite et la chlorite et la présence de carbonates. Le résidu Manitou (tableau 2-3) quant à lui, est générateur d'acide avec un potentiel net de neutralisation (PNN) de –88kg/tm de $CaCO_3$ (Bernier, 1996). Il ne contient pas de calcite et est riche en quartz. Enfin, la pyrite fait environ 3% et est le principal minéral potentiellement générateur d'acide.

Tableau 2-1: Résultats de l'analyse minéralogique du résidu Sigma (Bernier, 1996)

Matériau	Qz	Ab	Or	Bt	Chl	Mo	Cc	Ank	To	Ilm	Ep	Sul
Grossier	A	M	F	F	M	-	P	F	P	F	F	F
Fin	A	M	F	F	M	-	P	F	P	F	F	F
Amendé	A	M	F	F	M	F	P	F	P	F	F	F

Qz=Quartz, Ab=Albite, Or=Orthose,Bo=Biotite, Chl=Chlorite, Mo= Montmorillonite, Ank=Ankérite, To=Tourmaline, Ilm=Ilménite, Ep=Épidote, Sul= Sulfures Ab=abondant (30-70%), M=modéré (10-30%), F= faible (5-10%), P=peu (<5%), Tr= trace

Tableau 2-2 :Résultats de l'analyse minéralogique du Till (Bernier, 1996)

	Till (%)
Quartz	45
Albite	25
Orthose	10
Hornblende	5
Tourmaline	5
Biotite	2
Chlorite	3
Épidote	3
Montmorillonite	2
Pyrite	trace

Tableau 2-3 :Résultats de l'analyse minéralogique des résidus Manitou (Bernier, 1996)

Manitou	Qz	Ab	Or	Bt	Chl	Mu	Gyp	Cal	Ep	Py
20-40m	A	P	P	F	M	P	TR	-	F	F
100-200	A	P	P	F	M	P	P	TR	F	P
+200m	A	P	P	F	P	P	TR	-	F	F

Qz=Quartz, Ab=Albite, Or=Orthose, Bo=Biotite, Chl=Chlorite, Mu=Muscovite, Gyp=Gypse, Cal=Calcite, Ep=Épidote, Py=Pyrite

2.1.2 Résultats des analyses granulométriques et de compactage

Les résultats des analyses granulométriques, présentés au tableau 2-4 et à la figure 2.1, montrent une certaine concordance entre les courbes granulométriques des matériaux fins non-réactifs. La granulométrie du sable est plus grossière et celle des résidus sulfureux se situe entre celle du sable et celle des matériaux fins. Le C_u ($=D_{60}/D_{10}$) des résidus Sigma fin, Sigma grossier et du till sont comparables. On peut qualifier ceux-ci de matériaux plutôt uniformes exception faite du résidu Sigma amendé dont la valeur est plus élevée (48.28), ceci étant dû à l'ajout de bentonite qui a pour effet de diminuer le diamètre des grains correspondant à 10% de passant en poids (D_{10}). Les principaux résultats des essais de compactage réalisés au laboratoire (Proctor modifié) (tableau 2-5) ont indiqué des teneurs en eau optimale (w_{opt}) variant de 10 à 17%. Le poids volumique sec (γ_d) varie de 17.8 à 21.1 kN/m^3, ce qui correspond à un indice des vides (e) entre 0.32 et 0.57 (Monzon, 1998). Les résultats de ces essais de compactage sur les matériaux étudiés se comparent bien aux valeurs obtenues pour des matériaux analogues provenant de la même région (Bussière, 1993).

Tableau 2-4 : Résultats des analyses granulométriques (Monzon, 1998) (voir aussi figure 2.1)

Matériau	D_{10} (mm)	C_u	Passant tamis #200	< 2µm
Sigma fin	0.0042	9.17	78.5%	5.0%
Sigma grossier	0.0040	9.00	77.5%	5.0%
Sigma amendé	0.0012	48.28	81.0%	14.5%
Manitou	0.0116	26.78	20.5%	5.0%
Till	0.0038	4.47	98.5%	5.5%
Sable	0.37	---	33.5%	0

Tableau 2-5 : Résultats des essais de compactage (Monzon, 1998)

Matériau	w_{opt} (%) Teneur en eau optimale	γ_d (kN/m^3) Masse volumique sèche	e indice des vides
Sigma fin	15.5	18.3	0.55
Sigma grossier	15.7	18.2	0.55
Sigma amendé	13.1	19.8	0.46
manitou	10.5	20.1	0.42
till	16.8	17.5	0.57
sable	10.0	21.1	0.32

2.1.3 Conductivité hydraulique

Les caractéristiques de l'écoulement de l'eau à travers les matériaux ont été obtenues à l'aide du perméamètre à paroi rigide et du perméamètre à paroi flexible. L'évaluation de la conductivité hydraulique à l'aide du perméamètre à paroi rigide comprend deux types

d'essais, celui à charge variable et celui à charge constante. Ces derniers sont détaillés dans Monzon, (1998). Les principaux résultats des essais à charge constante, charge variable et les essais triaxiaux sont résumés au tableau 2-6. On y montre que les valeurs de conductivité hydraulique des différents essais de laboratoire sont généralement concordantes, à l'exception des résidus miniers Manitou. En effet, les valeurs de conductivité hydraulique de ces résidus sont très différentes les unes des autres.

Tableau 2-6 : Résultats des essais de perméabilité au perméamètre (Monzon, 1998)

Échantillon	e	essai à charge variable (cm/s)	Essai à charge constante (cm/s)	Essai triaxial (cm/s)
Sigma fin	0.50 à 1.02	3.73×10^{-4} à 3.41×10^{-4}	3.46×10^{-4} à 2.97×10^{-4}	5.76×10^{-5} à 1.12×10^{-4}
Sigma grossier	0.50 à 1.06	4.58×10^{-4} à 1.74×10^{-4}	4.39×10^{-4} à 2.40×10^{-4}	4.74×10^{-5} à 1.07×10^{-4}
Sigma amendé	0.50 à 1.00	---	---	7.81×10^{-8} à 9.84×10^{-6}
Till	0.50 à 1.00	9.82×10^{-5} à 2.80×10^{-5}	---	1.23×10^{-5} à 7.24×10^{-5}
Manitou	0.50 à 1.00	6.68×10^{-3} à 2.58×10^{-3}	8.22×10^{-4} à 2.19×10^{-3}	2.85×10^{-4} à 6.34×10^{-4}
Sable	0.50 à 1.00	3.05×10^{-2} à 2.60×10^{-2}	4.43×10^{-2} à 4.73×10^{-2}	

2.2 CONFIGURATION DES ESSAIS EN COLONNE

Au total, 7 colonnes de drainage et 2 colonnes témoins ont été construites à partir de la configuration des cellules de terrain. Les colonnes utilisées sont cylindriques, en Plexiglas, d'un diamètre de 15,24 cm. La hauteur des colonnes varie entre 150 et 200 cm selon le matériau utilisé à l'exception des deux colonnes témoins. Chaque colonne est composée de sections de 50 cm de hauteur chacune. Les tableaux 2-7 à 2-13 et les figures 2.2 à 2.4 présentent les caractéristiques des colonnes de drainage et des colonnes témoins au montage.

2.2.1 Colonnes de drainage

Toutes les colonnes possèdent une couche de fond de 30 cm de résidus réactifs provenant du site MB. Un géotextile placé sur un disque poreux en céramique dont la pression d'entrée d'air (AEV) de 0.5 bar permet de simuler une condition de nappe phréatique à la base de la colonne. Un disque perforé en PVC d'une épaisseur de 75 mm placé sous la pierre céramique facilite le drainage de cette dernière. L'utilisation de la pierre poreuse vise également à empêcher l'eau de rentrer par le bas.

Chaque colonne est équipée d'électrodes RDT afin de mesurer la teneur en eau dans chacune des couches. Les valeurs de teneur en eau sont prises avec le RDT (réflectométrie dans le domaine du temps), modèle *Soilmoisture Trase 6050X1*. Ce système permet un traitement automatique du signal et la détermination instantanée de la teneur en eau, à partir de la valeur mesurée. Les sondes utilisées sont constituées de trois tiges en acier inoxydable de 20 cm de longueur. Le diamètre des colonnes étant de 15 cm, seuls 15 cm de tiges ont été introduits dans le matériau ; les 5 cm restants ont été isolés avec du silicone.

Une couche de sable grossier humidifié de 40 cm est placée au-dessus des résidus MB. Elle constitue la couche non-capillaire. D'une colonne à l'autre, le matériau de la couche à rétention capillaire et son épaisseur varient (figure 2.2 et 2.3). La colonne 1 comprend un résidu minier (Sigma grossier) de 60 cm d'épaisseur provenant de la mine Sigma; la colonne 2 est construite à partir d'un till de 60 cm d'épaisseur ; la colonne 3 comprend des résidus miniers Sigma fin; la colonne 4 est constituée de 15 cm de résidus Sigma grossier surmontés de 15 cm de bentonite ; la couche capillaire de la colonne 5 est montée de façon similaire à la colonne 1 toutefois, la couche de Sigma fin mesure ici 90 cm d'épaisseur. Les colonnes 6 et 7 représentent les colonnes témoins. Finalement, les colonnes 8 et 9 ont été montées avec une porosité plus élevée. Leur couche de rétention capillaire comprend 80 cm de résidus Sigma fin et grossier respectivement. Celles-ci n'ont été densifiées que très légèrement. Un plaque de tassement à l'interface résidus minier et sable et une à l'interface couche capillaire et sable de surface ont été placées pour chacune d'entre elles. Ces colonnes permettent d'estimer l'efficacité d'un recouvrement construit à partir de moyens hydrauliques plutôt que mécaniques. Les colonnes 8 et 9 ont été mises sous vide pendant 2 jours, puis saturées sous vide du bas vers le haut. Les colonnes 1 à 5 ont été saturées lentement à partir de la valve du bas avec de l'eau désaérée jusqu'à la saturation des résidus réactifs. À partir de ce niveau, la saturation s'est faite à partir de la valve située au-dessus de l'interface des résidus réactifs et du sable jusqu'à obtention d'un centimètre d'eau libre au-dessus de la surface de la couche de sable supérieure.

2.2.2 Colonnes témoins

Deux petites colonnes (6 et 7) d'une hauteur de 30 cm chacune, composées de résidu MB uniquement, ont servi de colonnes témoins. Aucune sonde RDT n'a été installée sur ces colonnes étant donné la haute teneur en fer qui fausserait la lecture des teneurs en eau volumique. Ces colonnes devaient servir à évaluer, de façon comparative, l'efficacité des recouvrements multicouches.

Toutefois, après plus d'un an, les résidus dans ces colonnes n'ont pas montré de signe d'oxydation (contrairement au essais sur le terrain, où le pH est devenu acide (pH< 3) après moins d'un an; Aubertin et al., (1997)). Cela est sans doute relié à la configuration des colonnes qui, en maintenant la position de la nappe sous les rejets (succion presque nulle à la base), a fait en sorte que ceux-ci sont demeurés pratiquement saturés par capillarité. Afin d'améliorer la situation, un nouveau montage a été utilisé à partir de juin 1998. Celui-ci se présente comme suit :sous les résidus, on met une plaque poreuse comprise entre deux plaques de PVC avec un géotextile placé au dessus la plaque supérieure de PVC. Les plaques de PVC agissent ici comme surface d'égouttement et la plaque poreuse empêche l'air de revenir dans les colonnes. Le géotextile sert de filtre en contenant les rejets. La figure 2.4 présente le premier et le deuxième montage des colonnes 6 et 7. Comme les résultats d'essais avec ce nouveau montage ne se sont pas avérés plus concluants, les essais dans les colonnes de référence ne seront pas considérés dans ce projet (les données physico-chimiques relatives à ces dernières sont disponibles à l'annexe IV). En contrepartie, certaines données de terrain seront utilisées pour caractériser les conditions associées au matériau oxydé. Ce problème expérimental n'empêche toutefois pas l'analyse des résultats des essais dans les colonnes qui incluent des couvertures multicouches.

2.3 DÉMARCHE EXPÉRIMENTALE

Cette section décrit la démarche expérimentale suivie lors des essais, les diverses méthodes de contrôle employées ainsi que l'objectif de chacune d'elles dans le but d'évaluer la performance des barrières de recouvrement.

2.3.1 Protocole expérimental

2.3.1.1 Cycles de mouillages

Afin d'évaluer la qualité des eaux de percolation, des cycles de mouillage ont été réalisés sur les colonnes de drainage. Un cycle s'échelonne habituellement sur une période de 2 ou 4 semaines au début duquel on ajoute 1819 cm^3 d'eau (soit une hauteur de 10 cm) à chaque colonne pour simuler les précipitations qui se produisent sur le terrain. Durant la période de drainage, on recueille le lixiviat sur lequel on mesure la température, le pH, le Eh (potentiel d'oxydoréduction), la conductivité électrique, les teneurs en sulfates et les métaux dissous. Les teneurs en métaux ont été analysés au laboratoire de géochimie analytique de l'École Polytechnique par M. Christian Dallaire. Les analyses des concentrations en sulfates ont été réalisées par M. Marcel Dugal du laboratoire de chimie de l'environnement du département de génie civil de l'École Polytechnique.

Les cycles de mouillage ont débuté en mai 1997 pour se terminer en décembre 1998. Initialement d'une durée de 28 jours, ceux-ci ont été ramenés à une période de 14 jours depuis février 1998. On voulait évaluer ici l'effet de la fréquence de mouillage, considérant que des cycles de 28 jours représentent des conditions peu représentatives des conditions normales.

2.3.1.2 Suivi des teneurs en eau

Durant les cycles de mouillage, les teneurs en eau volumiques dans les différents matériaux des colonnes ont été prises régulièrement avec les sondes RDT. Le suivi des teneurs en eau a par la suite été converti en degré de saturation à partir des valeurs de porosité.

2.3.2 Simulations sur SEEP/W

L'efficacité d'une barrière de recouvrement s'évalue à sa capacité de maintenir un degré de saturation élevé en tout temps dans le matériau servant de barrière capillaire. Le logiciel SEEP/W, fréquemment utilisé pour les calculs hydrogéologiques usuels (Aubertin et al., 1997), a servi à valider le comportement hydrique des couvertures observé en laboratoire. Ce programme d'éléments finis est commercialisé par GEOSLOPE International de Calgary au Canada (Geoslope International, 1994). Il permet de traiter divers types de problèmes bidimensionnels et unidimensionnels en écoulement transitoire ou permanent, pour des conditions de saturation variable.

Pour appliquer ce modèle, les propriétés hydriques des matériaux sont nécessaires. En ce sens, plusieurs modèles existent pour décrire la courbe de rétention d'eau et la fonction de perméabilité non saturée correspondante (e.g. Childs et Collis-George 1950; Van Genuchten 1980; Van Genuchten et al., 1991; voir aussi Aubertin et al., 1997; Aachib, 1997, et Monzon, 1998). Le tableau 2-14 présente les paramètres utilisés pour prédire les courbes de rétention d'eau et de perméabilité non saturée. Celles-ci présentées aux figures 2.5 et 2.6 et utilisées pour les simulations qui découlent des mesures de la relation ψ-θ (Aubertin et al., 1996).

Le modèle numérique utilisé représente le cas d'un écoulement unidimensionnel dans des colonnes de 15 centimètres de diamètre, et de hauteurs différentes. Dans les calculs, la nappe d'eau est placée à la surface (saturation complète initialement) puis abaissée à son niveau final, au bas de la colonne. Un drainage libre est permis au bas de la colonne. Des éléments rectangulaires de type Lagrange (0,25 cm par 0,50 cm) avec intégration d'ordre 9 ont été utilisés.

Les écoulements dans les colonnes ont d'abord été simulés en régime permanent, afin d'établir des conditions initiales pour l'écoulement en régime transitoire. Les conditions

frontières sur les parois des colonnes ont été représentées par une limite imperméable. Une charge hydraulique initiale correspondant à la hauteur de la nappe phréatique a été imposée au haut de la colonne. Au bas de la colonne, une charge hydraulique légèrement inférieure a été fixée. En régime transitoire, aucune condition frontière n'a été fixée pour le dessus de la colonne. Au bas de celle-ci, une fonction de variation du niveau de l'eau en fonction du temps a été appliquée. Il est à noter que l'évaporation n'a pas été prise en compte pour ces calculs. Ces effets sont limités par la présence d'une couche de sable au-dessus de la couche de matériau fin tel que mentionné à la section 1.3.2. Les résultats des calculs numériques et mesures prises en laboratoire sont présentés au chapitre suivant.

2.3.3 Caractéristiques au démontage

À la fin des essais, à l'automne 1998, les colonnes 2,4, 5 et 8 ont été démantelées. Ceci a permis d'obtenir les caractéristiques des matériaux à la fin des essais. Les cycles de mouillage au 14 jours ont été prolongés sur les colonnes 1, 3 et 9 jusqu'en décembre.

Un échantillonnage dans le haut, le milieu et le bas de la couche du résidu Manitou des colonnes 2, 4, 5 et 8 a été réalisé dans le but d'étudier les changements minéralogiques et géochimiques du matériau.

Les degrés de saturation, la porosité et l'indice des vides pour chacun des matériaux ont pu être évalués directement à partir des teneurs en eau massiques réalisées à intervalles d'environ 5 cm. Ces résultats sont disponibles sur disquette à l'annexe IV.

Les teneurs en eau massiques ont été transformées en teneurs en eau volumiques puis comparées aux mesures obtenues avec les sondes RDT. Les teneurs en eau mesurées avec cette dernière méthode montraient des valeurs inférieures à celles obtenues par mesures massiques lors du démontage. Il a donc été nécessaire de procéder à un

étalonnage des sondes pour ajuster les valeurs réelles. L'annexe II présente les résultats des essais de calibration pour chaque matériau.

2.3.4 Flux d'oxygène

En maintenant un haut degré de saturation à travers la couche de rétention capillaire, le flux d'oxygène est limité. Une réduction effective de ce dernier entraîne subséquemment une diminution de la production de DMA. Dans cette optique, des simulations numériques sur POLLUTEV6 (Rowe et al., 1994) et à partir de la solution analytique de Crank ont été réalisées pour estimer le flux d'oxygène à travers chaque couverture (voir section 1.2.2.1). À partir des degrés de saturation et des porosités des matériaux de la couche fine obtenus lors du démontage, les coefficients de diffusion D_e ont été calculés avec l'équation de Millington et Shearer modifiée par Collin (équation 1.25a). Les flux de diffusion ont pu être obtenus à partir des épaisseurs L des matériaux fins, du coefficient de diffusion et de la porosité des matériaux.

Pour la résolution de la solution de Crank, le solveur Octave (Eaton, 1995) dans l'environnement Unix a été employé. Avec Pollute, une constante de désintégration k_r, choisie suffisamment élevée pour consommer tout l'oxygène dans les résidus réactifs a été imposée afin de reproduire les mêmes conditions frontières que pour la solution de Crank, c'est-à-dire une concentration d'oxygène nulle dans le bas de la colonne. Dans le cas présent, la constante imposée égale 3 x 10^{-4} an^{-1}. Finalement, une concentration égale à celle de la valeur atmosphérique (20.9% ou 0.276kg/m^3) a été utilisée comme concentration initiale.

2.3.5 Géochimie des résidus de terrains

Afin d'évaluer les réactions géochimiques qui se sont développées dans le temps, les résidus oxydés provenant de la cellule expérimentale #6 (sans couverture) sur le terrain ont été analysés. Trois trous ont été creusés et échantillonnés à différentes profondeurs (figure 2.7) dans le but d'observer les changements géochimiques qui se sont produits à travers l'épaisseur de la couche. Pour le site d'échantillonnage 1, des échantillons à la surface et à 10 cm de profondeur ont été prélevés. Le second site a été échantillonné à la surface et à 15 –20 cm , et le 3e site, en surface, à 25 et à 45 cm.

Sur ces échantillons, des analyses minéralogiques et de concentration en divers éléments ont été effectuées. La minéralogie par DRX a été effectuée au laboratoire de minéralogie de l'École Polytechnique par MM. Louis Bernier et Paul Samson. Les éléments majeurs, le soufre total et le carbone inorganique ont été analysés au Centre de recherche minérale (CRM) à Québec par la méthode Leco. Les sulfates solubles ont été analysés par gravimétrie. Les éléments mineurs ont été analysés au laboratoire de Géochimie analytique de l'École Polytechnique par M. Christian Dallaire par spectroscopie d'absorption atomique.

De plus, les échantillons prélevés ont été mélangés avec de l'eau distillée dans une proportion de 1 :1 (30 g de résidus pour 30 ml d'eau), décantés pendant environ 15 minutes, puis filtrés à vide. Cette solution de rinçage (eau filtrée) a ensuite servi à mesurer le pH, la conductivité, le potentiel d'oxydo-réduction et la température. Les concentrations en éléments de ces solutions de rinçage ont ensuite été analysées (méthode ICP) au CRM. À partir des résultats obtenus, les différents indices de saturation des phases minérales susceptibles d'être formées dans le résidu ont été calculés à l'aide de Minteq.

2.3.6 Modélisation avec Minteqa2

La modélisation géochimique est un outil fréquemment utilisé dans les travaux portant sur le drainage minier acide (Perkins et al., 1995). Le modèle d'équilibre géochimique Minteqa2 (Allison et al., 1991) (voir section 1.2.4) a été utilisé pour évaluer la qualité des données analytiques en vérifiant la balance de charge (l'équilibre ionique), et pour déterminer si les eaux de percolation provenant des divers échantillons sont sursaturées, sous saturées ou saturées par rapport à certaines phases minérales. Les calculs sur Minteqa2 ont été faits à partir des résultats des analyses des eaux de percolation (le pH, le Eh, la conductivité, la température, les métaux et sulfates en solution ont été entrés). Il a fallu spécifier le couple redox Fe^{2+}/Fe^{3} et entrer la concentration de fer sous forme de Fe^{2+}. L'alcalinité, calculée en soustrayant les sulfates de la somme des cations (qui donne des HCO_3^- ensuite transformés en meq/L de $CaCO_3$), doit également être inclue dans le programme afin d'équilibrer les charges. Le fait d'utiliser l'alcalinité pour calculer la concentration en HCO_3^- est une approximation seulement valable pour un pH de 6-7 car cette dernière est dominante à ces valeurs de pH. Une balance de charge inférieure à 15% signifie généralement une analyse valable.

Tableau 2-7 Caractéristiques de la colonne 1 (Monzon, 1998)

COUCHE	(Dr)	Diamètre (col. cm)	Longueur (cm)		Volume (col. cm^3)
			prevue	obtenue	
sable	2,780	15,24	30,00	30,00	5472
sigma grossier	2,798	15,24	60,00	60,40	11018
sable	2,780	15,24	40,00	39,85	7269
manitou	2,849	15,24	30,00	29,75	5427

COUCHE	Masse hum M (g)	Excedent (p/r au poids estimé)	Deficit	Compactage (approx.)	(réel)
sable	11144,00		356,90	90,00	91,84
sigma grossier	18570,40	671,70	255,00	86,70	80,81
sable	14896,30		43,10	90,50	92,42
manitou	9226,80		0,80	80,00	79,37

COUCHE	W (%) (moyen)	e	Masse sec M_d (g)	masse vol. sèche ρ_d (g/cm^3)
sable	3,00	0,41	10809,68	1,98
sigma grossier	11,20	0,87	16490,52	1,50
sable	3,00	0,40	14449,41	1,99
manitou	4,40	0,75	8820,82	1,63

COUCHE	g opt (100%) (kg/m^3)	g (kg/m^3)	n	masse vol.hum. ρ_h (g/cm^3)
sable	2110,00	1937,76		2,04
sigma grossier	1817,00	1468,27	46,51	1,69
sable	2110,00	1949,98	28,50	2,05
manitou	2009,00	1594,52	42,95	1,70

Tableau 2-8 Caractéristiques de la colonne 2 (Monzon, 1998)

COUCHE	(Dr)	Diamètre (col. cm)	Longueur (cm)		Volume (col. cm^3)
			prevue	obtenue	
sable	2,780	15,24	30,00	31,40	5727,82
till	2,743	15,24	60,00	60,50	11036,09
sable	2,780	15,24	40,00	40,00	7296,59
manitou	2,849	15,24	30,00	30,00	5472,44

COUCHE	Masse hum M (g)	Excedent (p/r au poids estimé)	Deficit	Compactage (approx.)	(réel)
sable	11984,70		790,20	93,40	90,96
till	20794,70		1389,70	90,40	78,37
sable	15487,10		1120,10	89,90	90,59
manitou	10965,60		1739,60	80,00	79,94

COUCHE	W (%) (moyen)	e	Masse sec M_d (g)	masse vol. sèche ρ_d (g/cm^3)
sable	6,50	0,42	11205,69	1,96
till	25,85	0,96	15419,27	1,40
sable	8,20	0,43	14217,16	1,95
manitou	18,30	0,74	8958,90	1,64

COUCHE	g opt (100%) (kg/m^3)	g (kg/m^3)	n (%)	masse vol.hum. ρ_h (g/cm^3)
sable	2110,00	1919,2	29,63	2,09
till	1749,00	1370,6	49,06	1,88
sable	2110,00	1911,4	29,91	2,12
manitou	2009,00	1606,0	42,54	2,00

Tableau 2-9 :Caractéristiques de la colonne 3 (Monzon, 1998)

COUCHE	(Dr)	Diamètre (col. cm)	Longueur (cm) prevue	Longueur (cm) obtenue	Volume (col. cm^3)
sable	2,780	15,24	25,00	24,88	4538,48
sigma fin	2,809	15,24	30,00	30,32	5530,81
sable	2,780	15,24	45,00	45,25	8254,26
manitou	2,849	15,24	30,00	30,35	5536,29

COUCHE	Masse hum M (g)	Excedent (p/r au poids estimé)	Déficit	Compactage (approx.)	(réel)
sable	9288,90		259,70	90,40	87,07
sigma fin	9511,70	419,30		83,60	83,71
sable	16892,50		711,60	90,00	90,77
manitou	9226,00			80,00	77,25

COUCHE	W (%) (moyen)	e	Masse sec M_d (g)	Densité total ρ_d (g/cm^3)	Densité ρ_h (g/cm^3)
sable	8,50	0,48	8499,34	1,87	2,05
sigma fin	9,30	0,80	8627,11	1,56	1,72
sable	4,60	0,42	16115,45	1,95	2,05
manitou	5,07	0,80	8758,24	1,58	1,67

COUCHE	g opt (100%) (kg/m^3)	g (kg/m^3)	n
sable	2110,00	1837,15	0,33
sigma fin	1828,00	1530,19	0,44
sable	2110,00	1915,28	0,30
manitou	2009,00	1551,91	0,44

Tableau 2-10 :Caractéristiques de la colonne 4 (Monzon, 1998)

COUCHE	(Dr)	Diamètre (col. cm)	Longueur (cm) prevue	Longueur (cm) obtenue	Volume (col. cm^3)
sable	2,780	15,24	30,00	30,00	5472,44
sig gro-amen	2,822	15,24	15,00	14,90	2717,98
sig gro-no-ame	2,798	15,24	15,00	15,10	2754,46
sable	2,780	15,24	40,00	39,40	7187,14
manitou	2,849	15,24	30,00	29,90	5454,20

COUCHE	Masse hum M (g)	Excedent (p/r au poids estimé)	Deficit (p/r au poids estimé)	Compactage (approx.)	Compactage (réel)
sable	11655,80		236,20	93,00	94,47
sig gro-amen	4252,50	142,50		74,00	64,48
sig gro-no-ame	4291,80	236,20		81,60	74,83
sable	15114,00		731,00	90,00	93,66
manitou	9660,40		434,40	80,00	82,34

COUCHE	W (%) (moyen)	e	Masse sec M_d (g)	masse vol.sèche ρ_d (g/cm^3)
sable	4,60	0,37	11120	2,03
sig gro-amen	16,90	1,17	3534	1,30
sig gro-no-ame	11,00	1,02	3820	1,39
sable	4,20	0,38	14479	2,01
manitou	4,80	0,69	9197	1,69

COUCHE	g opt (100%) (kg/m^3)	g (kg/m^3)	n	masse vol. hum ρ_h (g/cm^3)
sable	2110,00	1993	0,27	2,13
sig gro-amen	1978,00	1275	0,54	1,56
sig gro-no-ame	1818,00	1360	0,50	1,56
sable	2110,00	1976	0,28	2,10
manitou	2009,00	1654	0,41	1,77

Tableau 2-11 : Caractéristiques de la colonne 5 (Monzon, 1998)

COUCHE	(Dr)	Diamètre (col. cm)	Longueur (cm) prevue	Longueur (cm) obtenue	Volume (col. cm^3)
sable	2,780	15,24	30,00	30,00	5472,44
sigma fin	2,809	15,24	90,00	91,80	16745,67
sable	2,780	15,24	40,00	40,60	7406,04
manitou	2,849	15,24	30,00	30,20	5508,92

COUCHE	Masse hum M (g)	Excedent (p/r au poids estimé)	Deficit (p/r au poids estimé)	Compactage (approx.)	Compactage (réel)
sable	11473,00		446,00	92,00	93,67
sigma fin	27830,40	1207,6		86,70	80,35
sable	14740,60		277,60	90,50	88,93
manitou	9507,00		281,00	80,00	80,14

COUCHE	W (%) (moyen)	e	Masse sec M_d (g)	masse vol.sèche ρ_d (g/cm^3)
sable	3,90	0,38	11025,55	2,01
sigma fin	10,40	0,89	24936,04	1,49
sable	3,90	0,45	14165,72	1,91
manitou	4,90	0,74	9041,16	1,64

COUCHE	g opt (100%) (kg/m^3)	g (kg/m^3)	n	masse vol. hum ρ_h (g/cm^3)
sable	2110,00	1976,5	0,28	2,10
sigma fin	1818,00	1460,8	0,47	1,66
sable	2110,00	1876,4	0,31	1,99
manitou	2009,00	1610,0	0,42	1,73

Tableau 2-12 :Caractéristiques de la colonne 8 (Monzon, 1998)

COUCHE	(Dr)	Diamètre (col. cm)	Longueur (cm) prevue	obtenue	Volume (col. cm^3)
sable	2,780	15,24	30,00	30,00	5472,44
sigma fin	2,809	15,24	80,00	79,95	14584,05
sable	2,780	15,24	60,00	59,90	10926,64
manitou	2,849	15,24	30,00	30,20	5508,92

COUCHE	Masse hum M (g)	W (%) (moyen)	Compactage (terrain)	(réel)
sable	10238,10	7,00	92,00	80,89
sigma fin	20381,80	9,30	86,70	68,40
sable	19581,20	3,00	90,50	80,82
manitou	7645,30	4,40	80,00	64,79

COUCHE	Masse sec M_d (g)	n	masse vol.sèche ρ_d (g/cm^3)	e
sable	9521,43	0,37	1,74	0,60
sigma fin	18486,29	0,55	1,27	1,22
sable	18993,76	0,37	1,74	0,60
manitou	7308,91	0,53	1,33	1,15

COUCHE	g opt (100%) (kg/m^3)	g (kg/m^3)	masse vol.hum. ρ_h(g/cm^3)
sable	2110,00	1706,83	1,87
sigma fin	1818,00	1243,48	1,40
sable	2110,00	1705,27	1,79
manitou	2009,00	1301,53	1,39

Tableau 2-13 : Caractéristiques de la colonne 9 (Monzon, 1998)

COUCHE	(Dr)	Diamètre (col. cm)	Longueur (cm) prevue	obtenue	Volume (col. cm^3)
sable	2,780	15,24	30,00	31,60	5764,30
sigma gro	2,798	15,24	80,00	83,80	15286,35
sable	2,780	15,24	60,00	60,40	11017,85
manitou	2,849	15,24	30,00	29,40	5362,99

COUCHE	Masse hum M (g)	W (%) (moyen)	Compactage (approx.)	(réel)
sable	9687,30	3,23	92,00	75,61
sigma fin	21100,40	10,17	86,70	66,91
sable	20887,00	3,23	90,50	85,29
manitou	6885,00	4,47	80,00	59,89

COUCHE	Masse sec M_d (g)	n	masse vol.sèche ρ_d (g/cm^3)	e
sable	9374,40	0,42	1,63	0,71
sigma fin	18954,49	0,56	1,24	1,26
sable	20212,35	0,34	1,83	0,52
manitou	6577,24	0,57	1,23	1,32

COUCHE	g opt (100%) (kg/m^3)	g (kg/m^3)	masse vol.hum ρ_h(g/cm^3)
sable	2110,00	1595,39	1,68
sigma fin	1818,00	1216,40	1,38
sable	2110,00	1799,65	1,90
manitou	2009,00	1203,11	1,28

Tableau 2-14 : Paramètres du modèle Van Genuchten utilisés pour déterminer les courbes de rétention d'eau et de conductivité hydraulique non saturée (tiré de Monzon, 1999)

Échantillon	e	θ_s	θ_r	n	α	AEV	ψ_{90}
Sigma fin	0.80	0.421	0	2.764	.0026	389	250
Sigma grossier	0.86	0.443	0	5.368	0.0026	385	260
Sigma amendé	0.67	0.375	0	1.829	.00016	644	350
Till	0.79	0.440	0	1.9819	0.0013	776	310

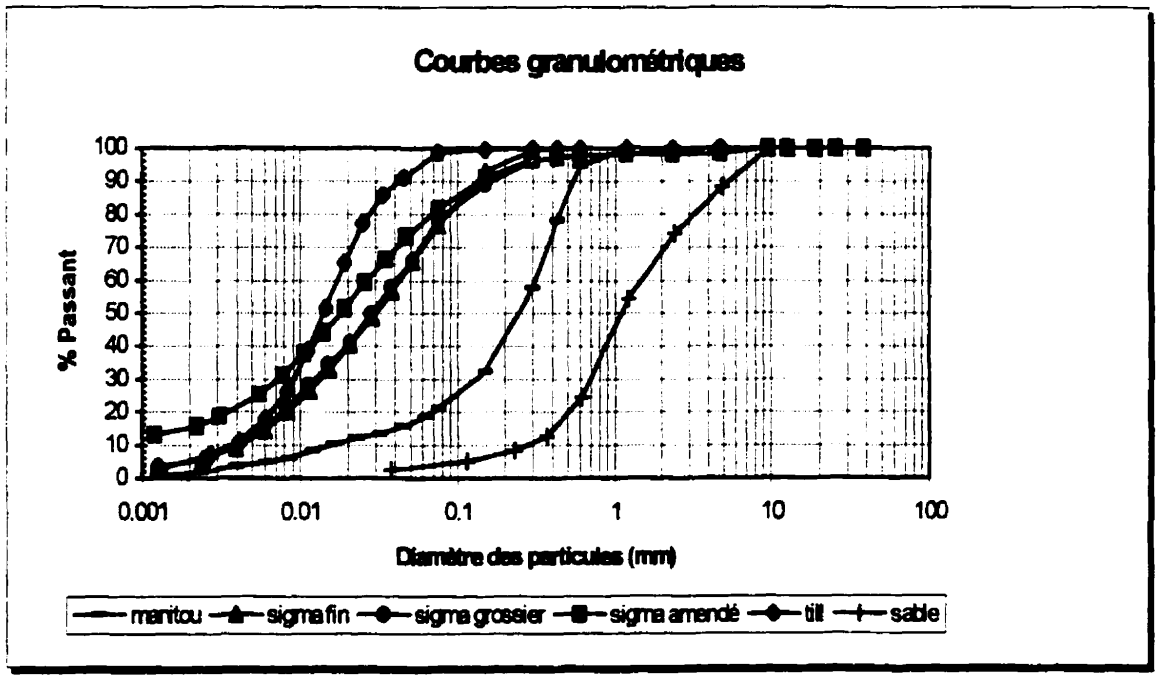


Figure 2.1 : Courbes granulométriques des matériaux étudiés (Monzon, 1998)

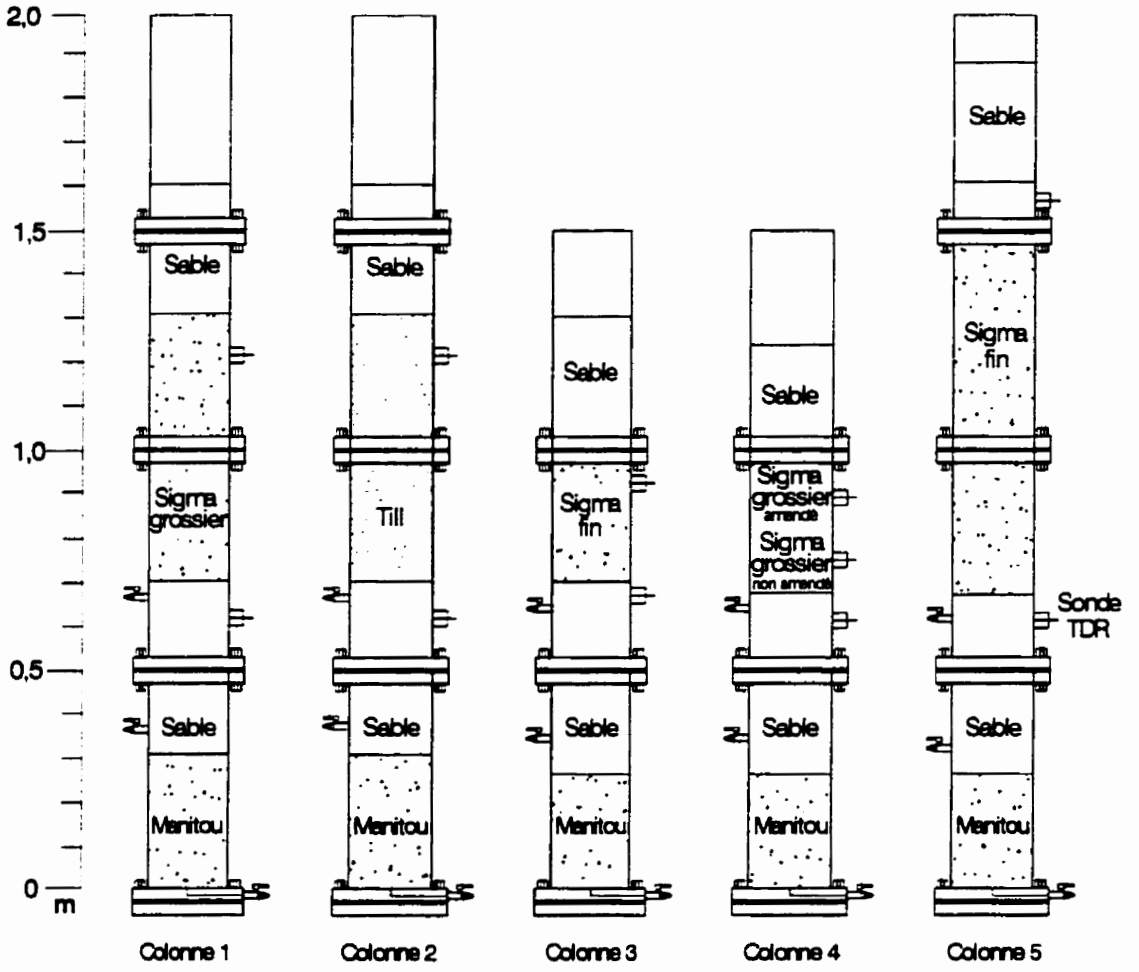
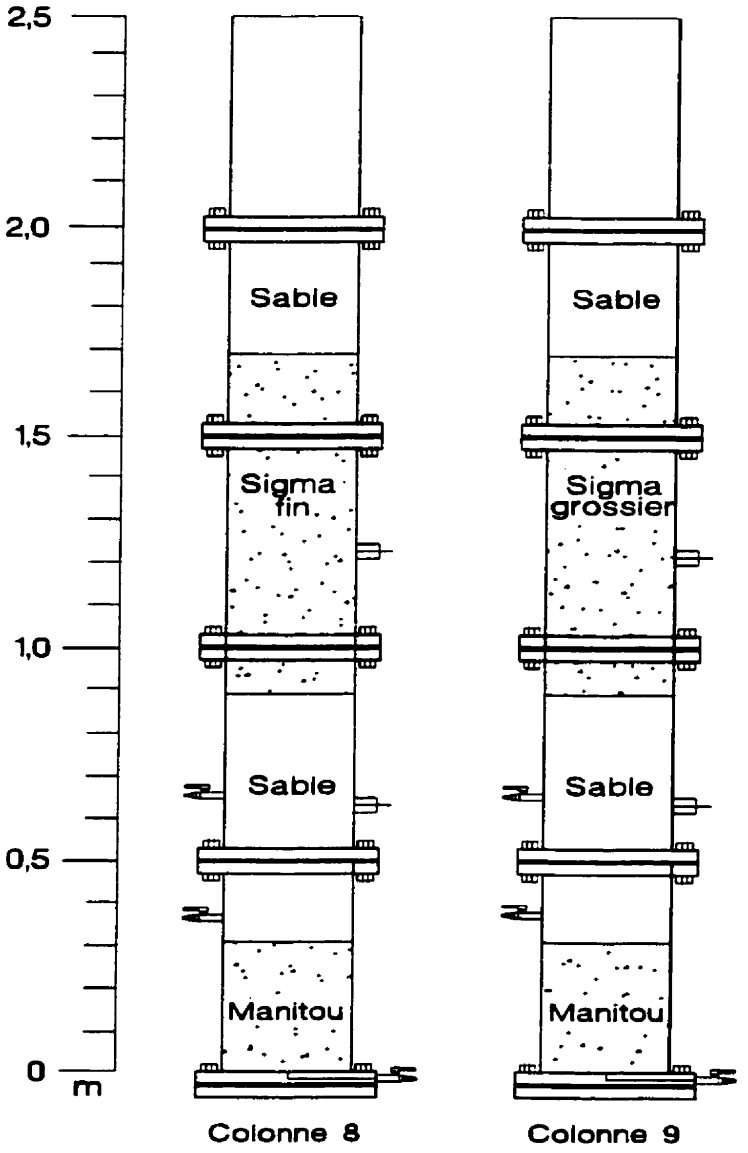


Figure 2.2 Colonnes de drainage 1 à 5



2.4

Figure 2.3 Colonnes de drainage 8 et 9

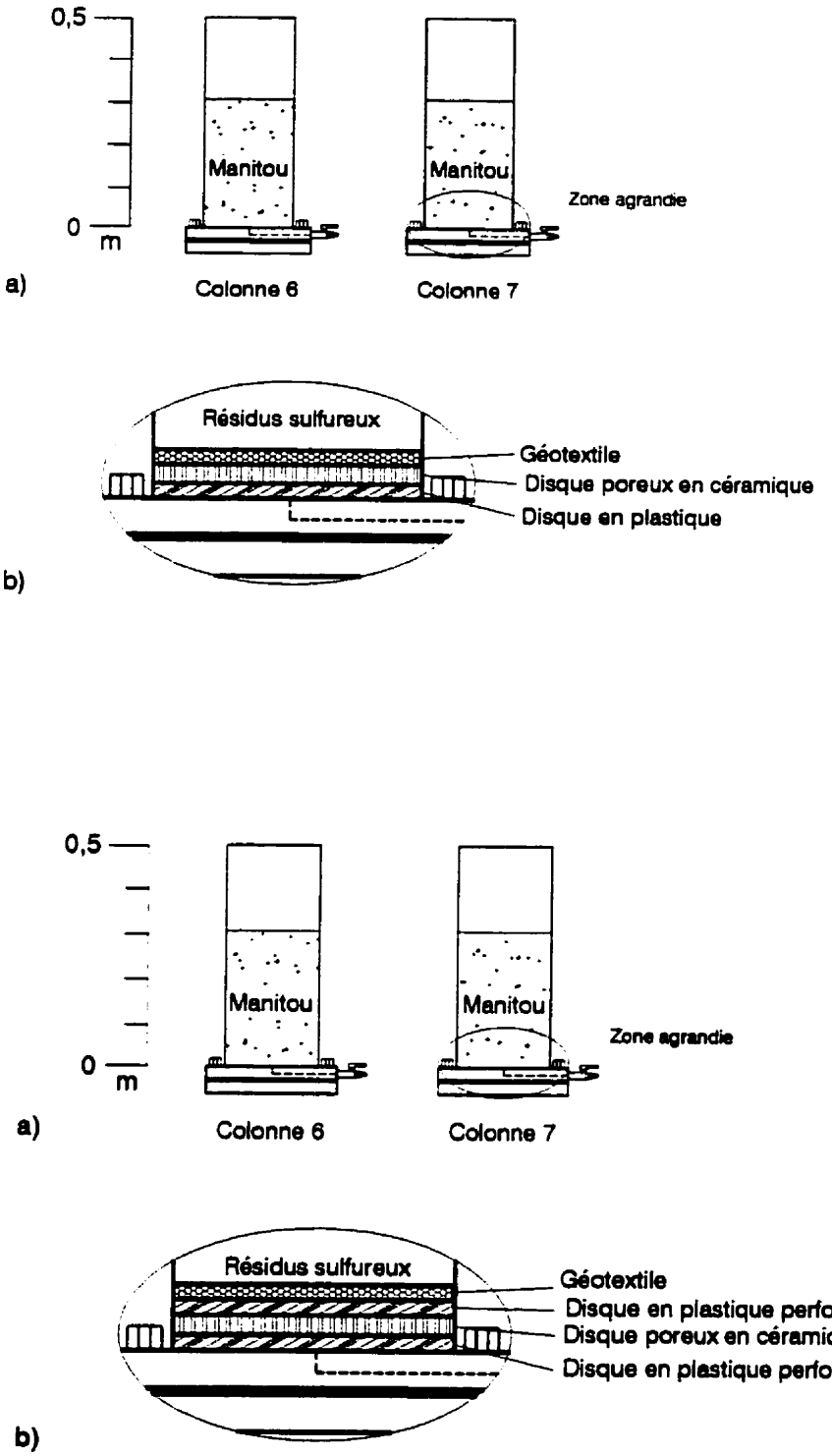


Figure 2.4 : Ancien et nouveau montage des colonnes 6 et 7

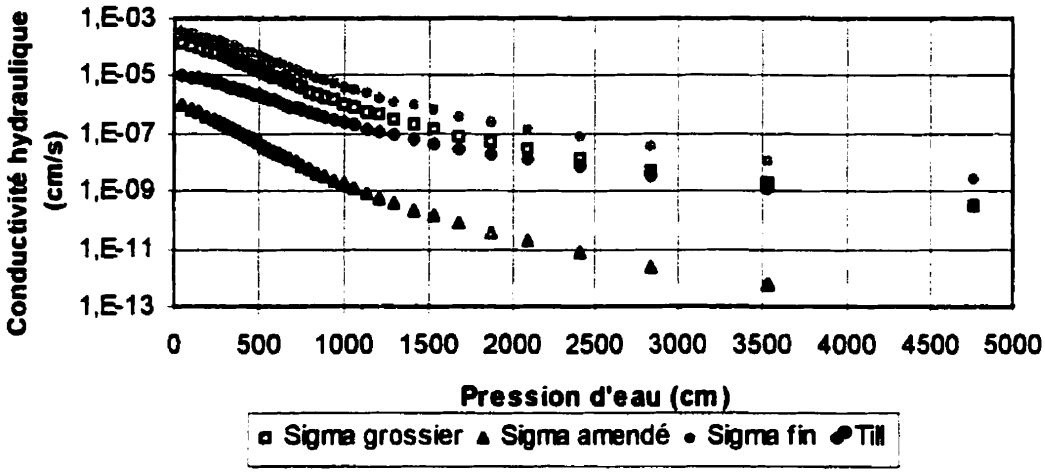


Figure 2.5 :Courbe de conductivité hydraulique des matériaux utilisés dans les colonnes (Monzon, 1998); valeurs déduites à partir du modèle de Mualem-Van Genuchten disponible dans RETC (Van Genuchten et al., 1991) (tableau 2-14)

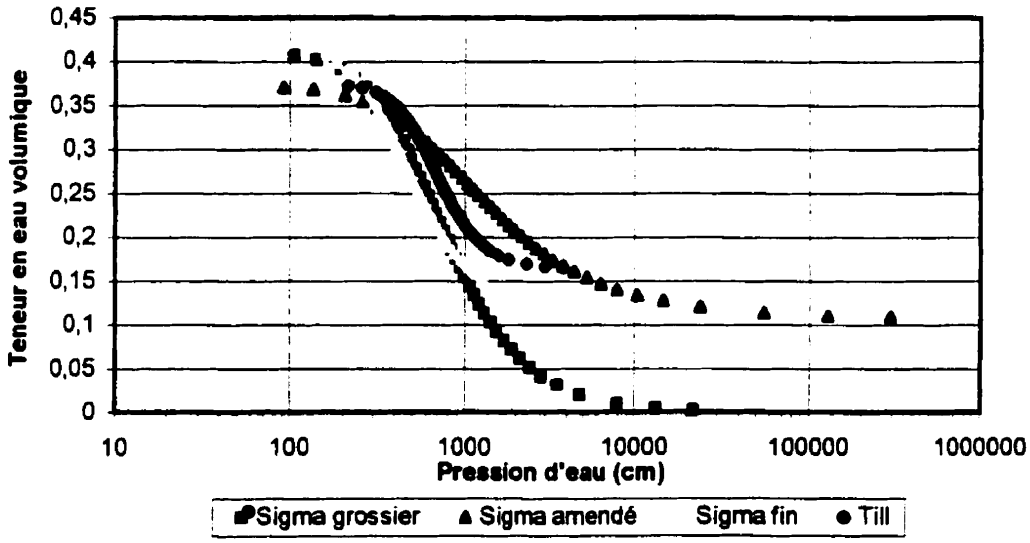


Figure 2.6 :Courbes de teneur en eau volumique des matériaux utilisés dans les colonnes (Monzon, 1998).

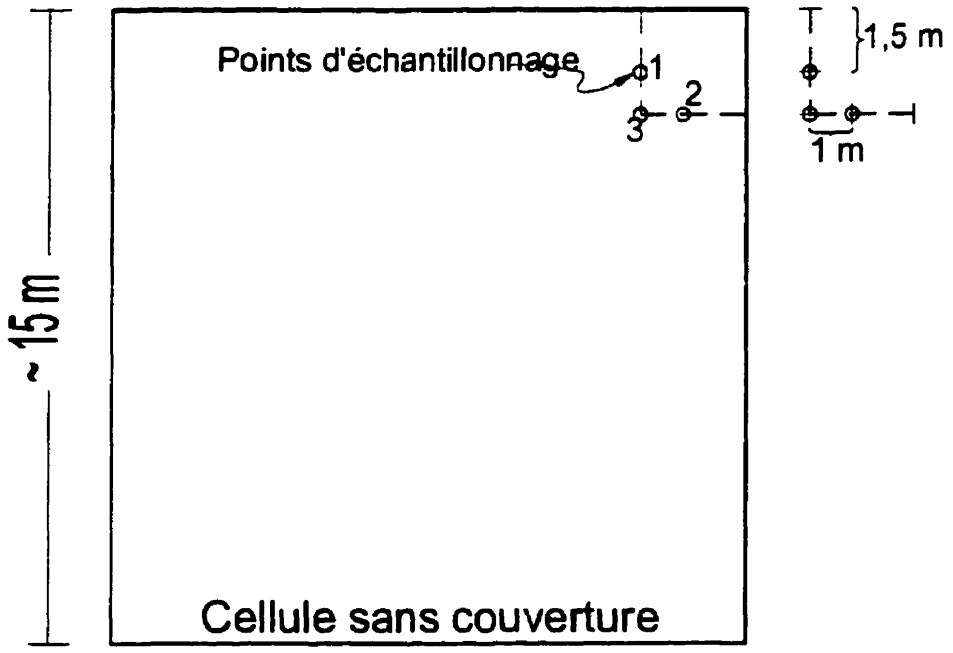


Figure 2.7: Schéma des points d'échantillonnage sur la cellule de résidus miniers non recouverts au site Manitou

CHAPITRE III

CARACTÉRISTIQUES DES MATÉRIAUX

Une fois le protocole expérimental établi, l'efficacité des couvertures doit être évaluée. Ce chapitre présente en premier lieu les principaux résultats relatifs au comportement hydrique des barrières de recouvrement. On y présente entre autres les résultats des analyses numériques obtenues avec SEEP/W et l'évolution du degré de saturation des différents matériaux pendant toute la durée des essais. Les caractéristiques de diffusion des couvertures, calculées à partir des solutions numériques et analytiques, terminent enfin ce chapitre.

3.1 CARACTÉRISTIQUES HYDRIQUES DES MATÉRIAUX

On évalue, dans cette section le comportement hydrique des couvertures. Les résultats des simulations sur SEEP/W (Geoslope International, 1994) pour chacune des colonnes de recouvrement sont présentés et discutés. Les profils de degrés de saturation obtenus en laboratoire servent ensuite à valider les résultats des simulations. Finalement, les caractéristiques réelles des matériaux au démontage sont présentées et comparées avec celles déduites des mesures au RDT durant le déroulement des essais.

3.1.1 Résultats des analyses numériques sur SEEP/W

Les résultats des sept modélisations montrés aux figures 3.1 à 3.7, sont représentés sous forme de profil de teneur en eau volumique et de succion dans les colonnes pour une période sèche (sans venue d'eau) de 56 jours en fonction des épaisseurs. On postule ici que le système était initialement saturé (ce qui était pratiquement le cas au début des essais). Les résultats expérimentaux des valeurs mesurées de la teneur en eau obtenue en laboratoire correspondant au premier cycle de drainage pour chaque colonne sont également présentés pour fin de comparaison.

Colonne 1

Les résultats pour la colonne 1, présentés à la figure 3.1, montrent une teneur en eau dans la couche de sable supérieure qui baisse rapidement après quelques heures de drainage. La couche de Sigma grossier conserve quant à elle une teneur en eau volumique voisine de 0.4 sur toute la période de drainage (qui dure 60 jours dans le modèle et 28 jours lors des mesures) ce qui correspond à une saturation d'environ 90%. La couche de sable inférieure se draine rapidement pour atteindre la teneur en eau résiduelle dans le haut de la couche.

Sur la courbe des pressions (figure 3.1a), on voit que l'effet de bris capillaire est atteint après six heures. La cassure, représentée par une droite quasi-verticale de -3 kPa,

représente une succion à peu près constante (correspondant à l'état résiduel du sable) malgré l'augmentation de l'élévation. Ceci entraîne que la succion à l'interface matériau grossier-matériau fin est plus faible que la valeur hydrostatique, ce qui permet de créer l'effet de barrière capillaire (Aubertin et al., 1997)

Les valeurs de teneur en eau mesurées concordent bien avec les valeurs calculées à partir de SEEP/W. Les teneurs en eau mesurées par les sondes RDT pour la couche de Sigma grossier restent supérieures à 0.4 (saturation supérieure à 90%), qui corroborent les résultats obtenus par SEEP durant toute la période de drainage à l'exception du sable en début d'essai où l'on note une différence assez importante.

Colonne 2

On remarque à la figure 3.2 que le profil de teneur en eau pour la colonne 2 est pratiquement le même que pour la colonne 1. Les teneurs en eau continuent de diminuer dans la couche de sable supérieure jusqu'à une valeur se rapprochant de 0.05. La couche de till conserve une teneur en eau d'environ 0.4 pour toute la période de sécheresse, tandis que la couche de sable inférieure se draine lentement pour atteindre une teneur en eau de 0.2 après deux mois. Le profil de pression qui se développe pour la colonne 2 montre que l'effet de barrière capillaire est obtenu après 6 heures et disparaît après environ 7 jours, entraînant des succions faibles dans la couche de till démontrant le phénomène de barrière capillaire.

Colonne 3

On présente les résultats des simulations de la colonne 3 à la figure 3.3. On constate que la couche de sable supérieure se draine pour atteindre une teneur en eau d'environ 0.04 après deux mois. Le haut de la couche grossière du bas se draine pour atteindre une teneur en eau résiduelle pendant la même période. La teneur en eau dans la couche de Sigma fin, quant à elle, diminue légèrement pour atteindre environ 0.38.

Le profil de pression dans la couche de sable démontre une fois de plus l'effet de barrière capillaire. Celui-ci est atteint après une dizaine d'heures, à une valeur de -2.2 kPa, et empêche la succion d'augmenter avec l'élévation. Cet effet disparaît ici après environ 30 jours.

Pour les mesures expérimentales au RDT, on remarque que les teneurs en eau de la couche capillaire restent supérieures à 0.40 entraînant ainsi des degrés de saturation supérieurs à 90%. Les teneurs en eau de la couche de sable diminuent rapidement pour atteindre une valeur de 0.25. Cette teneur en eau relativement élevée pourrait s'expliquer par le fait que des sacs d'azote n'ont été ajoutés aux colonnes que plus tard après le début des essais; ceux-ci permettent d'équilibrer la pression des gaz dans la couche de sable. Or, ces données ont été prises avant qu'un équilibre ait été atteint.

Colonne 4

Les résultats des simulations de la colonne 4 sont présentées à la figure 3.4. On constate un drainage très lent de la couche de sable supérieure, phénomène qui s'explique par la faible conductivité hydraulique à saturation de la bentonite. Selon les simulations, les 2 couches de matériaux fins conservent ici une teneur en eau de 0.40 pour toute la durée de drainage. La couche de sable du bas se draine rapidement à une teneur en eau de 0.15. Sur le profil de pression, la cassure typique observée pour les barrières multicouches est atteinte après un jour. De plus, après 60 jours de drainage, l'équilibre pseudo-stationnaire n'était pas encore atteint pour cette colonne.

En ce qui a trait aux valeurs obtenues expérimentalement, on observe une légère désaturation dans les couches de matériaux fins. Ces derniers ayant été mis en place avec des indices de vides supérieurs à 1 (voir tableau 2-7) il est normal que le matériel laisse l'eau s'écouler plus facilement. Les teneurs en eau résiduelles des couches de sable supérieures et inférieures atteignent des valeurs de 0.07 et 0.12 respectivement, comparables aux valeurs obtenues avec SEEP/W .

Colonne 5

La couche capillaire de la colonne 5 (figure 3.5) est constituée d'une couche de résidus Sigma fin de 90 cm d'épaisseur, comparativement à celle de la colonne 3 où elle n'atteint que 30 cm. Cette épaisseur plus grande engendre une certaine baisse de la teneur en eau dans le haut de la couche fine durant la période de sécheresse dû à une augmentation de la succion dans la colonne. Si on compare la colonne 5 à la colonne 3, on constate aussi que la couche de sable inférieure se draine moins rapidement dans la colonne 5 que dans la colonne 3. En effet, pour cette dernière, la couche de sable inférieure s'est drainée complètement après la première journée comparativement à celle de la colonne 5 où seulement une portion de la couche s'est drainée durant cette même période.

L'épaisseur de la couche fine étant plus grande dans la colonne 5, il y a une plus grande rétention d'eau dans la couche fine, ayant pour effet de retarder dans le temps l'augmentation de la succion à l'interface inférieure sable-Sigma fin.

La couche capillaire de Sigma fin se désature partiellement après l'ouverture des valves pour rester stable à 0.35 après 10 heures, soit à un degré de saturation de 80%. Cette désaturation est attribuable à la trop grande succion exercée par la couche de sable. En effet, lors du démontage, une partie de la sonde était insérée dans la couche de sable, ce qui a eu pour effet d'influencer la lecture de cette dernière (voir section 3.1.3).

Colonne 8

La colonne 8 (figure 3.6) est montée de façon similaire à la colonne 5, mais les matériaux ne sont que faiblement compactés. L'épaisseur de la couche de sable inférieure et du matériau fin sont de 60 et 80 cm respectivement. La couche de Sigma fin (partie supérieure) avait une teneur en eau initiale de 0.39 et elle a diminué jusqu'à environ 0.35 au bout de deux mois. On remarque que ce phénomène a été observé également dans les colonnes 3 et 5. La couche de sable du bas se draine pour atteindre une teneur en eau de 0.10 après 60 jours. Concernant les données expérimentales, on

remarque une baisse de la teneur en eau très rapide dès le début de l'ouverture des valves, causée par une mise en place lâche du matériel de la couche capillaire (e=1.22). La teneur en eau de la couche capillaire se stabilise après le premier jour de drainage et maintient un degré de saturation de 78% pour le reste de la période de sécheresse. Ces valeurs sont calculées sans tenir compte du tassement dans les couches (voir section 3.1.3).

Colonne 9

La figure 3.7 illustre les simulations de l'essai dans la colonne 9, cas pour lequel la couche capillaire de Sigma grossier s'étend sur une épaisseur de 80 cm comparativement à la colonne 1, où l'épaisseur de la couche fine est de 60 cm. La couche de Sigma grossier conserve une teneur en eau légèrement supérieure à 0.40 tout au long de la période de sécheresse et le haut de la colonne de sable du bas atteindra une teneur en eau de 0.10. Le profil de pression montre que le bris capillaire agit après 6 heures.
Pour les résultats expérimentaux, la colonne 9 présente le même phénomène que celui observé pour la colonne 8, soit une diminution rapide de la teneur en eau de la couche de Sigma grossier dès le début du cycle. La colonne 9 a été mise en place avec un indice des vides de 1.26 pour la couche capillaire, réduisant ainsi la capacité de rétention d'eau. Comme pour le cas de la colonne 8, ces mesures ne tiennent pas compte du tassement dans les couches.

3.1.2 Valeurs de saturation en fonction du temps

Les valeurs des degrés de saturation déduites des teneurs en eau volumiques mesurées à la sonde RDT et corrigées après calibration sont présentées à la figure 3.8. L'effet de barrière capillaire est observé dans toutes les colonnes, c'est-à-dire des degrés de saturation élevés et constants dans la couche fine de chaque colonne et des valeurs faibles pour les couches de sable pendant pratiquement toute la période des essais. La figure 3.9 montre plus en détail les effets des cycles de mouillage/séchage sur le

comportement hydrique de chaque matériau pour la colonne 9 pour les cycles 6-7-8. Les degrés de saturation dans les couches de matériaux fins des colonnes 5, 8 et 9 déduites au RDT sont plus basses que celles anticipées. On remarque aussi que les mesures de degrés de saturation diminuent dans la temps pour la colonne 5, phénomène probablement relié à un mauvais fonctionnement de la sonde RDT. Le plus faible degré de saturation dans le résidu Sigma grossier de la colonne 4 situé sous le résidu Sigma grossier amendé à de la bentonite (≈84%). Les degrés de saturation observés dans les couches de sable se situent entre 20 et 55%. Les couches de sable supérieures des colonnes 8 et 9 (montées lâches), montrent une augmentation de la saturation jusqu'à 80% une heure après le début du cycle pour tendre vers une valeur de S_r proche de la saturation résiduelle après les premiers 24 heures. On remarque aussi un phénomène unique à la colonne 3 : la couche de sable du bas de la cette dernière est demeurée saturée pendant les 5 premiers mois des essais, jusqu'à ce que des sacs d'azote soient installés à chaque colonne dans le but de faciliter le drainage de la couche de sable en équilibrant la pression des gaz.

Le suivi des degrés de saturation montre la bonne concordance entre les valeurs prédites par les simulations (section 3.1.1) et celles mesurées.

3.1.3 Caractéristiques au démontage

Lors du démontage, les couches de certains matériaux étaient très denses. La couche capillaire de chaque colonne était visiblement très saturée. Les 5 premiers cm des couches de sable supérieures avaient atteint leur teneur en eau résiduelle et cette teneur en eau augmente en profondeur. Concernant la couche de sable du bas, la teneur en eau était constante sur toute l'épaisseur de la couche. Enfin, les degrés de saturation pour la couche de résidu minier Manitou se situaient entre 50 et 90% tel que présenté au tableau 3-4. Les valeurs de porosité n, les indices des vides e, les teneurs en eau massiques w, les poids volumiques sec γ_d, et les degrés de saturation S_r des matériaux au montage et au

démontage y sont présentés. Les teneurs en eau volumiques θ ont été obtenues à partir des teneurs en eau massiques *w* réalisés à intervalles de 5 cm (voir section 2.3.3), selon l'équation $\theta = w(1-n)D_r$. Des tassements se sont produits, qui sont reliés à des porosités plus faibles au démontage, en particulier pour les couches capillaires des colonnes 8 et 9 (colonnes lâches) où le tassement mesuré (7 et 4 cm respectivement) correspond à une diminution d'environ 8 à 10 % de la porosité.

Il faut aussi noter que la colonne 1 était trop dense et trop friable pour permettre une mesure de la porosité dans le matériau. La porosité utilisée pour calculer le degré de saturation correspond donc à celle obtenue lors du montage des colonnes.

De plus, dans la colonne 4, le résidu Sigma amendé avait un haut degré de saturation (100%) contrairement à la couche de Sigma grossier située en-dessous (84%). L'effet de la couche de bentonite semble avoir limité l'apport en eau dans la couche inférieure.

Enfin, lors du démontage de la colonne 5, on s'est aperçu que la tige supérieure de la sonde était insérée dans la couche de sable supérieure. Ceci explique les fortes variations de la teneur en eau observées à chaque début de cycle (figure 3.8). Les données recueillies à la sonde RDT pour cette colonne ne sont donc pas représentatives des vrais degrés de saturation dans le résidu Sigma fin.

3.1.4 Discussion

Le profil de barrière capillaire est observé dans les résultats expérimentaux et vient confirmer les résultats des simulations sur SEEP/W. Toutefois, la condition hydrostatique, qui peut être longue à atteindre dans certains cas (i.e. colonne 4) en raison du drainage lent de la couche de sigma amendé qui est contrôlé par la faible conductivité à saturation de la bentonite, comporte certaines implications. En effet, cela signifie que la quantité d'eau à drainer à la base de la couverture est réduite, puisqu'une partie de cette eau peut se drainer latéralement dans la couche de sable ou s'évaporer. Il faut rappeler ici que l'infiltration d'eau est peu limitée dans un système unidimensionnel,

alors que dans un système bidimensionnel, l'eau de percolation peut-être évacuée grâce à l'inclinaison des couches drainantes supérieures et inférieure.
Par ailleurs, une mauvaise estimation de la porosité de la couche fine peut modifier le degré de saturation puisque $S_r = V_w/V_v$ et $V_v=n^*V_t$ où V_w est le volume de l'eau, V_v est le volume des vides, n est la porosité (V_v/V_t) et V_t le volume total.

Les teneurs en eau massiques obtenues lors du démontage ont montré que les couvertures des colonnes 5, 8 et 9 se comportaient aussi bien que les colonnes 1 à 3 (voir tableau 3-4). La mise en place hydraulique ne serait donc pas défavorable à la performance des couvertures.

3.2 DIFFUSION D'OXYGÈNE DE L'OXYGÈNE

Les coefficients de diffusion et leurs flux d'oxygène respectifs sont présentés ici dans le but d'évaluer la capacité des couvertures à limiter le passage de l'oxygène.

3.2.1 Coefficients de diffusion effectif

Le tableau 3-1 montre que les coefficients de diffusion estimés à partir de l'équation proposée par Millington et Shearer modifiée par Collin et Rasmuson (1988) (équation 1.25) à partir des valeurs de S_r présentées au tableau 3-4, varient entre $2{,}44\text{x}10^{-8}$ m^2/s pour la colonne 1 et $5{,}42\text{x}10^{-10}$ m^2/s pour la colonne 3.

3.2.2 Calculs de flux d'oxygène

Des solutions numériques et analytiques à la seconde loi de Fick pour déterminer le flux de diffusion de l'oxygène à travers un matériau, en régime transitoire, ont déjà été introduites à la section 1.2.2.1. Les résultats des simulations obtenues avec les solutions de Crank (1975) et Rowe et al., (1994) calculées avec les valeurs de D_e montrées au tableau 3-1, sont présentés à la figure 3.10. Les courbes présentées simulent une

augmentation du flux en fonction du temps, pour se stabiliser lorsque l'équilibre est atteint, soit lorsque le gradient de concentration en fonction de la profondeur devient constant.

Tableau 3-1 :Coefficients de diffusion estimés pour les colonnes 1 à 9 calculés à partir de l'équation de Millington et Schearer modifiée par Collin

colonne	matériau	L (m)	n	Sr (%)	y	x	D_e (m^2/s)	θ_{eq}
1	Sigma grossier	0,6	0,46	90	0,6763	0,5853	$5,691x10^{-9}$	0,0460
2	Till	0,6	0,39	93	0,6657	0,5758	$1,36x10^{-10}$	0,0273
3	Sigma fin	0,3	0,44	95	0,5724	0,6772	$5,42x10^{-10}$	0,0220
4	Sigm amen/gros	0,3	0,455	91	0,6763	0,5830	$3,45x10^{-9}$	0,0409
5	Sigma fin	0,92	0,455	97	0,6819	0,5659	$1,01x10^{-10}$	0,0136
8	Sigma grossier	0,73	0,37	95	0,6634	0,5699	$4,54x10^{-10}$	0,0185
9	Sigma fin	0,76	0,47	92	0,6801	0,5814	$2,49x10^{-9}$	0,0376

Les courbes calculées analytiquement montrent le temps nécessaire au flux d'oxygène pour atteindre le régime permanent dans le bas de la couche alors que les courbes obtenues avec la solution numérique permettent de suivre l'évolution des flux d'oxygène pour le haut et le bas de la couche. Pour déterminer le flux à l'interface couverture-résidus avec Pollute, on simule une couche d'épaisseur δz (très petit) à la position d'intérêt, pour obtenir le gradient de concentration correspondant $(C_o-C_L)/\delta z$ à travers cette dernière. On calcule ensuite le flux correspondant à cette épaisseur.

Le tableau 3-2, où les résultats des 2 solutions sont comparés puis validés par l'équation du flux stationnaire (équation 1.31), montre que les flux d'oxygène varient de 4 ordres de grandeur. C'est la colonne 5 qui est la plus efficace avec un flux de 9,55 x 10^{-4} $kg/m^2/an$. Celle-ci avait le degré de saturation le plus élevé et la couche à rétention capillaire la plus épaisse. Les colonnes 2 et 8 suivent ensuite, avec des flux d'oxygène de 1 ordre de grandeur supérieur soit de 1,98 x 10^{-3} et de 5,42 x 10^{-3} $kg/m^2/an$

respectivement. Les flux calculés pour les colonnes 3, 9 et 1 sont de 1,57 x 10^{-2}, 2,85 x 10^{-2} et 8,26 x 10^{-2}kg/m^2/an respectivement. Finalement, la colonne 4 a le flux le plus faible avec 1 x 10^{-1} kg/m^2/an.

Tableau 3-2 : Flux stationnaires calculés avec la solution analytique de Crank et la solution numérique de Pollute

Colonne/ Matériau	Flux selon la solution de Crank (kg/m^2/an)	Flux calculé avec Pollutev6 (kg/m^2/an)	Flux stationnaire $F = D_e(C_o/L)$ (kg/m^2/an)
1-Sigma grossier	8,26 x 10^{-2}	8,30 x 10^{-2}	8,26 x 10^{-2}
2-Till	1,98 x 10^{-3}	1,94 x 10^{-3}	1,98 x 10^{-3}
3-Sigma fin	1,57 x 10^{-2}	1,59 x 10^{-2}	1,57 x 10^{-2}
4-Sigma amen/gros	1,00 x 10^{-1}	1,01 x 10^{-1}	1,01 x 10^{-2}
5-Sigma fin	9,55 x 10^{-4}	9,69 x 10^{-4}	9,56 x 10^{-4}
8-Sigma fin	5,42 x 10^{-3}	5,47 x 10^{-3}	5,42 x 10^{-3}
9-Sigma grossier	2,85 x 10^{-2}	2,85 x 10^{-2}	2,85 x 10^{-2}

Tableau 3-3 : Comparaison entre les différents flux stationnaires et l'atteinte du régime permanent de chacune des couvertures

Colonne/ Matériau	L (m)	Sr %	Flux stationnaire (kg/m^2/an)	Atteinte du régime permanent (jours)
1-Sigma grossier	0,6	90	8,26E-02	49
2-Till	0,6	93	1,98E-03	530
3-Sigma fin	0,3	95	1,57E-02	29
4-Sigma amendé	0,3	84	1,01E-01	8
5-Sigma fin	0,92	97	9,56E-04	1029
8-Sigma fin	0,73	95	5,42E-03	231
9-Sigma grossier	0,76	92	2,85E-02	92

Les différents flux stationnaires calculés pour chacune des couvertures sont illustrés et comparés graphiquement à la figure 3.11. Le tableau 3-3 montre le temps nécessaire à l'atteinte du régime permanent. Ces résultats confirment l'importance du degré de saturation et de l'épaisseur L de la barrière de recouvrement sur le flux d'oxygène (Aachib, 1993, Aubertin et al., 1997). En effet, ces données indiquent qu'une variation d'un ordre de grandeur dans la valeur du flux d'oxygène modifie grandement l'atteinte du régime permanent. Par exemple, dans le cas de la couverture 5, le régime permanent serait atteint au bout de 1029 jours alors que dans le cas de la 8, cela prendrait 231 jours. La colonne 4, quant à elle, atteindrait le régime permanent au bout de 8 jours seulement.

3.3 DERNIÈRES REMARQUES

D'après les résultats des données expérimentales et des simulations numériques, le phénomène de bris capillaire apparaît donc clairement pour chaque colonne. Les résultats des essais en colonne confirment les résultats obtenus sur SEEP/W et indiquent que la couche capillaire demeure proche de la saturation (S_r>90%) durant toute la période des essais, alors que les couches de sables supérieures et sous-jacentes se drainent jusqu'à une teneur en eau plus faible.

Les calculs réalisés à partir des solutions numériques (Pollute v6) et analytiques (Crank) ont montré que les couvertures sont efficaces pour limiter la diffusion de l'oxygène vers les résidus réactifs. La réduction du flux d'oxygène à travers la couverture entraîne une réduction de la production d'acide.

Au chapitre suivant, on montre que d'un point de vue géochimique, les couvertures ont également bien joué leur rôle.

Tableau 3-4: Caractéristiques des matériaux des colonnes

a) Caractéristiques des matériaux de la colonne 1

	Montage					Démontage				
Matériau	**Porosité** n	e	w (%) moyen	γ_d	Sr	**Porosité** n	e	w (%) moyen	γ_d	Sr
Sable	0,29	0,41	3	2,04	20,5	0,29	0,41	2	2,04	13,5
Sigma gros	0,46	0,87	11,2	1,69	36,0	0,46	0,87	25,9	1,69	90
Sable	0,29	0,4	3	2,05	20,9	0,29	0,4	4	2,05	28,3
Manitou	0,43	0,75	4,4	1,7	16,6	0,42	0,72	19	1,66	75,4

b) Caractéristiques des matériaux de la colonne 2

	Montage					Démontage				
Matériau	**Porosité** n	e	w (%) moyen	γ_d	Sr	**Porosité** n	e	w (%) moyen	γ_d	Sr
Sable	0,29	0,42	6,5	1,96	42,9	0,29	0,41	3,34	1,96	23,7
Till	0,49	0,96	25,85	1,4	73,6	0,40	0,68	22,8	1,67	93
Sable	0,3	0,43	8,2	1,95	53,4	0,3	0,43	4,79	1,95	31,6
Manitou	0,425	0,74	18,3	1,64	70,4	0,43	0,74	17,9	1,64	69,1

c) Caractéristiques des matériaux de la colonne 3

	Montage					Démontage				
Matériau	**Porosité** n	e	w (%) moyen	γ_d	Sr	**Porosité** n	e	w (%) moyen	γ_d	Sr
Sable	0,33	0,48	8,50	2,05	48,8	0,33	0,48	1,53	2,05	8,68
Sigma fin	0,44	0,8	9,3	1,72	32,6	0,44	0,8	26,6	1,56	95,2
Sable	0,3	0,42	4,6	2,05	30,2	0,3	0,42	3,77	2,05	24,6
Manitou	0,44	0,8	5,07	1,67	18,0	0,43	0,76	15,8	1,62	59

d) Caractéristiques des matériaux de la colonne 4

	Montage					Démontage				
Matériau	**Porosité n**	**e**	**w (%) moyen**	**γ_d**	**Sr**	**Porosité n**	**e**	**w (%) moyen**	**γ_d**	**Sr**
Sable	0,27	0,37	4,6	2,03	34,7	0,27	0,37	2,85	2	22,3
Sigma amendé	0,54	1,17	16,9	1,3	40,8	0,465	0,87	29,25	1,51	100
Sigma gros	0,5	1,02	11	1,39	30,2	0,45	0,82	25,96	1,54	84,2
Sable	0,28	0,39	4,2	2,01	30,7	0,28	0,38	5,00	1,39	37,0
Manitou	0,41	0,69	4,8	1,69	19,8	0,44	0,78	17,09	1,6	62,5

e) Caractéristiques des matériaux de la colonne 5

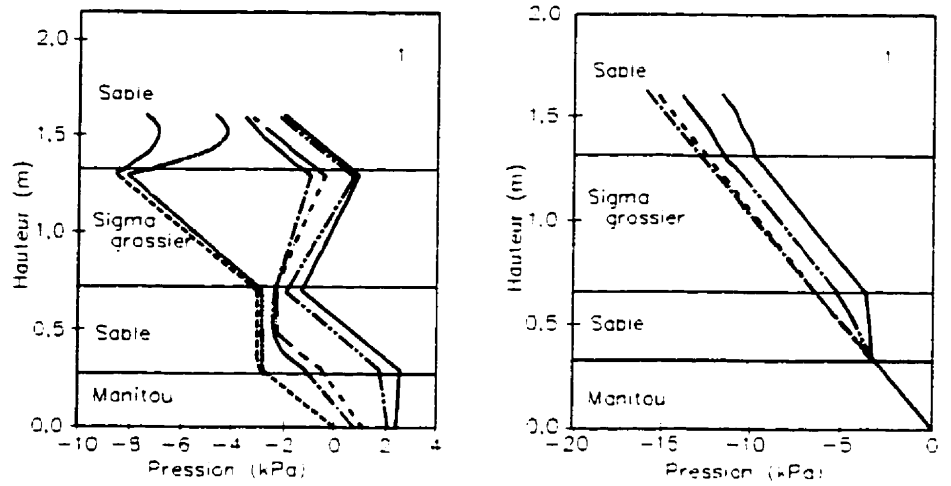
	Montage					Démontage				
Matériau	**Porosité *n***	***e***	***w (%)* moyen**	**γ_d**	***Sr***	**Porosité *n***	***e***	***w (%)* moyen**	**γ_d**	***Sr***
Sable	0,275	0,38	3,9	2,01	28,5	0,275	0,38	2,29	2,01	16,8
Sigma fin	0,47	0,89	10,4	1,49	33	0,455	0,83	27,8	1,53	97
Sable	0,312	0,45	3,9	1,91	23,9	0,312	0,45	4,59	1,91	28,1
Manitou	0,425	0,74	4,39	1,64	19	0,396	0,65	18,69	1,72	81,3

f) Caractéristiques des matériaux de la colonne 8

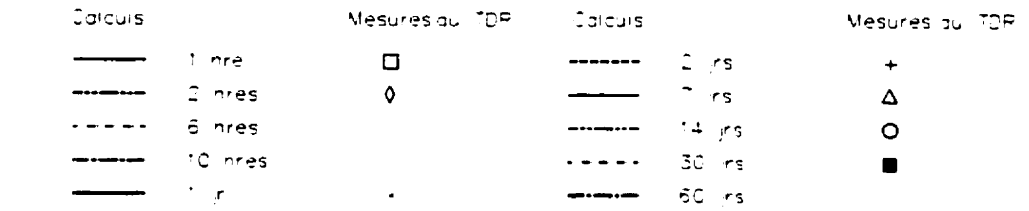
	Montage					Démontage				
Matériau	**Porosité *n***	***e***	***w (%)* moyen**	**γ_d**	***Sr***	**Porosité *n***	***e***	***w (%)* moyen**	**γ_d**	***Sr***
Sable	0,42	0,71	1,63	3,23	32,6	0,37	0,6	2,7	1,63	12,8
Sigma fin	0,56	1,26	1,24	10,17	21,5	0,45	0,81	27,58	1,55	95
Sable	0,34	0,52	1,83	3,23	13,9	0,37	0,6	4,87	1,83	23
Manitou	0,57	1,32	1,23	4,47	10,9	0,438	0,78	24,6	1,60	89,2

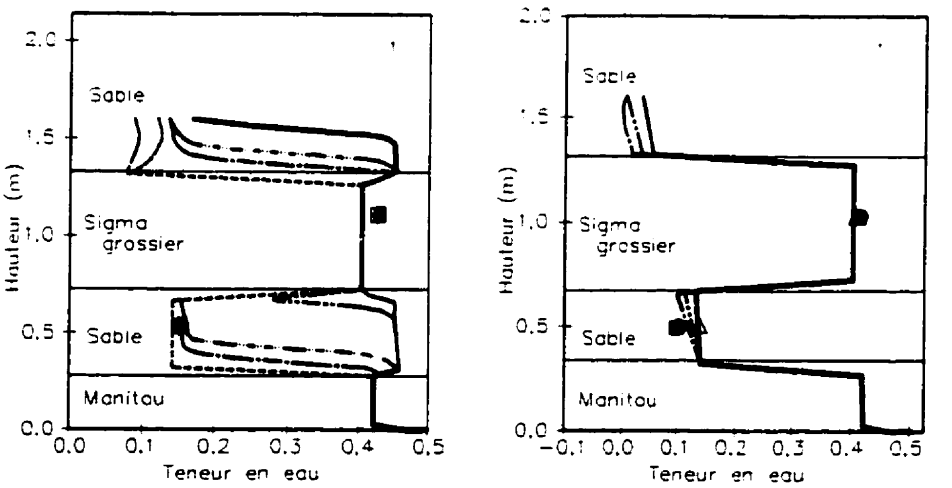
g) Caractéristiques des matériaux de la colonne 9

	Montage					Démontage				
Matériau	**Porosité** n	e	w (%) **moyen**	γ_d	Sr	**Porosité** n	e	w (%) **moyen**	γ_d	Sr
Sable	0,37	0,6	7	1,87	12,7	0,37	0,6	2,31	1,87	8,87
Sigma fin	0,55	1,22	9,3	1,40	22,7	0,47	0,87	28,54	1,51	91,5
Sable	0,37	0,6	3	1,79	17,4	0,37	0,6	11,9	1,79	64
Manitou	0,53	1,15	4,4	1,39	9,6	0,44	0,78	17,1	1,6	61



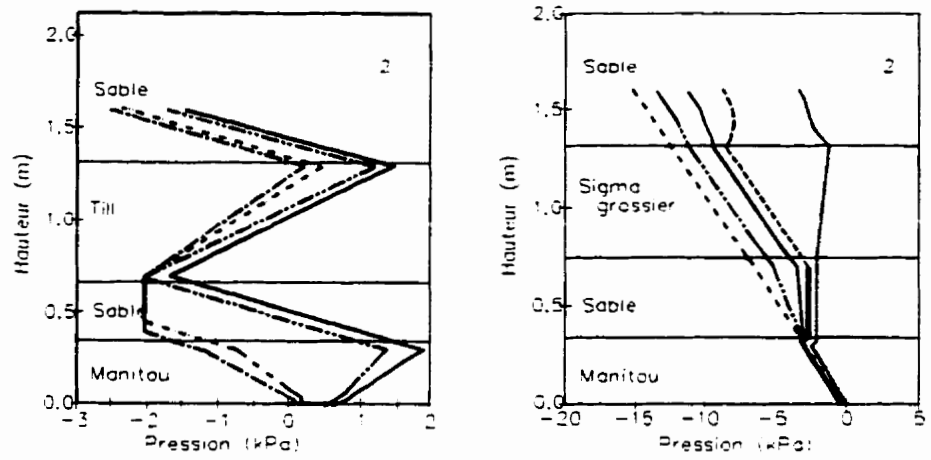
a) Profil de pression



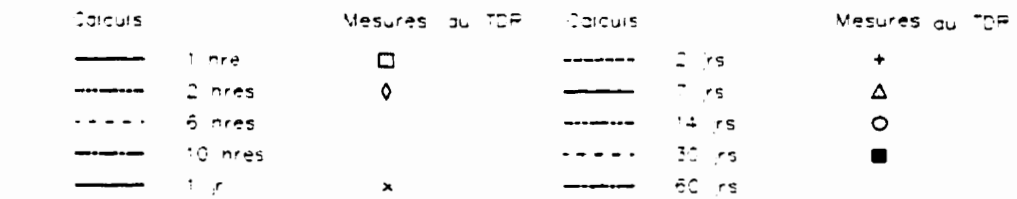


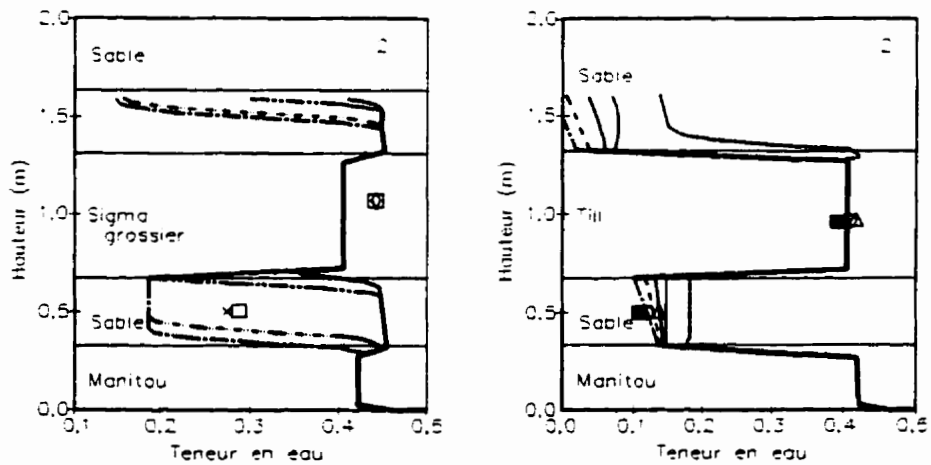
b) Profil de teneur en eau

Figure 3.1 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 1



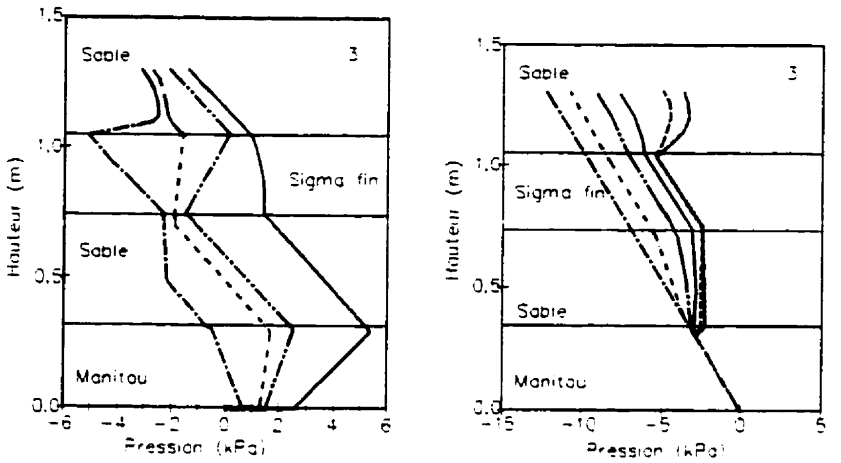
a) Profil de pression



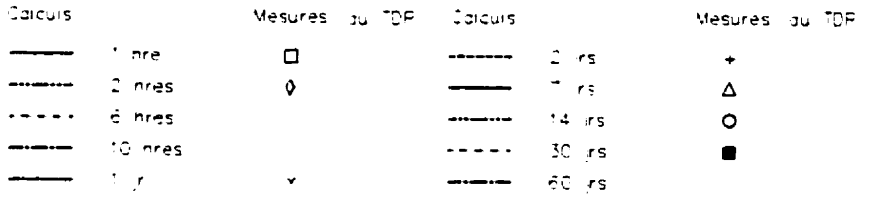


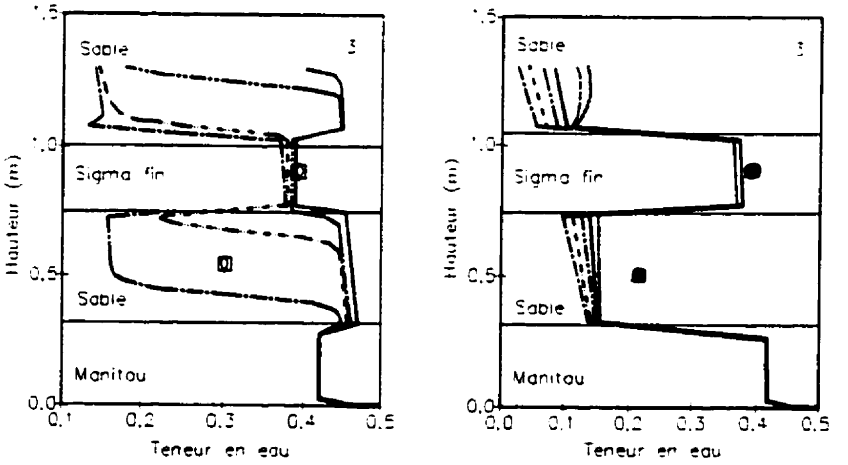
b) Profil de teneur en eau

Figure 3.2 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 2



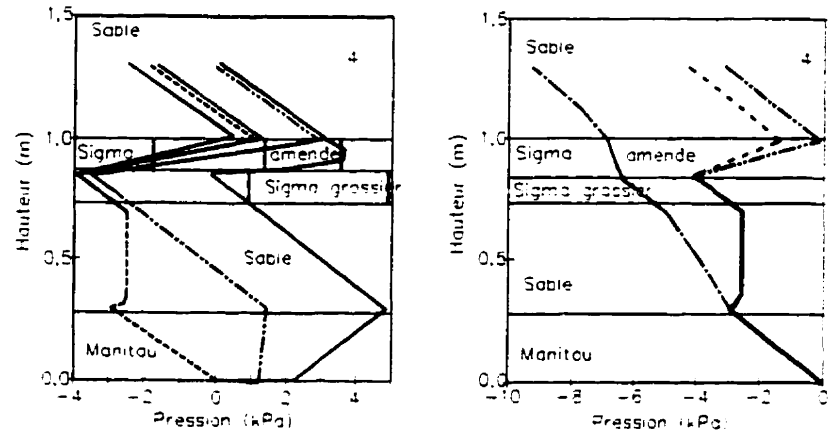
a. Profil de pression



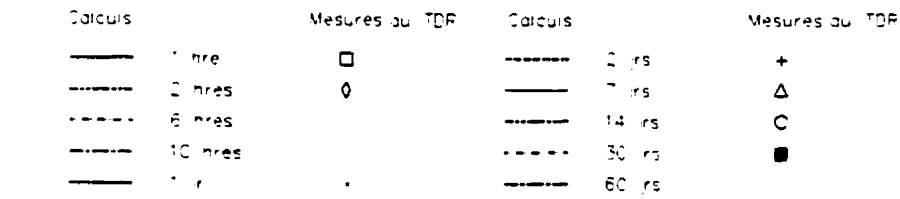


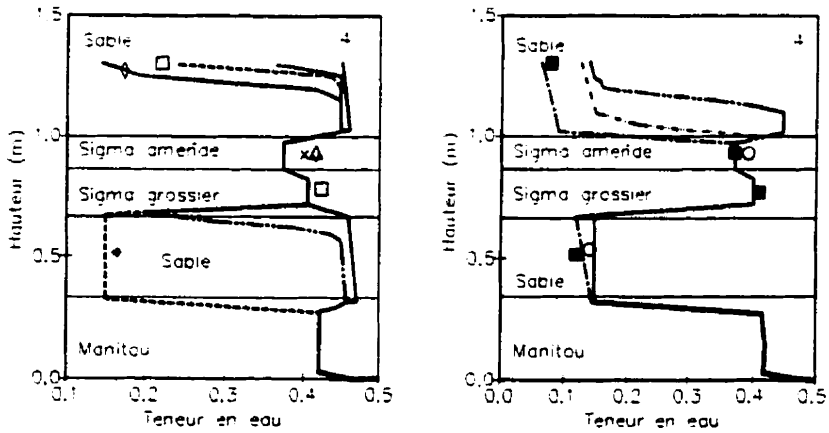
b) Profil de teneur en eau

Figure 3.3 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 3



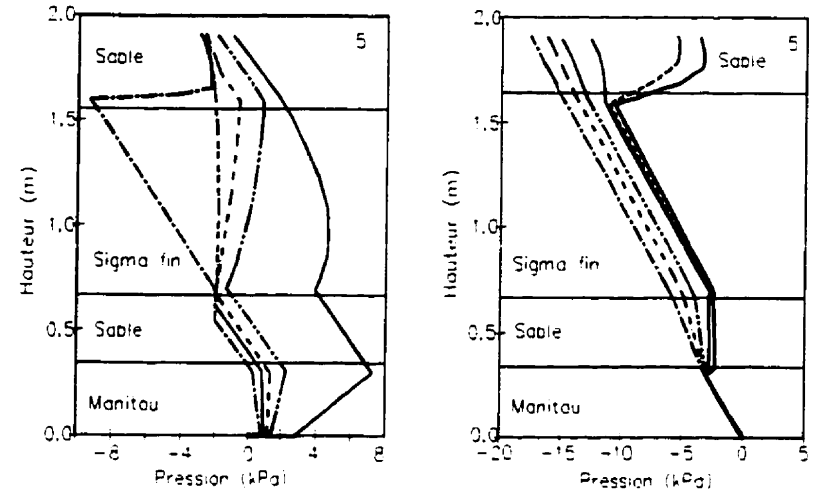
a) Profil de pression



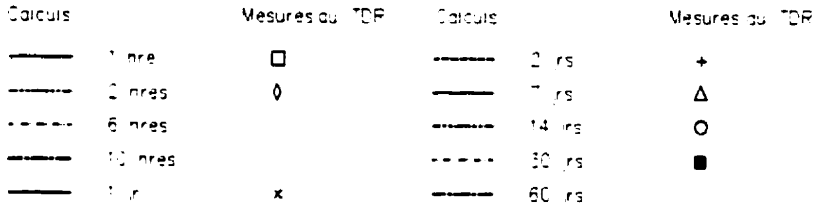


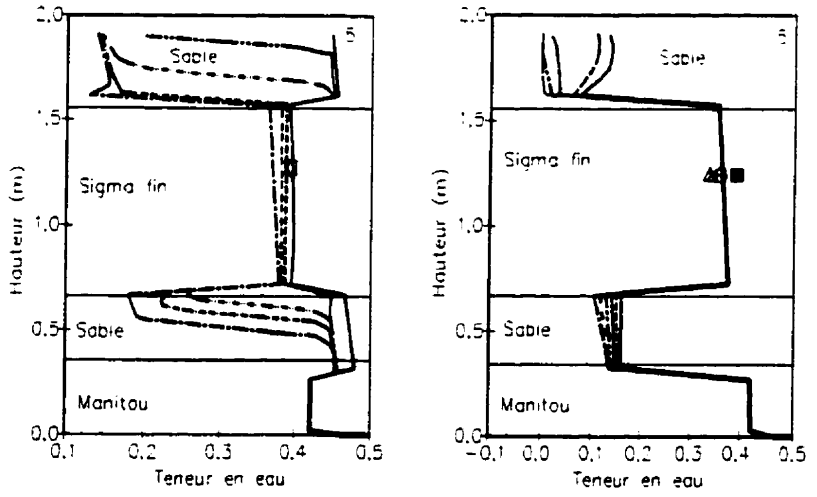
b) Profil de teneur en eau

Figure 3.4 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 4



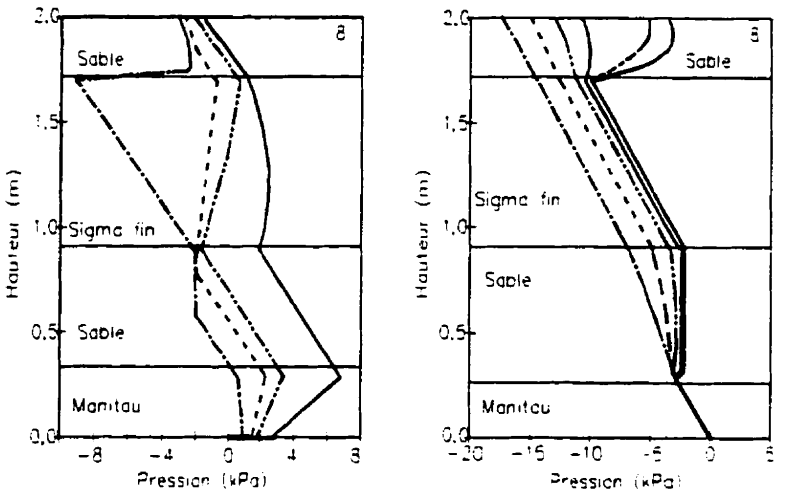
a) Profil de pression



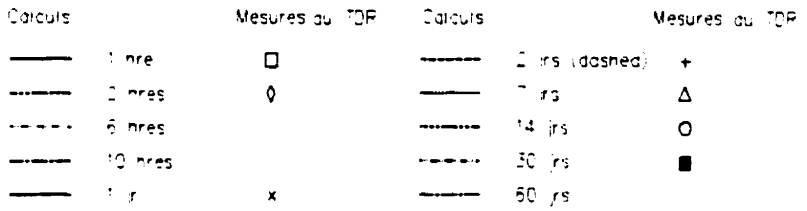


b) Profil de teneur en eau

Figure 3.5 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 5



a) Profil de pression



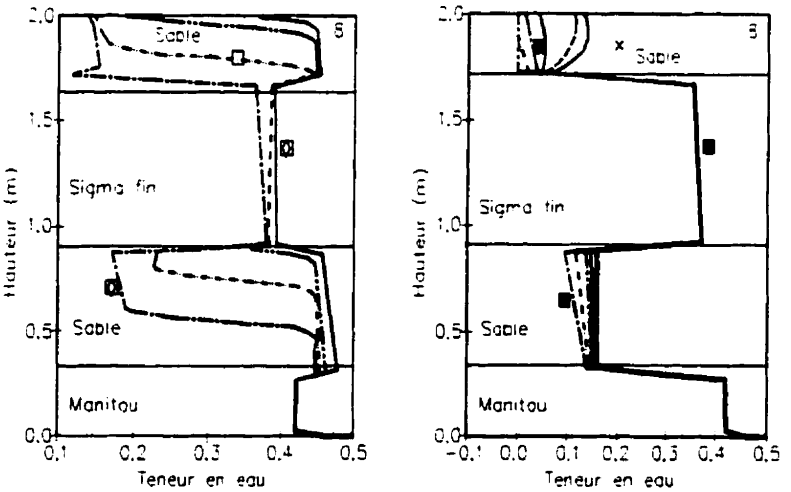
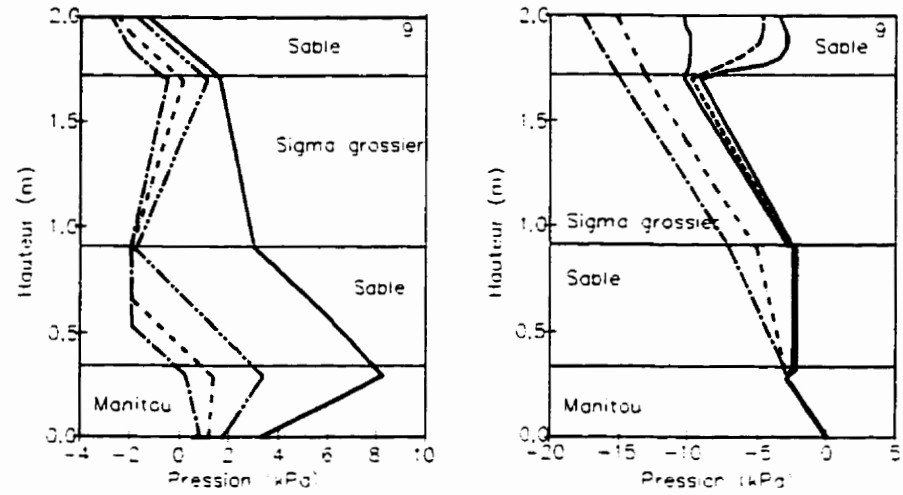
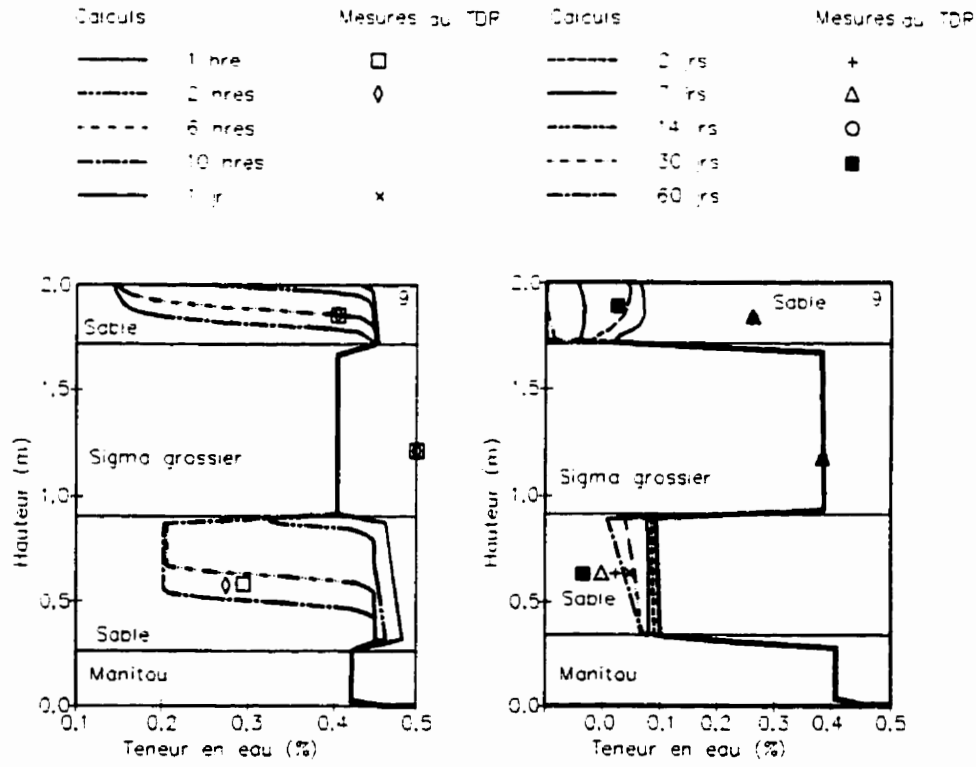


Figure 3.6 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 8

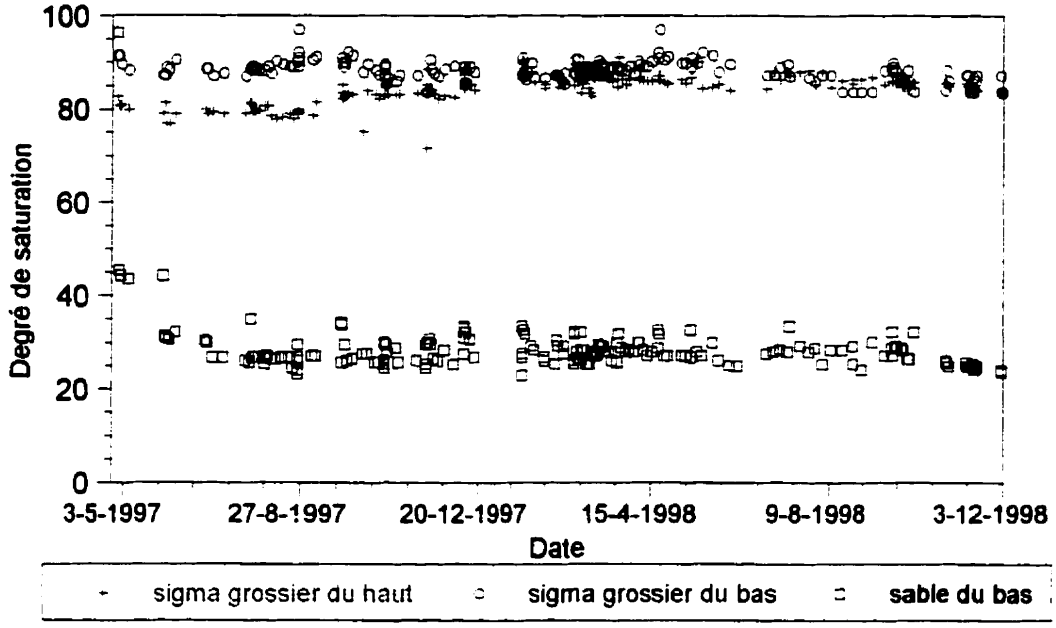


a) Profil de pression

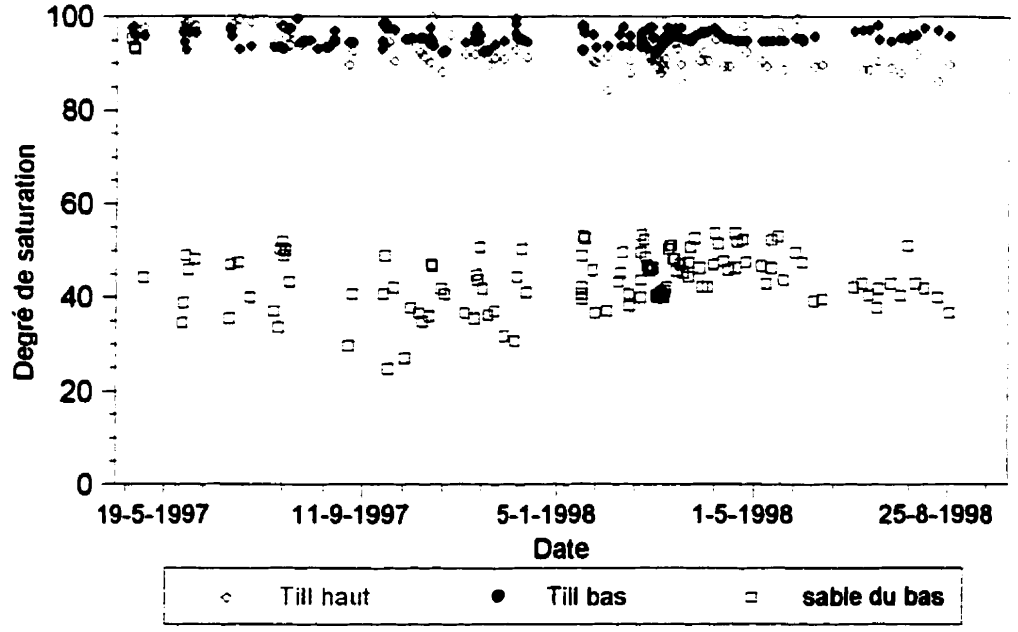


b) Profil de teneur en eau

Figure 3.7 : Profil de pression et de teneur en eau pour la colonne 9

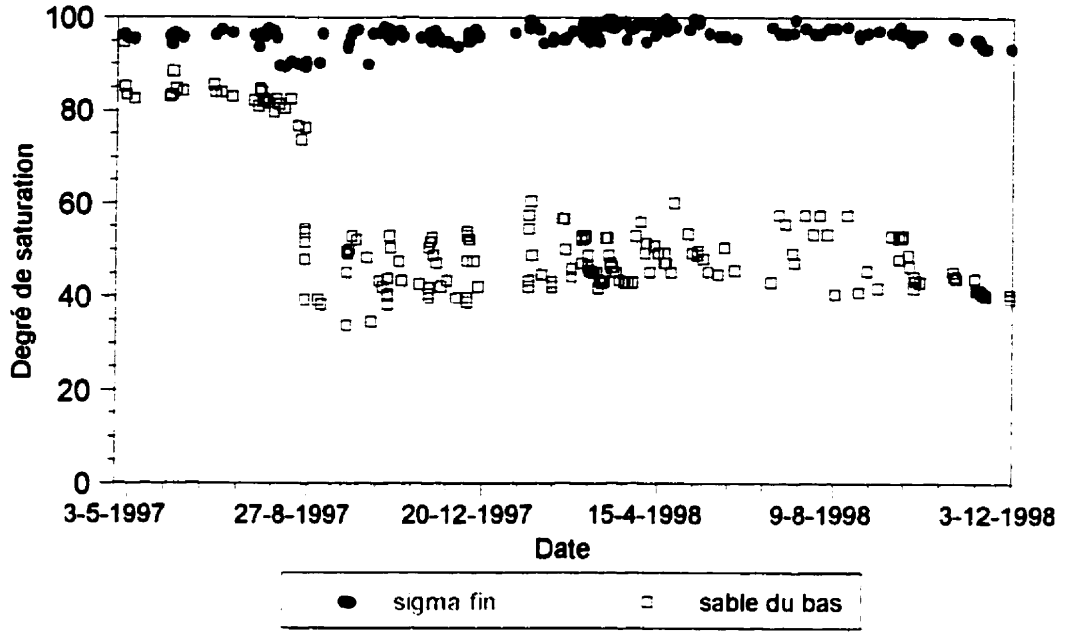


a) Évolution du degré de saturation dans les différentes couches de la colonne 1

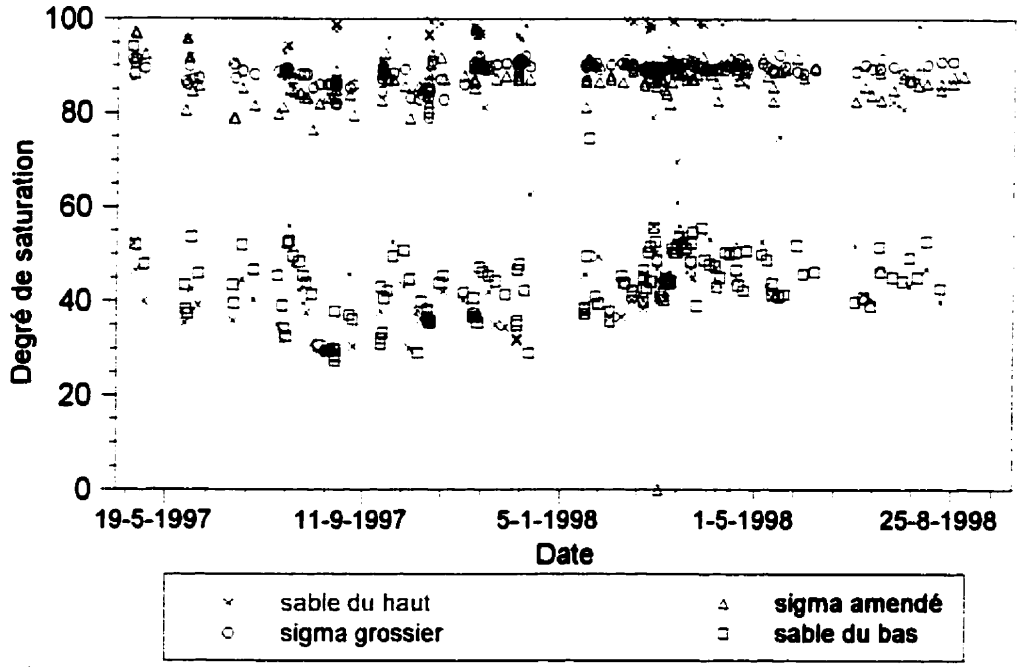


b) Évolution du degré de saturation dans les différentes couches de la colonne 2

Figure 3.8 : Évolution du degré de saturation pour les différentes couches des couvertures telles que mesurées à l'aide des sondes RDT corrigées après calibration

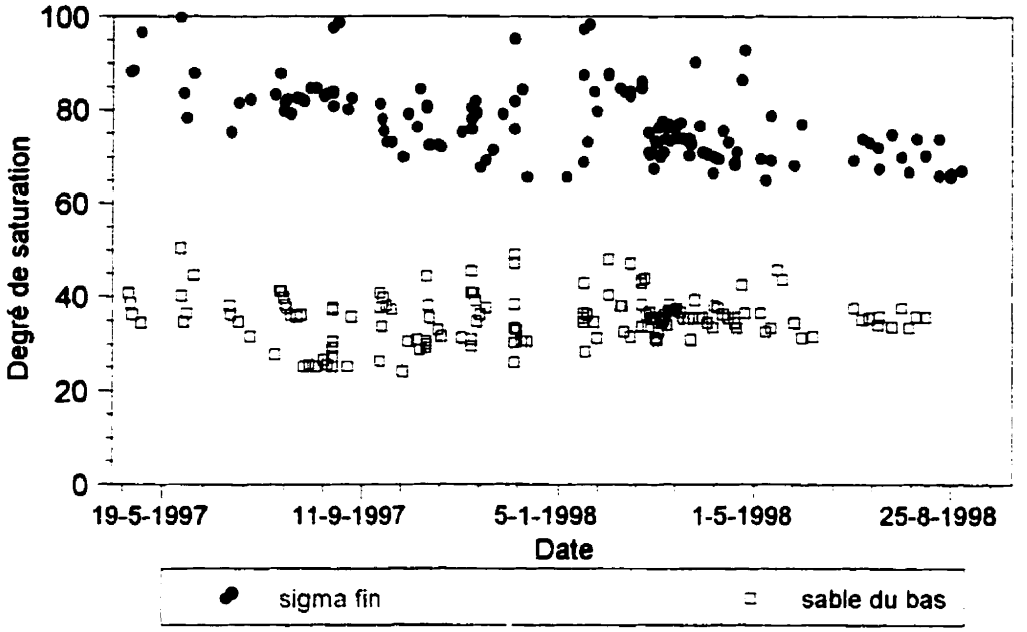


c) Évolution du degré de saturation dans les différentes couches de la colonne 3

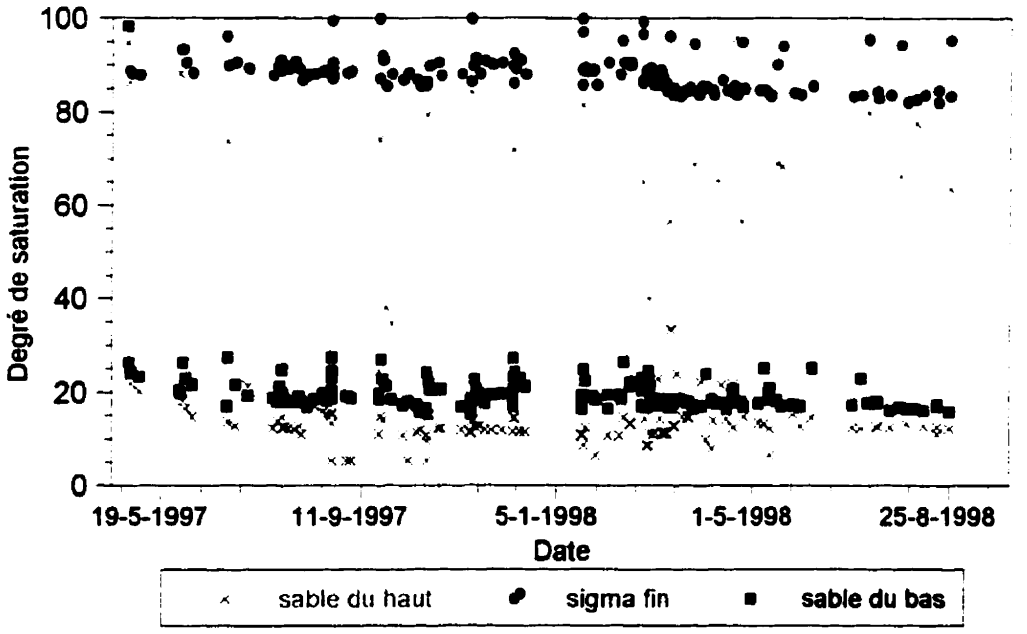


d) Évolution du degré de saturation dans les différentes couches de la colonne 4

Figure 3.8 (suite): Évolution du degré de saturation pour les différentes couches des couvertures telles que mesurées à l'aide des sondes RDT corrigées après calibration

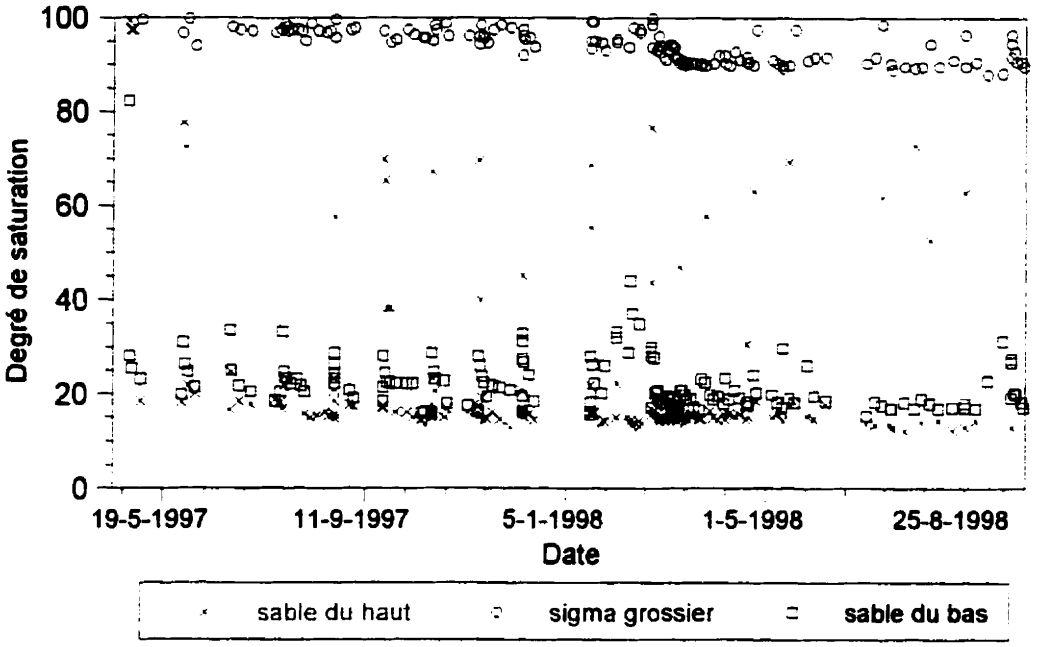


e) Évolution du degré de saturation dans les différentes couches de la colonne 5



f) Évolution du degré de saturation dans les différentes couches de la colonne 8

Figure 3.8 (suite): Évolution du degré de saturation pour les différentes couches des couvertures telles que mesurées à l'aide des sondes RDT corrigées après calibration



g) Évolution du degré de saturation dans les différentes couches de la colonne 9

Figure 3.8 (suite): Évolution du degré de saturation pour les différentes couches des couvertures telles que mesurées à l'aide des sondes RDT corrigées après calibration

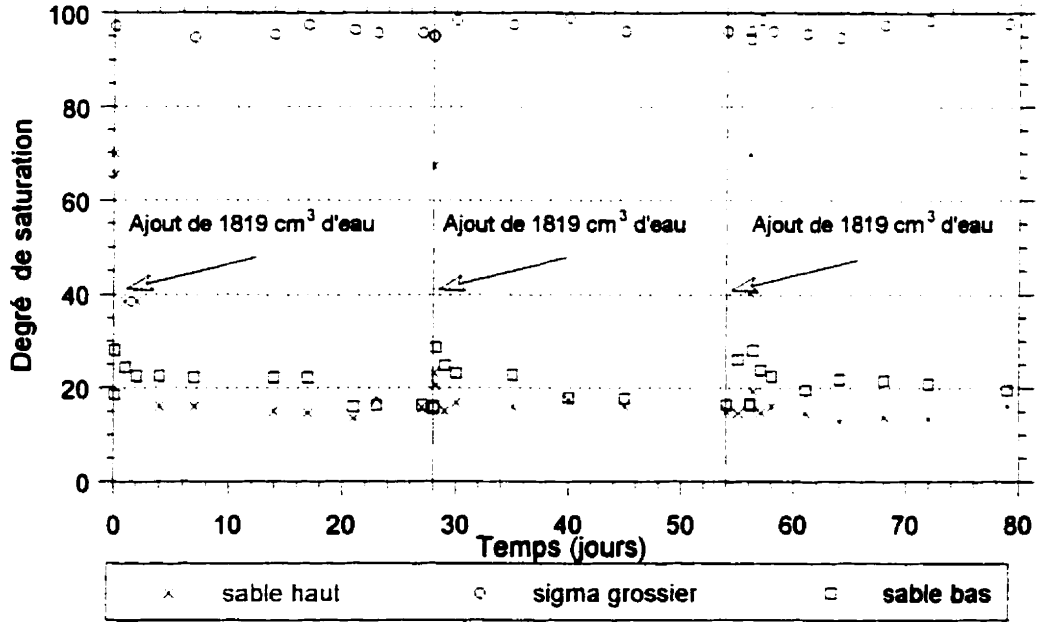
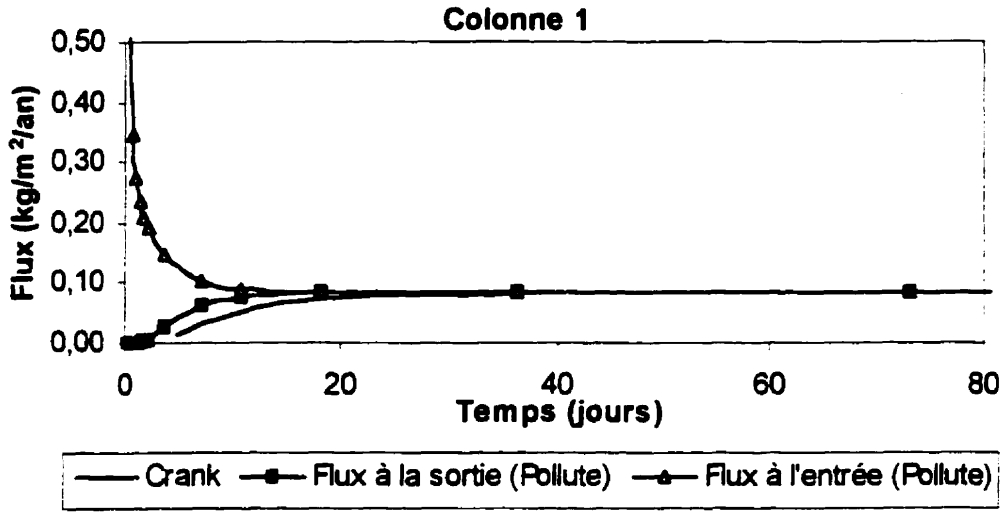


Figure 3.9 : Variation du degré de saturation en fonction du temps pour les cycles 6-7-8 pour les différentes couches de la colonne 9



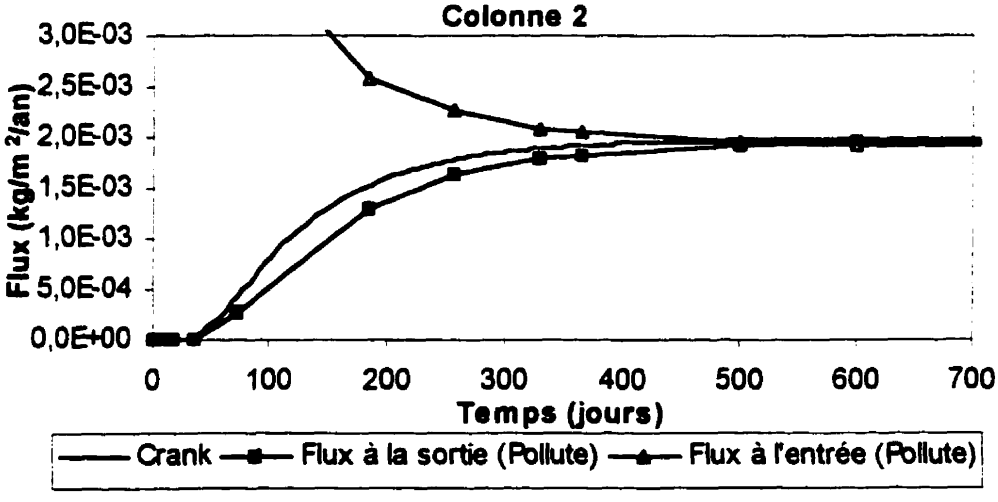
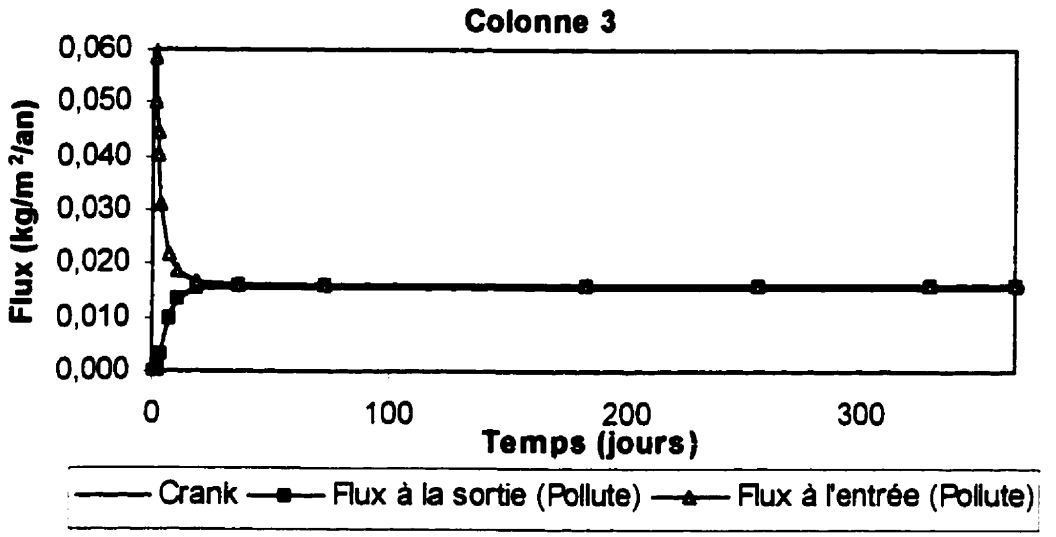


Figure 3.10 : Flux d'oxygène calculé avec la méthode de Crank pour m = 0 à 1000 et avec la solution numérique de Pollute pour les colonnes 1 à 9



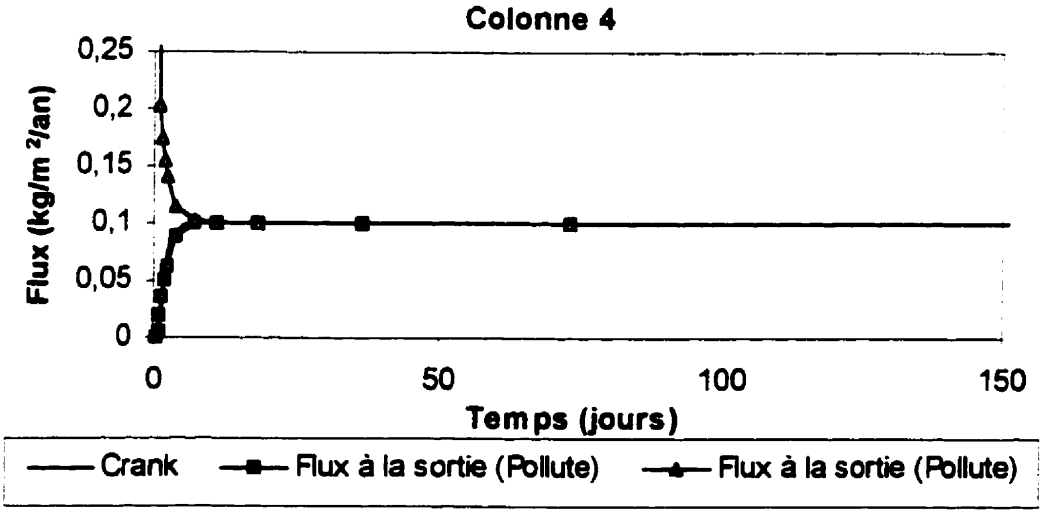
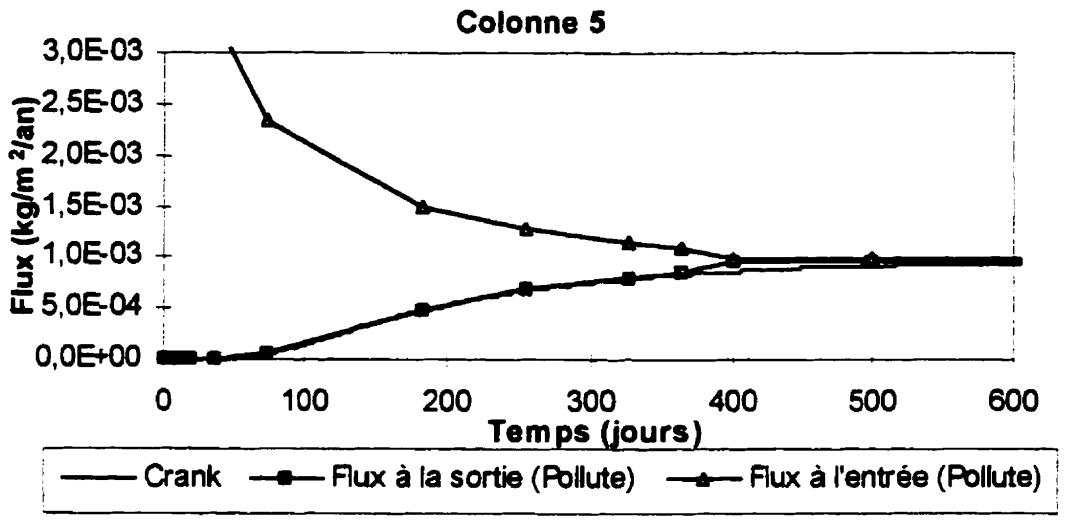


Figure 3.10 (suite) : Flux d'oxygène calculé avec la méthode de Crank pour m = 0 à 1000 et avec la solution numérique de Pollute pour les colonnes 1 à 9



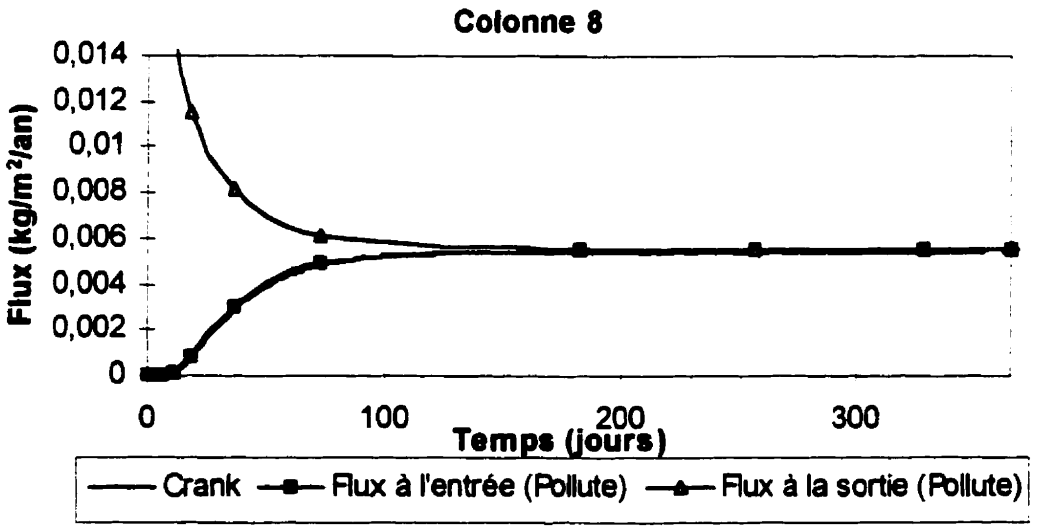


Figure 3.10 (suite) : Flux d'oxygène calculé avec la méthode de Crank pour m = 0 à 1000 et avec la solution numérique de Pollute pour les colonnes 1 à 9

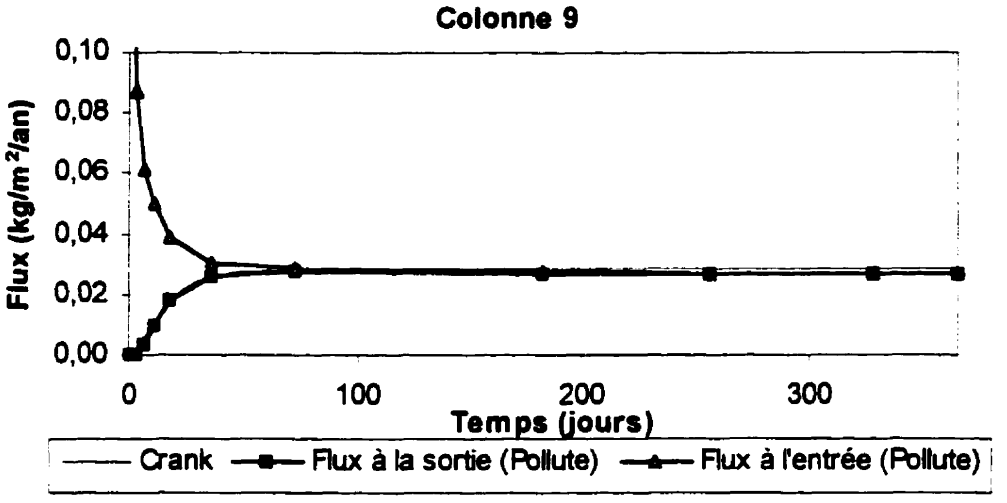


Figure 3.10 (suite et fin) : Flux d'oxygène calculé avec la méthode de Crank pour m = 0 à 1000 et avec la solution numérique de Pollute pour les colonnes 1 à 9

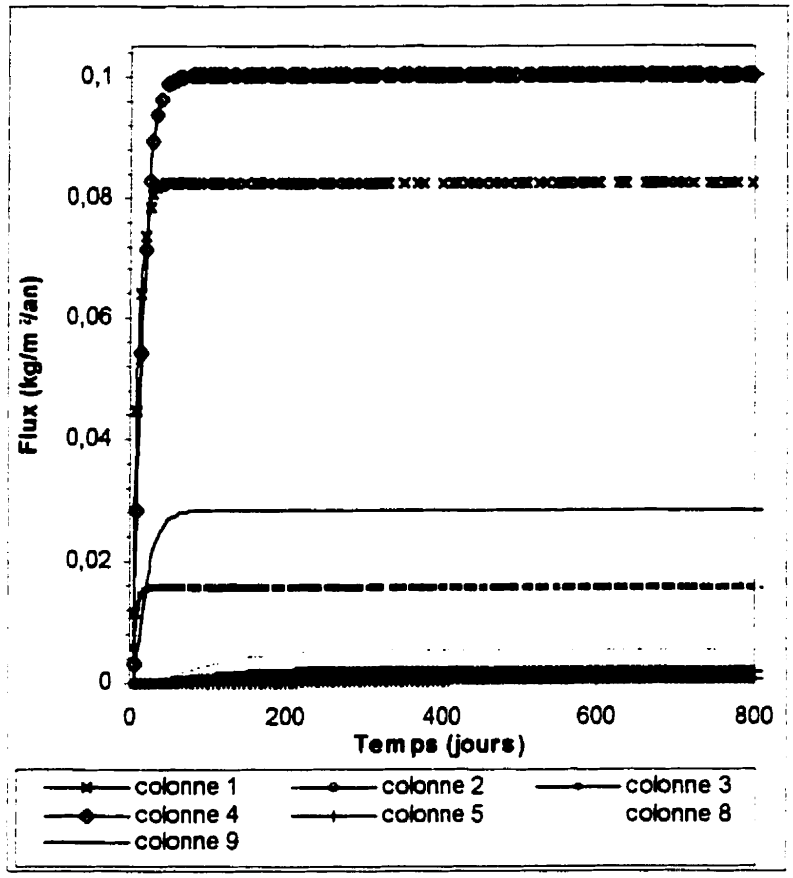


Figure 3.11 :Comparaison entre les flux d'oxygène calculés avec la solution de Crank pour l'ensemble des colonnes

CHAPITRE IV

GÉOCHIMIE ET HYDROGÉOCHIMIE

Le comportement hydrique des couvertures ayant été validé, il importe maintenant d'examiner la performance des couvertures au point de vue géochimique.

Dans ce chapitre, l'hydrogéochimie des eaux de percolation ayant circulées à travers les couvertures et les rejets réactifs est présentée. Suivent ensuite les caractéristiques géochimiques des résidus Manitou après le démontage des colonnes. Enfin, certains résultats d'analyses géochimiques effectuées sur des résidus miniers non recouverts provenant de la cellule expérimentale du site Manitou sont rapportés. Les résultats montrés sont aussi commentés.

4.1 CARACTÉRISTIQUES DES EAUX DE PERCOLATION

Tel que vu à la section 1.1, la production de drainage minier acide, en plus de la baisse du pH, entraîne la lixiviation de divers métaux et des concentrations élevées en sulfates, ces derniers étant des produits de l'oxydation des sulfures. Le suivi des espèces en solution permet en principe d'évaluer l'efficacité des recouvrements à limiter le DMA. À cet égard, l'eau prélevée au bas des colonnes durant les cycles de mouillage et de drainage a été analysée de façon à suivre l'évolution du pH et du Eh, de la conductivité hydraulique et de la teneur en ions (sulfates, fer, cuivre, zinc, calcium et magnésium, voir section 2.3.1). Cette section présente les principaux résultats des analyses pour toute la durée des essais.

Pour le lecteur qui désirerait obtenir des informations supplémentaires sur les données recueillies, l'ensemble des résultats obtenus est disponible sur disquette à l'annexe IV.

4.1.1 Évolution du pH, Eh et de la conductivité

Pour l'ensemble des couvertures (figures 4.1 à 4.7), le pH des eaux de percolation est pratiquement resté neutre entre 6.5 et 8. Le potentiel d'oxydoréduction (Eh) est demeuré stable à des valeurs entre 400 et 500mV (conditions d'oxydation). On note également une baisse de la conductivité électrique; à la fin des essais, les valeurs de conductivité sont restées inférieures à 2000 µS/cm.

4.1.2 Teneurs en métaux et sulfates

Les figures 4.1 à 4.7 montrent que les teneurs en sulfates se maintiennent autour de 5000 mg/L (sans compter les 2 premiers cycles qui correspondent à l'ouverture des valves) pour l'ensemble des colonnes. On observe également que les concentrations en calcium sont demeurées entre 200 et 1000 ppm. Les concentrations en fer et en cuivre sont inférieures à 10 ppm pour toute la durée des essais alors que les concentrations en zinc varient entre 1 et 400 ppm.

Soulignons toutefois les teneurs en sulfates et en magnésium anormalement élevées lors de l'ouverture des valves (lors des premiers cycles) pour les colonnes 1, 2 et 8. Les teneurs en zinc, cuivre et fer suivent la même tendance pour cette période. La corrélation entre les concentrations des ions SO_4^{2-} et Mg^{2+} recueillies dans les eaux de percolation des colonnes 1, 2 et 8 (figure 4.8) suggère la présence d'un sulfate de magnésium soluble. Les analyses par DRX et à la microsonde (voir annexe III) effectuées sur le précipité obtenu par évaporation (dans un verre de montre) des eaux de percolation recueillies pour les 2 premiers cycles des colonnes 1 et 2 ont révélé la présence de l'hexahydrite ($MgSO_46H_2O$) dans ces colonnes (Bernier, 1998). Or, les analyses préliminaires de diffraction aux rayons-X sur le résidu Manitou n'ont détecté la présence d'aucun sulfate de magnésium (Bernier, 1997). Ces colonnes ayant été montées après les autres colonnes (Monzon, 1998), une contamination des colonnes 1, 2 et 8 par l'hexahydrite constituerait une hypothèse plausible quant à la provenance des concentrations anormalement élevées observés pour ces colonnes. L'origine de cette dernière demeure toutefois inconnue.

4.1.2.1 Taux de dissolution des minéraux

À partir de la courbe de dissolution cumulée d'un minéral, il est possible de déterminer à quel moment le minéral s'est complètement dissous. La courbe théorique de dissolution d'un minéral atteint un plateau lorsque ce dernier est épuisé.

Les courbes de dissolution montrées pour la colonne 3 (figure 4.10) et la colonne 5 (figure 4.11) illustrent de faibles taux de dissolution pour la plupart des minéraux, à l'exception du gypse ($CaSO_4•2H_2O$) qui croît de façon linéaire avec le nombre de cycles. Ceci s'expliquerait par une dissolution d'équilibre du gypse. En effet, à chaque nouveau cycle de mouillage, un nouvel équilibre s'établit entre l'eau interstitielle et le gypse où seulement une partie de ce dernier se dissous sous forme d'ions Ca^{2+} et SO_4^{2-}.

Les taux de dissolution calculés pour les colonnes 1 et 8 (figure 4.9 et 4.12) montrent une courbe similaire aux colonnes 3 et 5 en ce qui a trait à la dissolution du gypse. On remarque également que la courbe de $MgSO_4$ est beaucoup plus prononcée que les autres et plafonne après quelques cycles pour les colonnes 1 et 8. Ces résultats supportent l'hypothèse d'une contamination externe par l'hexahydrite pour les colonnes 1, 2 et 8.

4.1.3 Flux d'oxygène estimés avec la méthode des sulfates

Une méthode approchée peut être utilisée pour estimer les flux d'oxygène observés dans les colonnes en fonction de la quantité de sulfates recueillie dans le lixiviat. La méthode proposée par Eberling et al. (1994) (voir aussi Bussière et al., 1997) utilise la quantité de sulfates dans l'eau de drainage des colonnes. En se basant sur la réaction d'oxydation de la pyrite (équation 1.1), la production d'une mole de sulfate (SO_4^{2-}) nécessite 1.75 moles d'oxygène, on peut convertir la quantité de sulfates obtenus en moles d'oxygène. On pose alors l'hypothèse que le seul agent oxydant de la pyrite est l'oxygène et que l'oxygène n'est consommé que par la pyrite. On postule ainsi que les sulfates proviennent exclusivement de l'oxydation des sulfures.

Les résultats présentés à la figure 4.13 montrent des valeurs de flux d'oxygène nettement plus élevés que ceux déduits avec la solution analytique (voir section 3.2). Cette différence est sans doute reliée à la dissolution du gypse. Néanmoins les flux les plus faibles (inférieurs à 1 kg d'$O_2/m^2/an$) estimés pour la colonne 3 sont consistants avec les analyses des sulfates en solution de cette colonne. Les flux d'oxygène estimés pour les colonnes 1, 2 et 8 sont les plus élevés et reflètent les concentrations élevées en ions SO_4^{2-} dues possiblement à une contamination par l'hexahydrite.
Dans ce cas, on ne peut donc pas utiliser cette méthode pour estimer le flux, du moins en présence d'une contamination préalable.

4.1.4 Modélisation avec Minteqa2

Minteqa2 (Allison et al., 1991) a été utilisé pour modéliser les indices de saturation de l'eau de drainage des colonnes 3 et 5 à titre d'exemple.
En général, les indices de saturation (figure 4.14) suggèrent que l'eau interstitielle des colonnes 3 et 5 est sursaturée par rapport à la ferrihydrite ($Fe(OH)_3$) et presque à saturation par rapport au gypse. Ces résultats corroborent les courbes de dissolution du gypse présentées à la section 4.1.2.1, qui indiquent que les solutions étaient en équilibre avec le gypse. De plus, ces résultats sont consistants avec les valeurs de Eh-pH mesurées en laboratoire qui montrent que les échantillons d'eaux de percolation des colonnes 3 et 5 se situent dans le champ de stabilité de la ferrihydrite (figure 4.15).

4.2 CARACTÉRISTIQUES DES RÉSIDUS SULFUREUX

4.2.1 Résultats des analyses géochimiques

Le tableau 4-1 montre les résultats des analyses effectuées sur des échantillons prélevés dans le haut, le milieu et le bas de la couche de résidus Manitou dans les colonnes 2, 4, 5 et 8 lors du démontage. Les résultats, également représentés graphiquement aux figures 4.17 à 4.20, présentent peu de variation entre les échantillons étudiés.

En se basant sur la quantité de sulfates solubles analysés dans le résidu lors du démontage, il est possible d'estimer la quantité de gypse résiduel dans le résidu Manitou pour les colonnes 2, 4, 5 et 8. De plus, avec les courbes de dissolution d'équilibre du gypse, la quantité de gypse lessivé durant toute la période d'essais peut être déterminée. Il est alors possible d'estimer la quantité de gypse initialement présent dans le résidu Manitou de ces colonnes. Le tableau 4-2 indique que le résidu utilisé n'était pas homogène lorsqu'on compare la quantité de gypse lessivé et résiduel. De plus, ce tableau montre qu'il y avait entre 0.8 et 1.76% de gypse initialement dans les colonnes.

Tableau 4-1 : Résultats d'analyses chimiques de roche totale des résidus Manitou des colonnes 2, 4, 5 et 8 effectuées à l'école Polytechnique

Colonne	2	2	2	4	4	4	5	5	5	8	8	8
Profondeur (cm)	0-5	14-18	25-30	0-5	15-20	25-30	0-2	10-15	25-30	0-5	15-20	25-30
SiO_2	70	70	71	70	70	70	70	70	70	70	70	71
Al_2O_3	8,15	8,22	7,90	8,18	8,25	7,96	8,37	8,29	8,08	7,89	7,33	7,61
CaO	0,15	0,14	0,17	0,22	0,17	0,35	0,22	0,40	0,24	0,48	0,33	0,28
MgO	2,86	2,94	2,81	2,96	2,83	2,84	2,96	2,83	2,94	2,84	2,77	2,79
Na_2O	0,17	0,16	0,17	0,18	0,17	0,17	0,18	0,17	0,18	0,21	0,15	0,16
K_2O	1,24	1,18	1,17	1,19	1,25	1,22	1,27	1,27	1,28	1,21	1,13	1,19
Fe(tot)	6,00	5,95	6,00	5,90	6,10	5,82	5,85	6,12	5,67	5,90	6,12	5,81
SO_4	0,02	0,021	0,023	0,038	0,045	ND	0,065	0,274	0,081	0,597	ND	0,363
S(tot)	3,65	3,60	3,55	3,65	3,65	3,75	3,45	4,10	3,55	3,60	4,10	3,50
C	0,10	0,10	0,10	0,10	0,10	0,10	0,10	0,10	0,10	0,10	0,10	0,10
P.A.F.	4,60	4,56	4,49	4,59	4,69	5,37	4,54	4,77	4,73	4,95	5,00	5,03
Cu (ppm)	890	1190	1160	1150	1470	1100	980	1060	1170	1000	1300	1080
Mn (ppm)	220	253	286	269	260	280	255	233	265	295	280	253
Pb (ppm)	140	130	130	140	145	130	145	125	155	145	120	120
Zn (ppm)	660	630	670	680	680	710	670	690	650	630	670	670

Les profondeurs sont exprimées à partir du haut de la couche du résidu. Les résultats sont exprimés en pourcentage poids lorsque ce n'est pas mentionné P.A.F.= Perte au feu, ND= Non détectable

Tableau 4-2 : Pourcentage de gypse lessivé, résiduel et initialement présent dans les colonnes

colonne	% gypse dissous	% gypse résiduel	% gypse initial
2	0.85	0.034	0.884
4	1.2	0.068	1.268
5	1.2	0.227	1.427
8	0.98	0.78	1.76

4.2.2 Discussion

La géochimie des lixiviats récupérés au bas des colonnes 1, 2 et 8 se distingue par les concentrations élevées en ions Mg et SO_4^{2-} qui s'expliqueraient par une contamination externe aux matériaux utilisés dans le montage. Toutefois, ces concentrations élevées en SO_4^{2-} ne sont pas attribuables à une oxydation de la pyrite. En effet, les concentrations en métaux du lixiviat de ces colonnes, outre les teneurs élevées du début, sont pratiquement identiques aux autres colonnes.

Le tableau 4-3 qui résume les principales caractéristiques des réactions cinétiques et d'équilibre, indique que les concentrations en SO_4^{2-} et en Ca^{2-} constantes dans le temps, observées pour chacune des couvertures, résultent de conditions d'équilibre de la solution avec le gypse (Morin et al., 1997).

Tableau 4-3 : Caractéristiques principales les réactions cinétiques vs d'équilibre (d'après Morin et al., 1997)

Cinétique	Équilibre
•Les concentrations aqueuses varient avec le temps	•Les concentrations aqueuses ne varient pas avec le temps
•Les concentrations aqueuses peuvent dépendre du rapport solution/minéraux	•Les concentrations aqueuses sont indépendantes de la quantité de solution et de minéraux
•Si la solution demeure en contact suffisamment longtemps avec les minéraux, l'équilibre sera atteint	•Si lors du drainage, la solution entre en contact avec d'autres minéraux, l'équilibre peut changer, résultant en de nouvelles conditions d'équilibre ou de cinétique

La modélisation d'une solution en équilibre avec du gypse avec le logiciel Minteqa2 (Figure 4.16) confirme également que la chimie des lixiviats des couvertures faisant l'objet de cette étude est contrôlée par la dissolution du gypse. Cette figure montre qu'en

dépit des différentes valeurs de pH, les teneurs en Ca et SO_4^{2-} restent constantes tant que le gypse n'est pas complètement dissous.

Par ailleurs, la présence de gypse dans les résidus rend la corrélation entre la concentration en ions sulfates et le flux d'oxygène (Eberling et al., 1994, Bussière et al., 1997) impossible à établir pour ces essais.

Les résultats démontrent néanmoins que les concentrations analysées dans les eaux de drainage ne sont pas attribuables à l'oxydation de la pyrite. En effet, on anticipe qu'une dissolution complète du gypse suivie de l'oxydation de la pyrite seraient marquées par une augmentation des ions SO_4^{2-}, Fe^{2+} et par une diminution de la concentration en Ca en solution et du pH.

Finalement, la similarité observée entre les résultats des analyses de concentration en éléments pour différentes profondeurs vient appuyer le raisonnement discuté plus haut, en quoi aucune oxydation n'a débuté. Un appauvrissement des éléments en surface accompagné d'un enrichissement en éléments immobiles (comme la silice) expriment généralement un début d'oxydation (Blowes et Ptacek, 1994).

4.3 GÉOCHIMIE DES RÉSIDUS MINIERS SUR LE TERRAIN

Afin de valider la performance des couvertures à limiter le DMA, il est important d'avoir une base comparative. Puisque les résidus des colonnes expérimentales non recouvertes n'ont montré aucun signe d'oxydation (pour les raisons mentionnées à la section 2.2.2), les résidus provenant de la cellule expérimentale non recouverte sur le terrain sont utilisés à cette fin.

Les résultats des analyses minéralogiques et géochimiques effectuées sur les résidus Manitou ainsi que ceux des solutions de rinçage sont présentés et discutés dans les sections qui suivent.

4.3.1 Résultats des analyses minéralogiques des résidus de terrains

Les résultats représentent une analyse semi-quantitative (qualitative) de la composition des échantillons de résidu minier. Cette analyse permet de caractériser les changements minéralogiques majeurs qui se sont produits dans les résidus miniers de Manitou lors de l'oxydation en les contrastant avec les résidus moins oxydés (situés plus profondément). D'après les résultats présentés au tableau 4-4, il y a peu de variation minéralogique entre les échantillons étudiés qui sont principalement constitués de quartz, feldspaths, muscovite, chlorite et pyrite.

Tableau 4-4: Analyse par diffraction au rayons-X des résidus miniers Manitou prélevés sur la cellule expérimentale non recouverte (d'après Bernier, 1998)

Trou	1	1	2	2	3	3	3	3
Profondeur (cm)	0-2	10	0-10	15-20	0-2	25	45	50
Quartz	Ab	Ab	Ab	Ab	Ab	Ab	Ab	Ab
Feldspath	P	P	P	P	P	P	P	P
Muscovite	M	M	P	P	F	F	F	F
Chlorite	M	M	M	M	M	M	M	M
Épidote	F	F	F	P	F	F	F	F
Carbonates	P	P	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr	Tr
Pyrite	P	F	P	P	F	P	P	F
Gypse	P	F	P	F	Tr	Tr	Tr	F

Ab=abondant (30-70%), M=modéré (10-30%), F= faible (5-10%), P=peu (<5%), Tr= trace

4.3.2 Résultats des analyses géochimiques des résidus

Les résultats des analyses des concentrations en éléments effectuées à l'École Polytechnique (tableau 4-5) et au CRM (tableau 4-6) (voir aussi les figures 4.21 à 4.23) indiquent que tous les échantillons de résidus de surface (les plus oxydés) montrent un enrichissement en SiO_2, en TiO_2 et en ZrO_2, des éléments relativement immobiles pour les conditions du système étudié. De plus, les échantillons de surface sont moins riches en éléments volatiles (S, SO_4, CO_2) et présentent des valeurs de perte au feu (PAF) inférieures à celles des échantillons de résidus plus profonds (plus frais). En outre, les échantillons de surface contiennent moins de sulfates solubles (SO_4) que les échantillons plus profonds. Finalement, le pourcentage de soufre total est plus élevé à la surface qu'en profondeur.

À partir des concentrations en soufre total et en sulfates solubles analysés et présentés au tableau 4-6, il est possible de calculer le % de pyrite et de gypse dans les résidus Manitou. Ces derniers, présentés au tableau 4-7 indiquent que le pourcentage de pyrite varie entre 3.45 et 7.34% pour l'ensemble des échantillons ce qui signifie que le résidu n'est pas homogène. Le pourcentage de gypse, quant à lui, varie entre 0.57% et 7.26% et augmente avec la profondeur.

Tableau 4-5: Résultats d'analyses de la roche totale effectuées à l'École Polytechnique sur les résidus Manitou prélevés sur la cellule expérimentale non recouverte

Trou	1	1	2	2	3	3	3	3	Couche
Prof. (cm)	0-2cm	10cm	0-10	15-20	0-2cm	25cm	45cm	50cm	surface
SiO_2	75	72	75	72	75	72	75	72	65
Al_2O_3	7,80	8,21	8,08	7,96	7,70	7,88	7,63	8,39	11,70
CaO	0,28	0,32	0,18	0,39	0,18	0,41	0,45	0,43	0,39
MgO	3,15	3,27	3,12	3,16	3,01	3,00	3,16	3,11	3,58
Na_2O	0,19	0,18	0,17	0,27	0,28	0,28	0,30	0,17	0,28
K_2O	1,20	1,27	1,23	1,22	1,22	1,34	1,15	1,37	2,24
Fe(tot)	5,66	5,75	4,95	5,37	5,48	5,54	5,03	5,31	6,60

Tableau 4-5 (suite): Résultats d'analyses de la roche totale effectuées à l'École Polytechnique sur les résidus Manitou prélevés sur la cellule expérimentale non recouverte

Trou	1	1	2	2	3	3	3	3	Couche
Prof. (cm)	0-2cm	10cm	0-10	15-20	0-2cm	25cm	45cm	50cm	surface
P.A.F.	5,45	8,98	5,41	8,40	5,05	8,50	6,83	8,14	9,41
Cu ppm	915	955	1250	1010	1060	980	1125	910	295
Mn ppm	230	255	215	235	220	225	250	245	250
Pb ppm	90	95	135	110	120	140	110	100	115
Zn ppm	965	1070	745	990	960	920	940	890	760

Les résultats sont exprimés en pourcentage poids lorsque ce n'est pas mentionné P.A.F.= Perte au feu

Tableau 4-6 : Résultats d'analyses de la roche totale effectuées au CRM sur les résidus Manitou prélevés sur la cellule expérimentale non recouverte

Trou	1	1	2	2	3	3
Profondeur (cm)	0-2	10	0-10	15-20	0-2	25
SiO_2	73,3	70,1	75,8	71,8	74,7	69,4
Al_2O_3	7,82	8,23	7,98	7,64	7,62	8,61
Fe_2O_3	8,43	8,63	7,56	8,21	8,74	8,89
MgO	3,02	3,15	2,92	3,07	2,82	2,96
CaO	0,28	0,13	<,02	0,19	<,02	0,24
Na_2O	<,1	<,1	<,1	<,1	<,1	<,1
K_2O	1,24	1,3	1,25	1,16	1,19	1,47
TiO_2	0,15	0,16	0,17	0,15	0,17	0,16
MnO	0,06	0,05	0,05	0,04	0,05	0,04
P_2O_5	0,04	0,04	0,04	0,05	0,04	0,05
ZrO_2	0,03	0,02	0,03	0,02	0,03	0,03
BaO	0,02	0,02	0,01	0,03	0,01	0,01
ThO_2	0,01	0,02	<,01	0,03	0,01	0,01
PAF	6,38	9,06	5,41	8,17	5,3	9,45
CO_2	0,11	0,21	0,32	0,26	0,25	0,11
S tot	4,03	3,32	2,77	3,44	4,05	3,33
SO_4	1,34	4,4	0,97	3,52	0,35	4,47

Les résultats sont exprimés en pourcentage poids ou encore, en g par 100g d'échantillon analysé.

Tableau 4-7 :Pourcentage de pyrite dans les résidus Manitou de la cellule expérimentale calculé d'après les teneurs en Soufre et en sulfates analysés au CRM

Trou	1	1	2	2	3	3
Profondeur (cm)	0-2	10	0-10	15-20	0-2	25
% de pyrite	6.72	3.48	4.6	3.8	7.34	3.45
% de gypse	2.17	7.15	1.58	5.72	0.57	7.26

4.3.2.1 Calculs de changements de masse

Les résultats d'analyses de roche totale des résidus sulfurés échantillonnés permettent de quantifier les changements de masse engendrés par l'oxydation de la pyrite et la lixiviation d'éléments mobiles (Bernier comm. Pers., Décembre 1998). Un calcul de balance de masse peut donc être effectué en utilisant le SiO_2 comme élément immobile en supposant certaines conditions:

- Dans des conditions acides et de basse température (T=25°C), la silice est relativement inerte.
- La composition minéralogique et chimique des résidus de la cellule était homogène au début de l'expérience de terrain.
- L'échantillon de résidus le plus profond est le moins oxydé donc le plus représentatif d'un échantillon frais.

Le calcul de balance de masse est effectué sur une base anhydre.

Les résultats des calculs de changement de masse pour le site d'échantillonnage 2 sont présentés au tableau 4-8 et graphiquement à la figure 4-24; ils sont exprimés en g par 100 g de résidus oxydés sauf pour les métaux (Cu, Pb, Zn) qui sont en ppm. Les calculs de changement de masse totale pour l'échantillon de surface du site numéro 2 indiquent une perte de 4.17 g de masse par 100 g de résidu oxydé (Bernier, 1998).

Tableau 4-8: Calculs des changements de masse pour le site d'échantillonnage 2 (d'après Bernier, 1998)

Échantillon	Trou 2 (0-2 cm)	Échantillon	Trou 2 (0-2 cm)
SiO_2	0,00	MnO	0,01
Al_2O_3	-0,08	P_2O_5	-0,01
Fe_2O_3	-1,06	BaO	-0,02
MgO	-0,31	ZrO_2	0,01
CaO	-0,18	CO_2	0,04
Na_2O	-0,01	Ssulf	0,05
K_2O	0,02	SO_4	-2,64
TiO_2	0,01	DM tot	-4,17
Cu	176,67	Pb	18,15
Zn	-288,61		

4.3.3 Résultats des analyses chimiques des solutions de rinçage

La comparaison entre les résultats des analyses effectuées sur les solutions de rinçage des différents sites d'échantillonnage présentée au tableau 4-9 montre des valeurs de pH acide (2.3-3.5) et une conductivité qui reflète principalement la mise en solution des sulfates solubles. Les valeurs de Eh se situent entre 650 et 750mv. De plus, une augmentation des concentrations des ions Cu^{2-} et Al^{3-} avec la profondeur est observée aux sites d'échantillonnage 1 et 2, au site 3, ils sont plus abondants à 25 cm qu'à 45 et 50 cm. De plus, les concentrations en ions SO_4^{2-} et Ca^{2-} sont toujours plus élevées dans les solutions de rinçage des échantillons plus profonds (au-delà de 5 cm). Ce qui corrobore les analyses des résidus solides aux tableaux 4-5 et 4-6.

Tableau 4-9: Données physico-chimiques et résultats des analyses sur les solutions de rinçage effectuées au CRM. (Concentrations en mg/L)

Trou	1	1	2	2	3	3	3	3	Couche
Profondeur (cm)	0-2	10	0-10	15-20	0-2	25	45	50	de surface
pH	2,92	2,35	2,35	2,5	3,53	3	3	3	3
Eh (mV)	690	735	737	744	654	735	745	722	692
Cond (µS/cm)	3800	3800	1900	3800	4000	5800	5200	5600	6600
Temp (Celcius)	23,9	22,8	22,5	23,9	23,1	23,1	23,4	23,2	22,5
Al	57	312	1,48	361	18	465	236	244	370
Ba	<0,002	<,002	<,002	<,002	<,002	<,002	<,002	<,002	<,002
Ca	74	470	50	480	16	387	503	480	272
Cd	0,04	0,56	0,09	0,43	<0,002	0,76	0,31	0,45	0,62
Cr	<,003	<,003	<0,003	<0,003	<0,003	<0,003	<0,003	<0,003	<,003
Cu	4	33	9	37	1	70	27	45	55
Fe	739	5400	1900	5800	216	8000	3500	5000	3500
K	44	1	4	4	0,93	2	2	2	3
Mg	75	364	157	389	34	519	277	297	448
Mn	4	16	5	14	2	24	12	17	25
Na	14	13	13	13	13	14	15	15	25
Ni	0,05	0,32	0,08	0,21	<0,01	0,54	0,18	0,31	0,53
P	0,49	6	3	7	<0,11	8	4	5	7
Pb	0,23	0,81	0,61	0,72	<0,08	1	0,4	0,44	2
S	789	6160	2000	6230	308	8900	4430	5630	2500
SO4	2367	18480	6000	18690	924	26700	13290	15000	7500
Zn	20	185	48	148	4	245	112	151	207

4.3.3.1 Modélisation avec Minteqa2

Minteqa2 a été utilisé ici pour calculer les indices de saturation des minéraux secondaires solubles dans les résidus miniers oxydés de Manitou. Il faut mentionner toutefois que les calculs ont été effectués à partir des résultats provenant des solutions de rinçage (tableau 4-9) et non à partir des eaux interstitielles, ces dernières n'étant pas

disponibles. Les simulations ne sont ici qu'une indication des phases minérales solubles qui pourraient intervenir dans la géochimie de ces eaux. Des analyses faites à partir des eaux interstitielles seraient plus représentatives des conditions de saturation.

Le gypse, la maghémite (Fe_2O_3), l'alunite ($KAl_3(SO_4)_2(OH)_6$) et la ferrihydrite présentés au tableau 4-10 sont des minéraux secondaires fréquemment retrouvés dans les résidus miniers oxydés (Alpers et al., 1994). Les indices de saturation calculés pour ces derniers indiquent que la solution est sous saturée (*I.S.*<0) par rapport au gypse en surface pour chacun des trous puis sursaturée (*I.S.* >0) en profondeur. Les calculs montrent aussi que les *I.S.* de l'alunite ont fluctué entre –2 et 0,5 et que la solution est sursaturée par rapport à la maghémite. Finalement, les indices de saturation oscillent entre –1,57 et 1,059 pour la ferrihydrite.

Tableau 4-10 : Résultats des balance de charge et des indices de saturation calculés avec Minteqa2

Minéral	Trou1 surface	Trou1 10 cm	Trou2 Surface	Trou2 15-20cm	Trou 3 surface	Trou 3 25 cm	Trou 3 45 cm
Balance de charge (%)	7.24	5.25	22.34	6.22	17.31	13.15	12.56
Maghémite	>+2	0.678	0.257	1.723	>+2	>+2	>+2
Gypse	-0.679	0.299	-0.702	0.281	-1.375	0.326	0.342
Alunite	-0.383	<-2	<-2	<-2	0.502	0.014	-0.45
Ferrihydrite	-0.188	-1.363	-1.571	-0.84	1.059	0.324	0.228

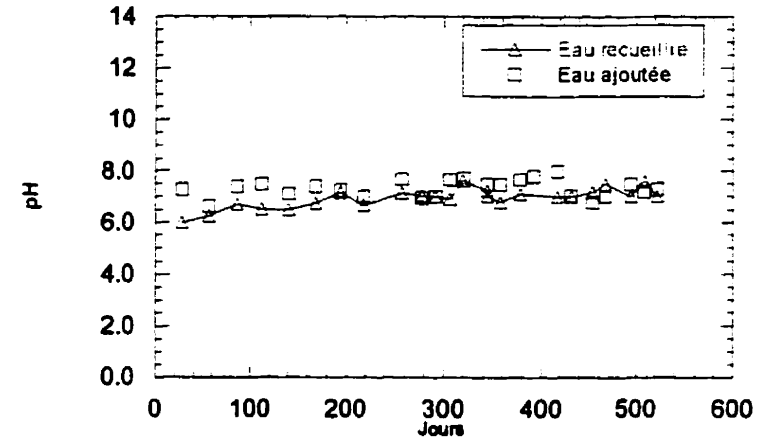
La fenêtre –2 à 2 suggérée sert à déterminer quelles sont les phases les plus susceptibles d'être en équilibre avec la solution de rinçage.

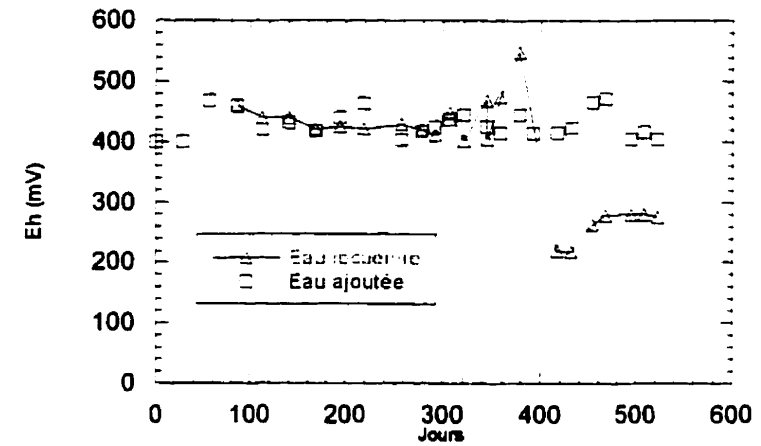
4.3.4 Discussion

Les conditions de sous saturation de la solution en surface, et de sursaturation en profondeur calculées par rapport au gypse se traduisent par une dissolution de ce dernier en surface, suivi d'une précipitation subséquente des ions en solution dans les horizons plus profonds. Selon les résultats obtenus, on peut également estimer qu'un horizon de

précipitation s'est formé à environ 25 cm de profondeur. Le site d'échantillonnage 3 (figure 4.27) montre un enrichissement en éléments à cette profondeur pour diminuer ensuite vers le bas de la cellule. Ce phénomène n'est observable qu'à cet endroit puisque les trous 1 et 2 n'ont pas été échantillonnés aussi profond. Cet horizon de précipitation (hard pan) forme une croûte indurée blanchâtre de 5 mm d'épaisseur, riche en Al_2O_3, K_2O, Fer, PAF et SO_4.

De plus, d'après les résultats des calculs de changements de masse, les principaux éléments lessivés sont le Al_2O_3, Fe_2O_3, MgO, CaO, Na_2O, MnO, Zn et SO_4. La faible augmentation en S sulfures et CO_2 est surprenante et pourrait indiquer que le résidu n'est pas homogène, i.e. qu'il pourrait y avoir eu plus de pyrite dans l'échantillon de surface. Il pourrait également y avoir du soufre natif. Comme ce dernier n'a pas été analysé, sa présence se reflétera dans le soufre total. Donc, le fait qu'il y ait plus de soufre à la surface n'est pas nécessairement relié aux concentrations en sulfures. Comme il y a très peu de carbonates dans les résidus de Manitou (Bernier, 1996; 1997) et que ces carbonates (ankérite, sidérite) ont un faible pouvoir de neutralisation, il semble que le Ca nécessaire à la formation du gypse origine d'une autre source (feldspaths?, épidote?). Les sulfates de Fe, Mg et Ca résultant de la neutralisation de l'acide sulfurique généré par l'oxydation de la pyrite (Morin, 1997; Alpers et al., 1994) qui sont solubles dans l'eau auront donc pu être remis en solution et précipité plus bas dans la cellule pour former un horizon induré. Cela semble supporter l'hypothèse précédente voulant qu'un horizon « hard pan » se soit formé à environ 30 cm dans la cellule. La formation de ce dernier crée un horizon peu poreux qui peut contribuer à freiner la diffusion de l'oxygène.





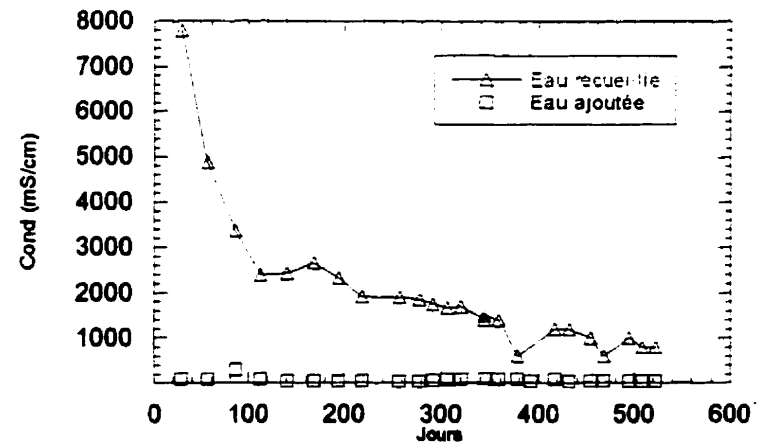


Figure 4.1: Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 1

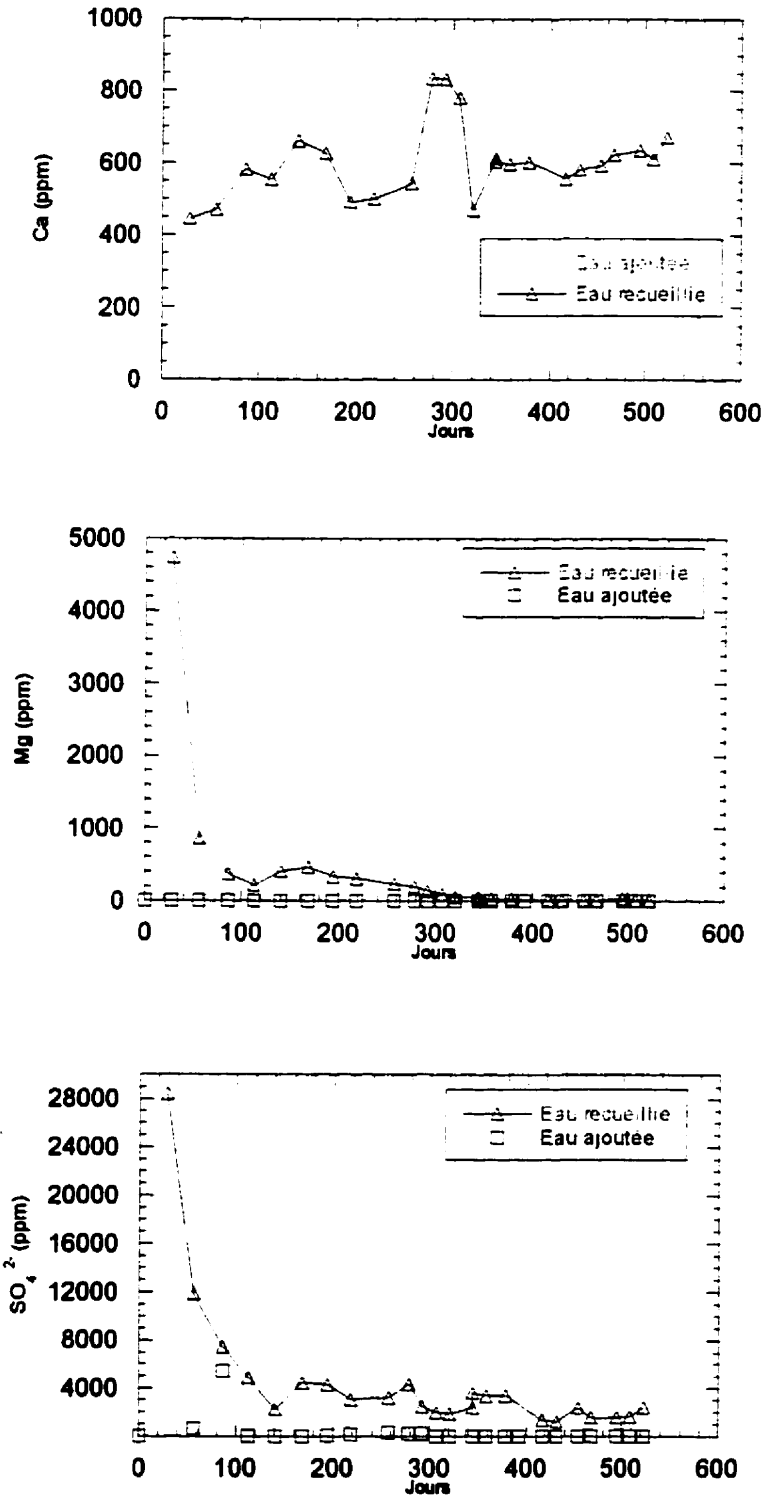
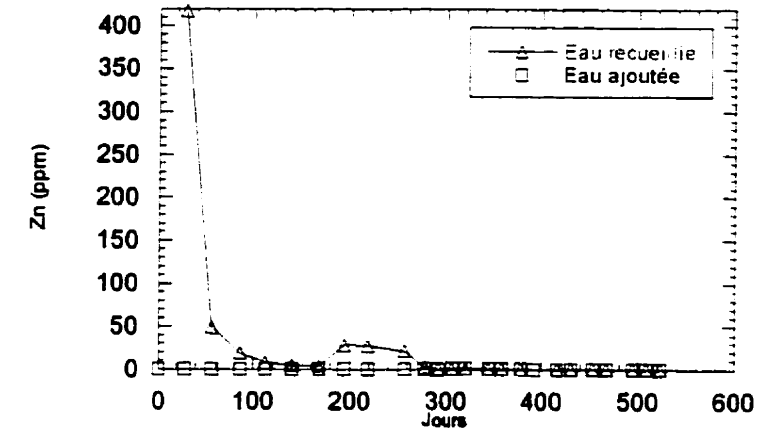
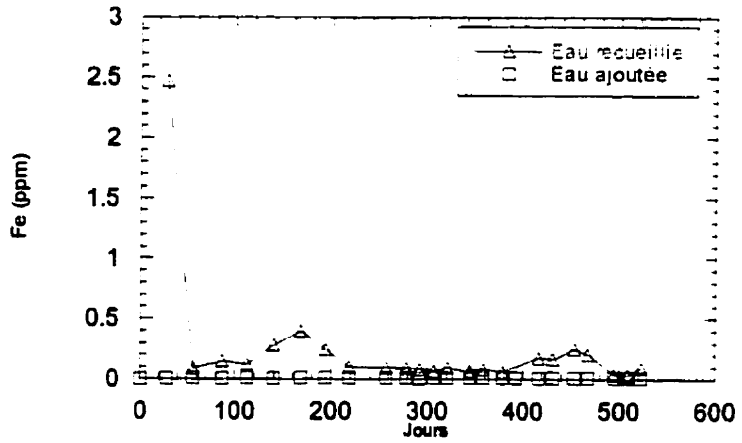


Figure 4.1(suite): Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 1





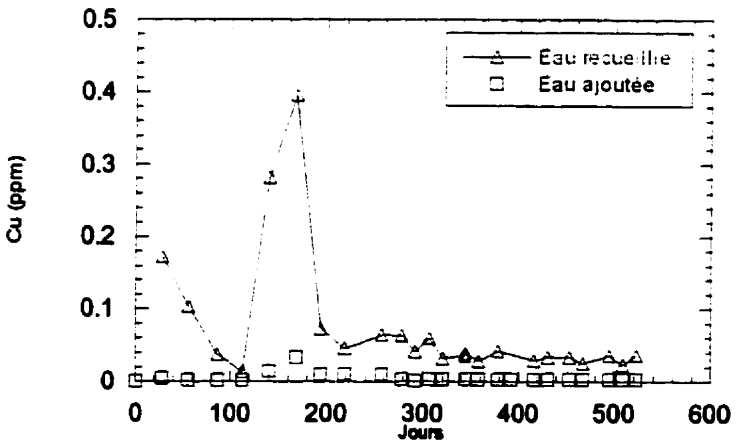
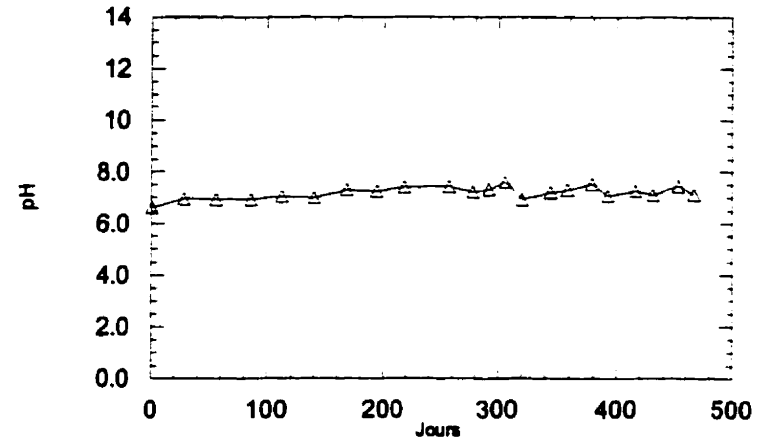
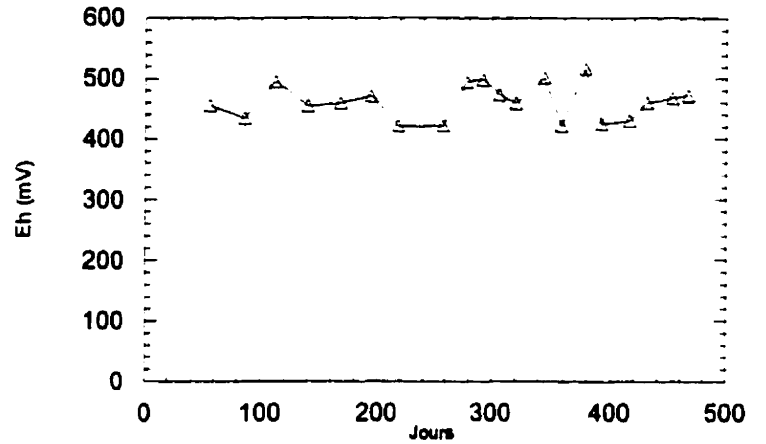


Figure 4.1 (suite et fin): Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 1





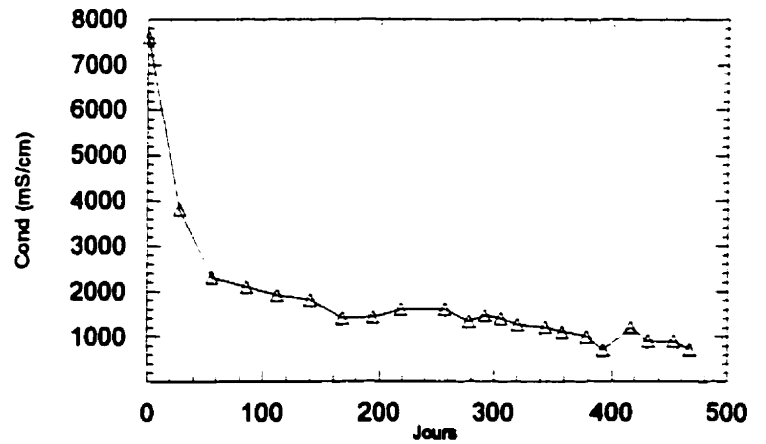


Figure 4.2:Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 2

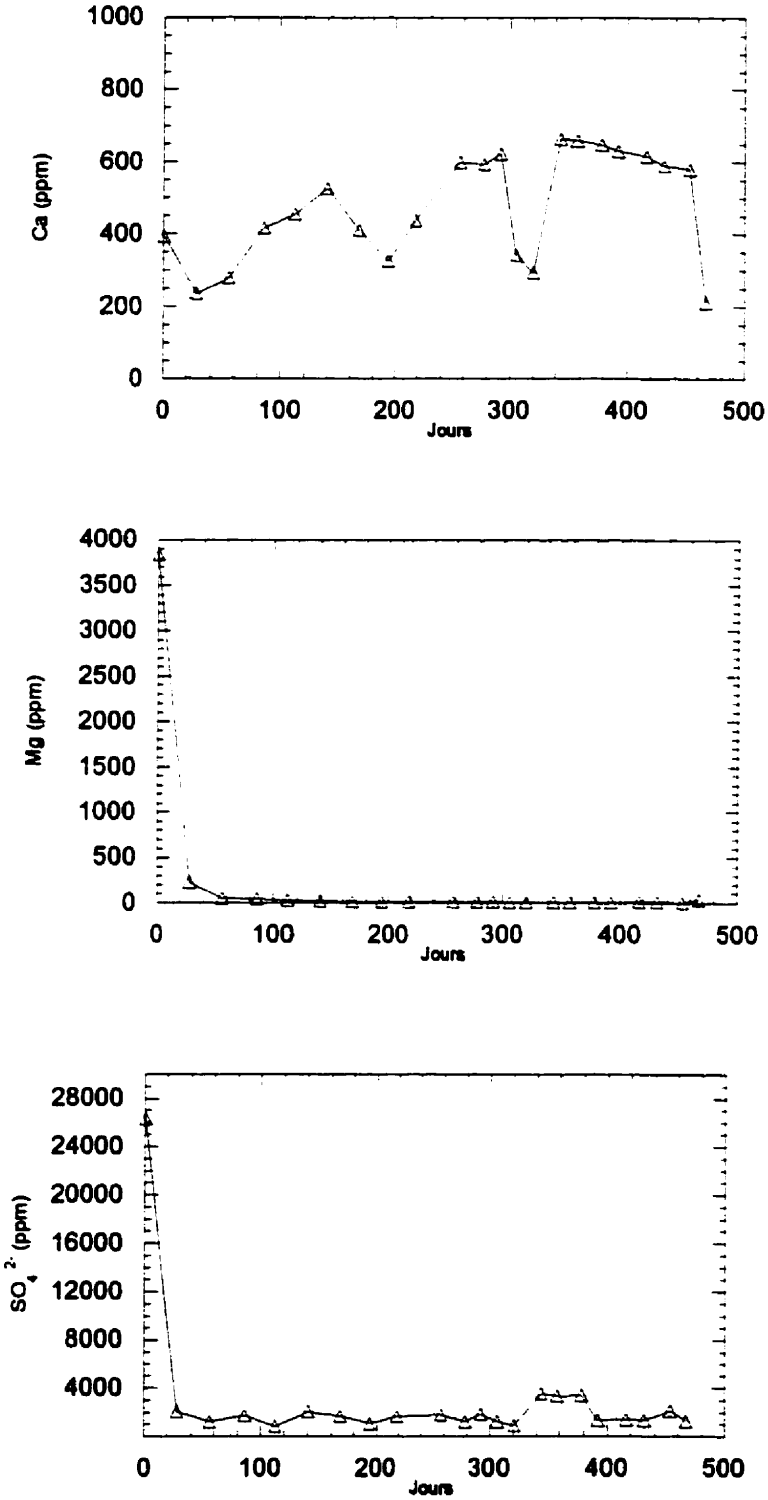
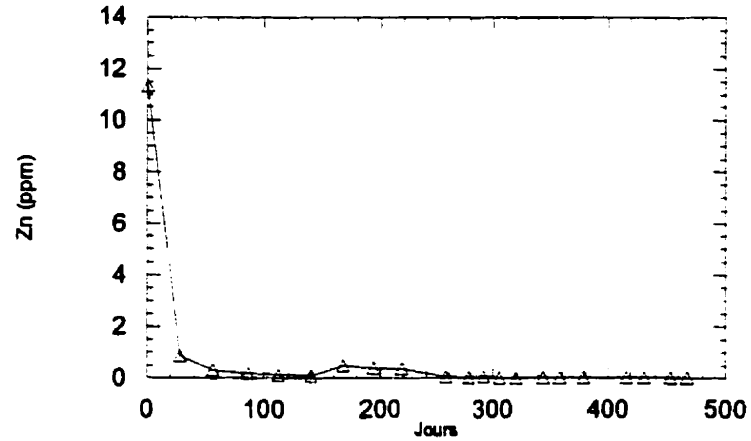
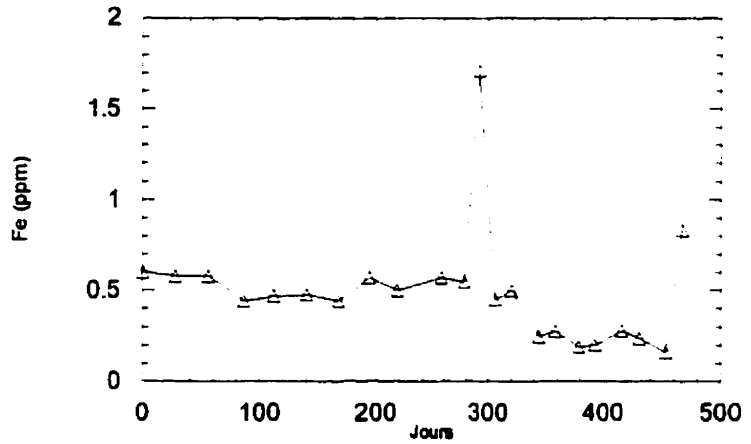


Figure 4.2 (suite): Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 2





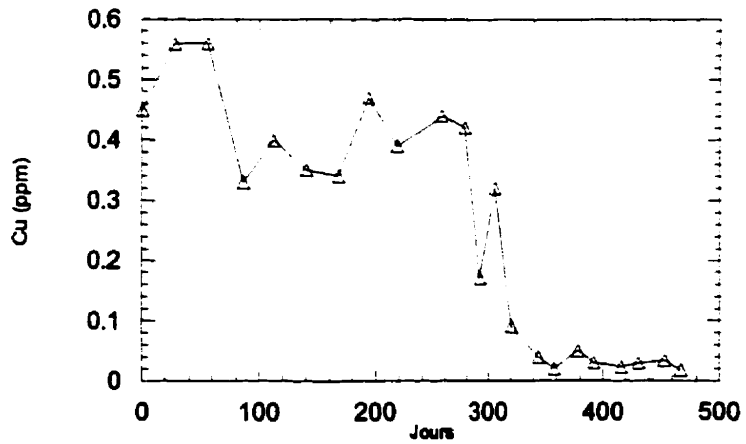


Figure 4.2 (suite et fin): Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 2

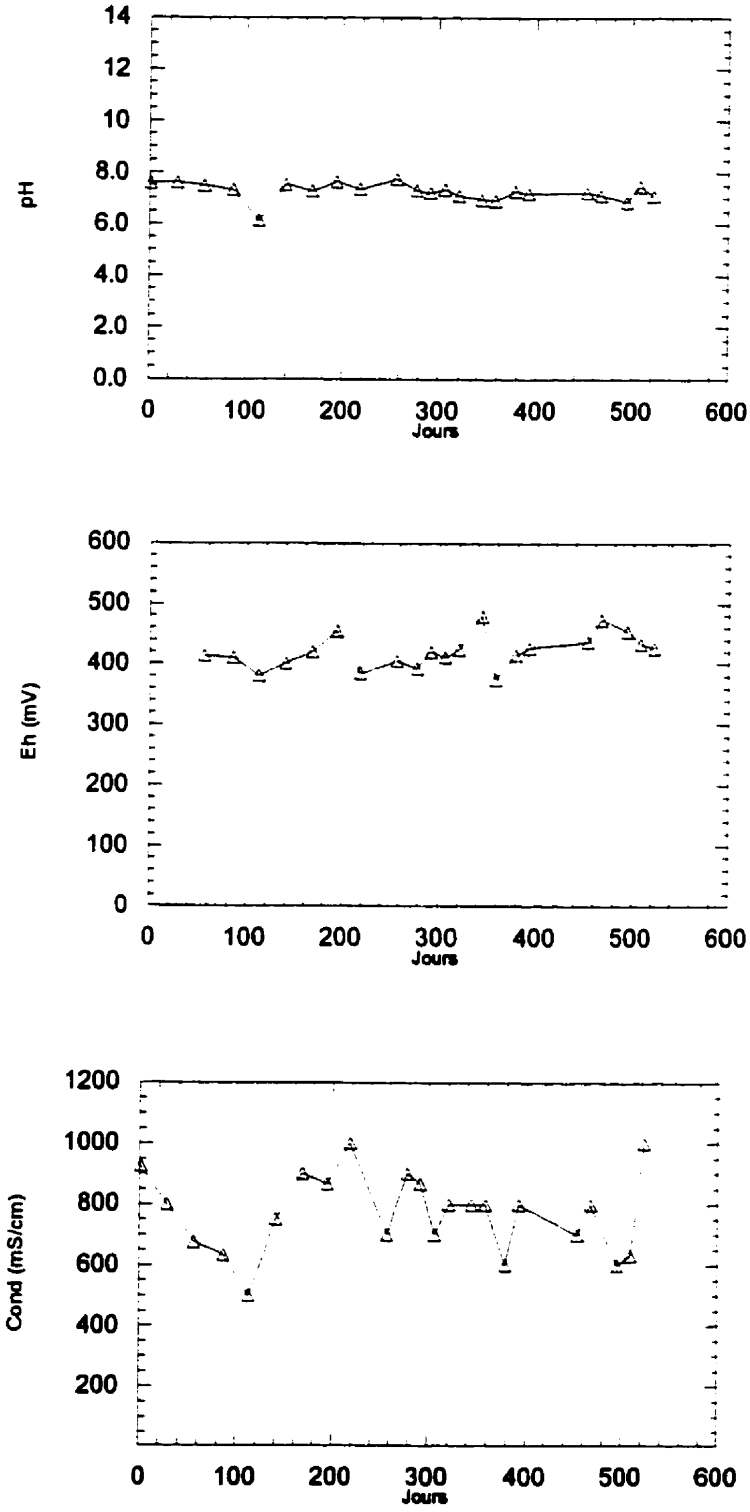
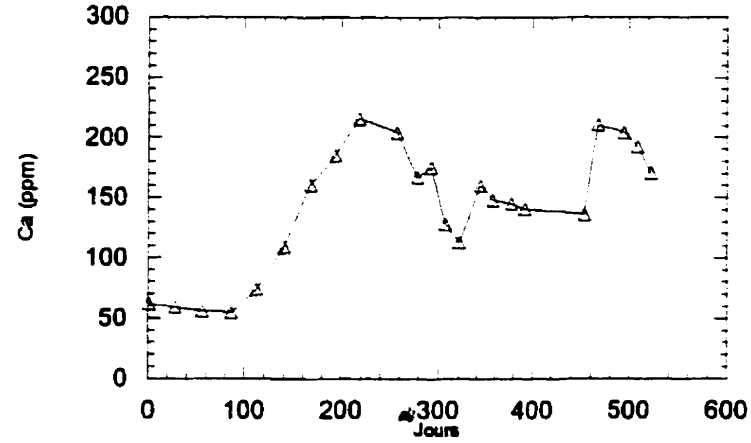
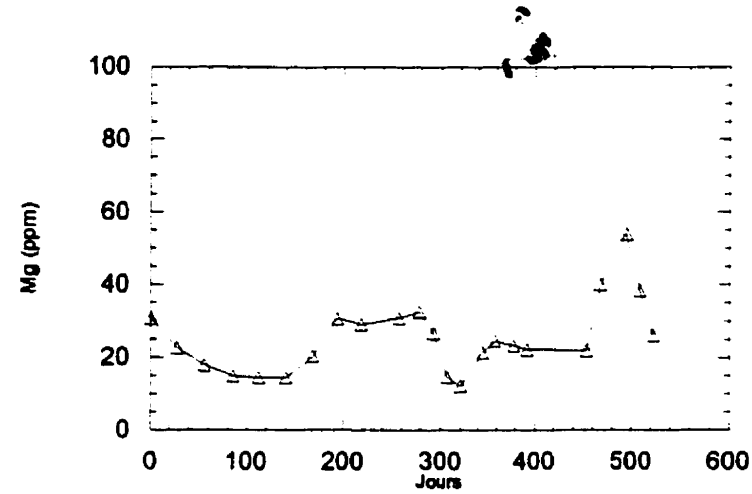


Figure 4.3 Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 3





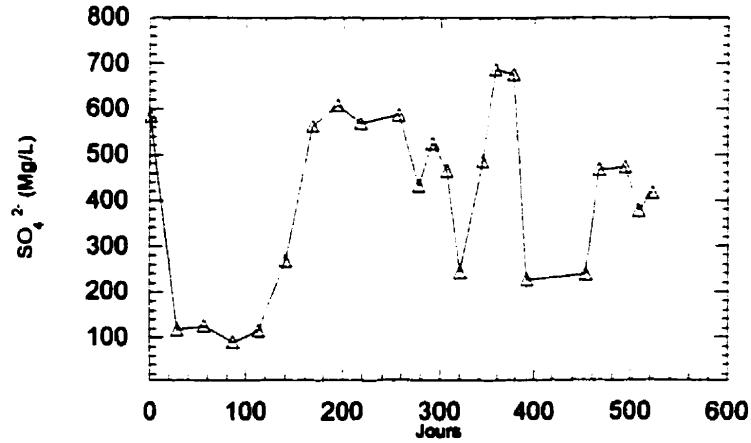
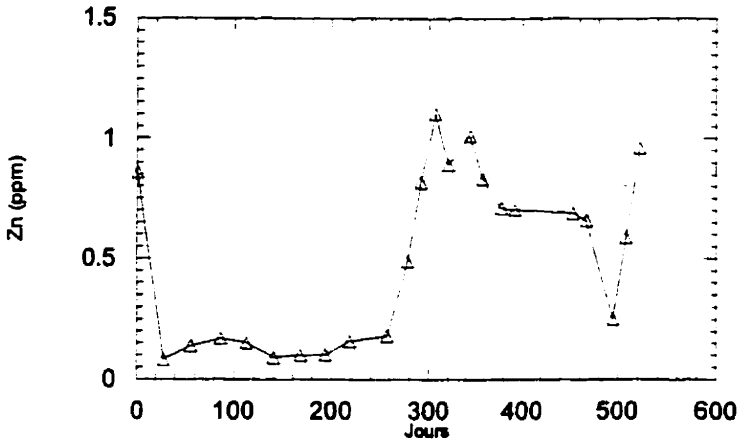
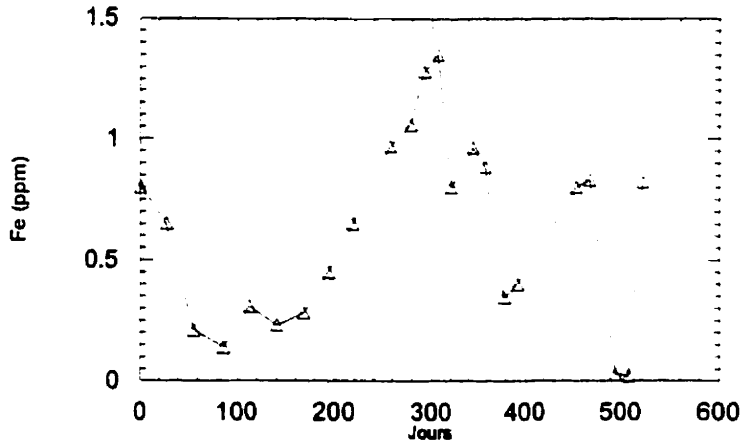


Figure 4.3 (suite):Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 3





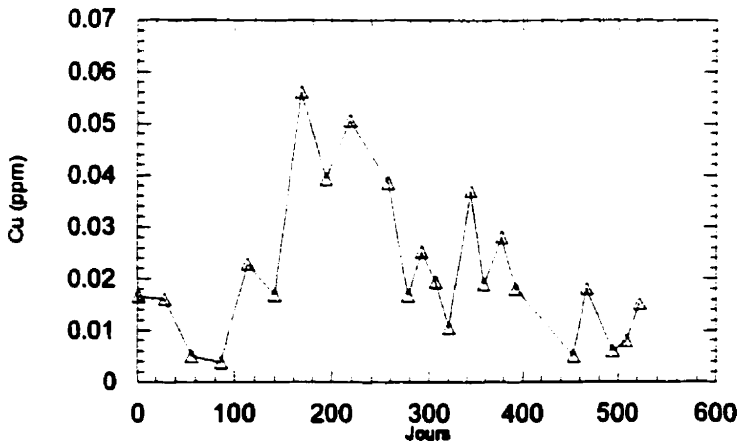
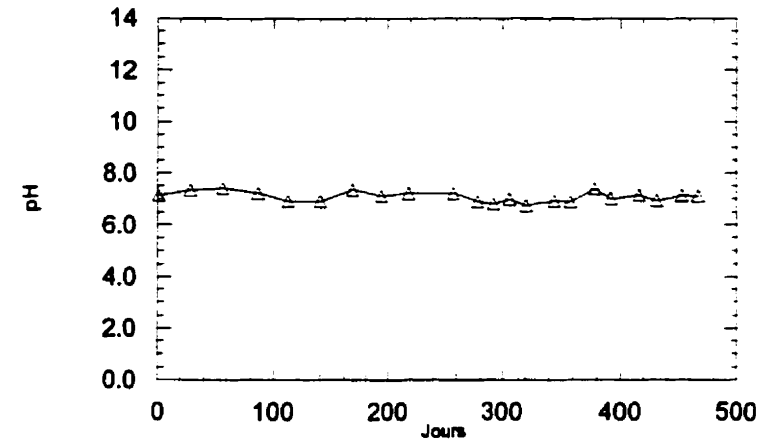
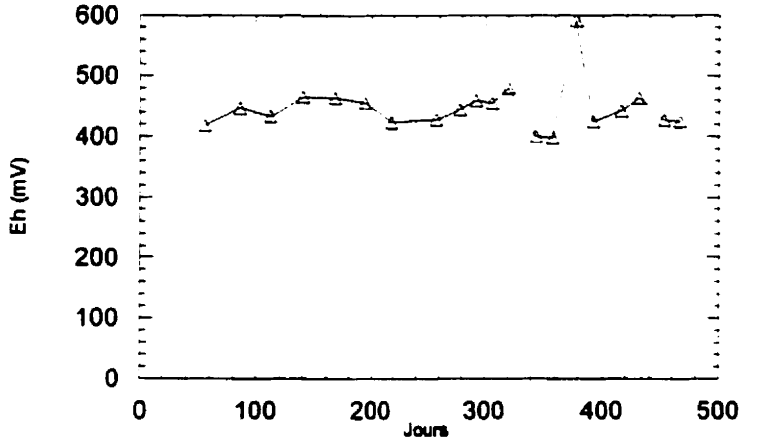


Figure 4.3 (suite et fin): Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 3





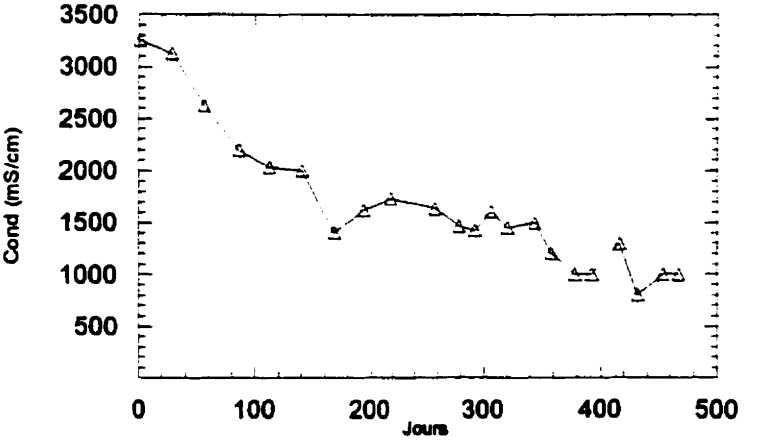
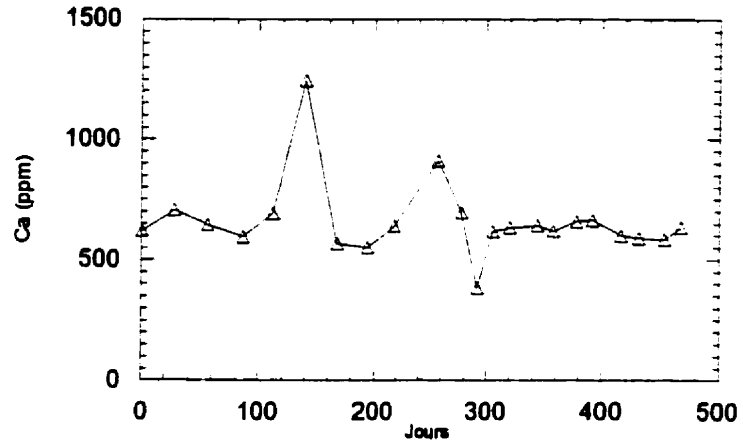
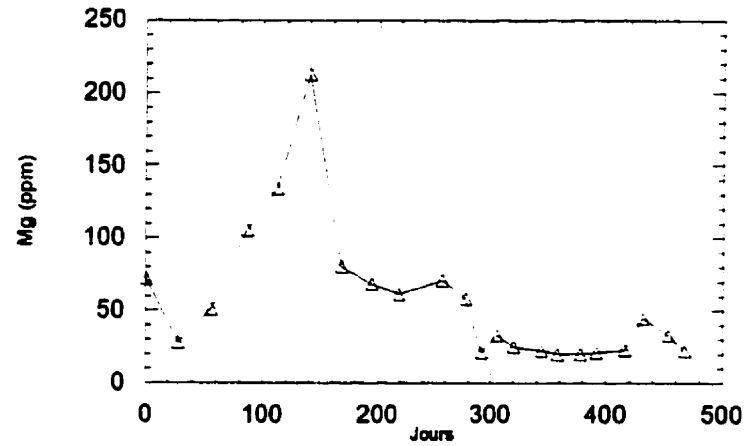


Figure 4.4 : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 4





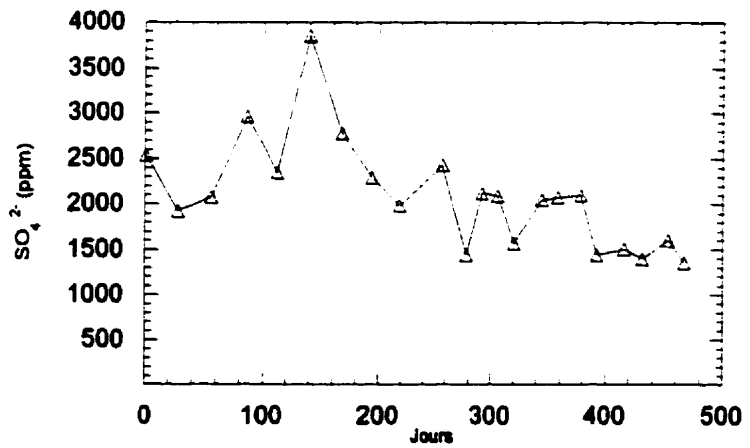
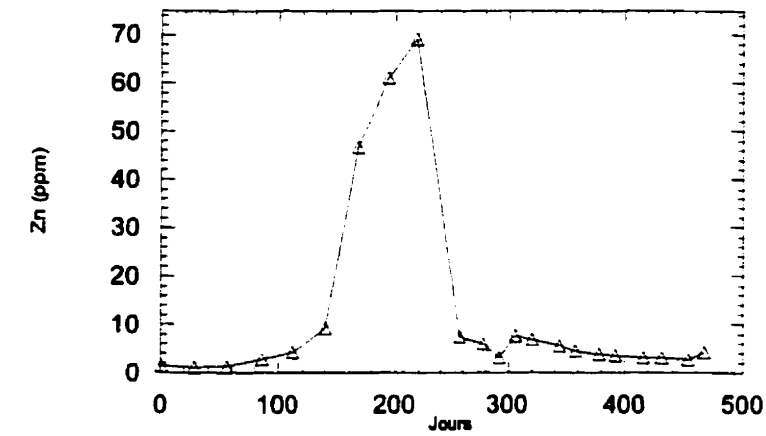
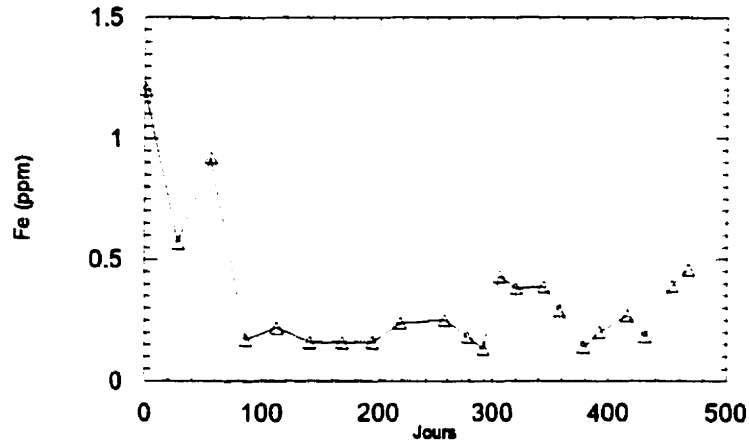


Figure 4.4 (suite) :Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 4





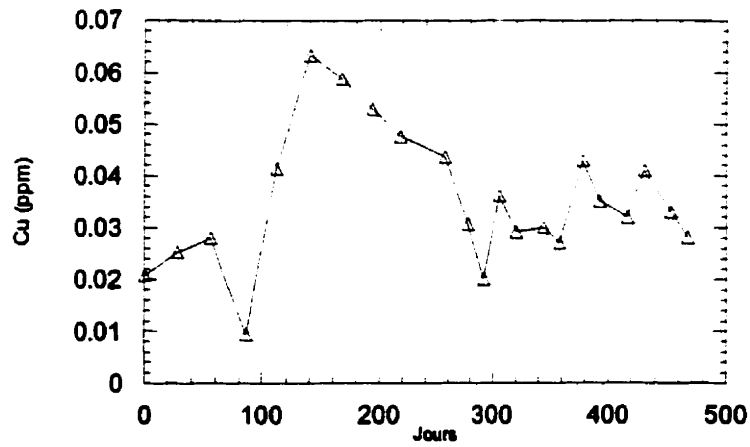


Figure 4.4 (suite et fin): Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 4

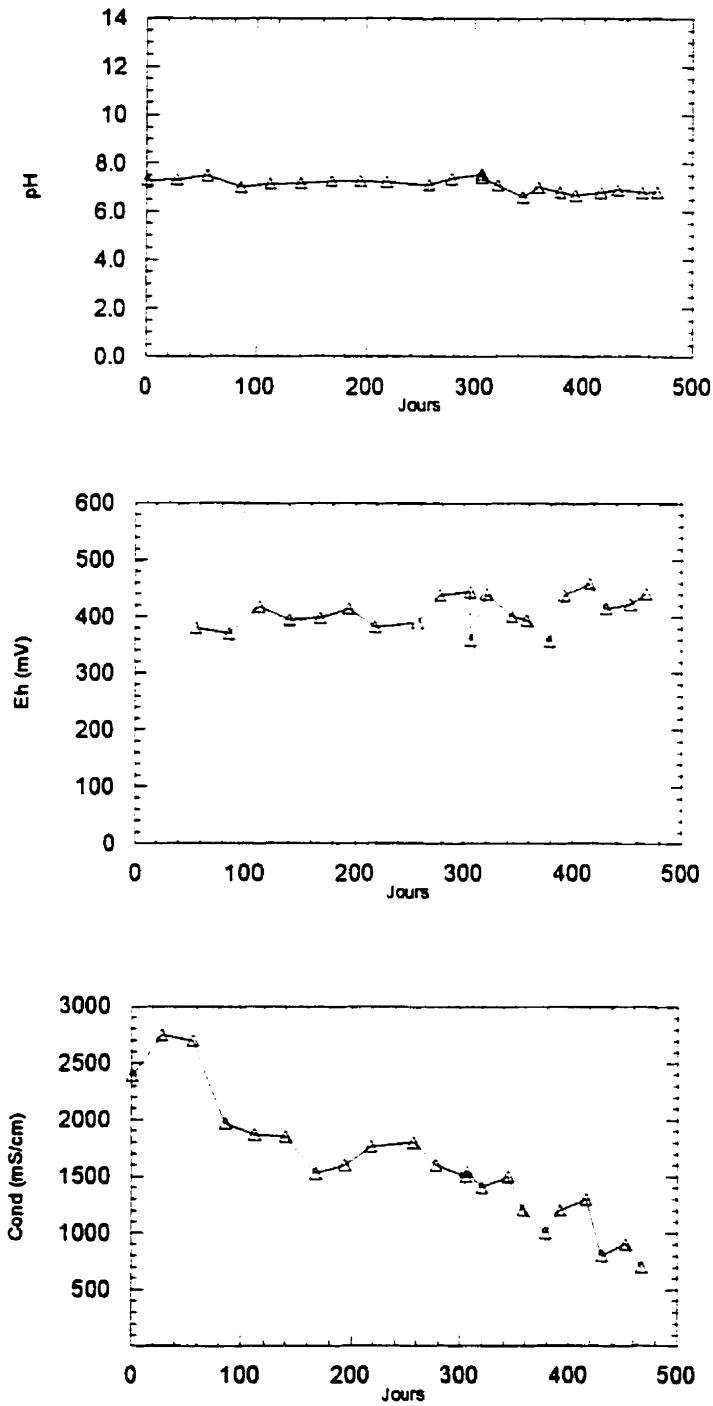
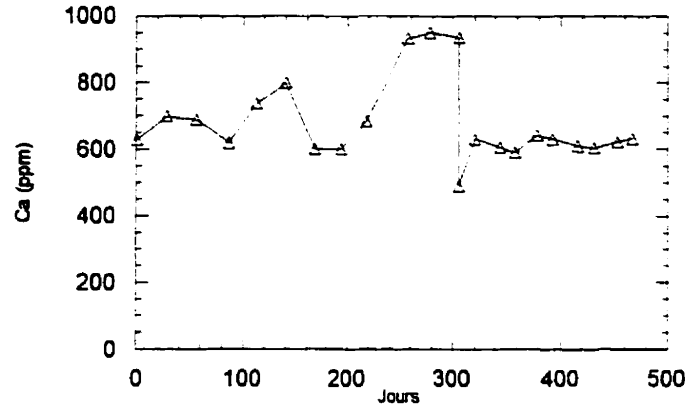
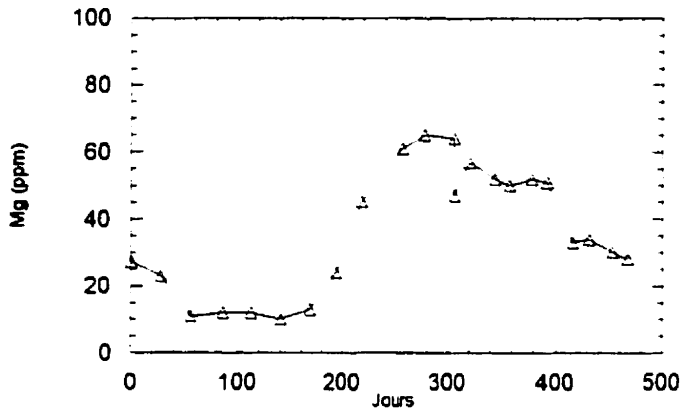


Figure 4.5 : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 5





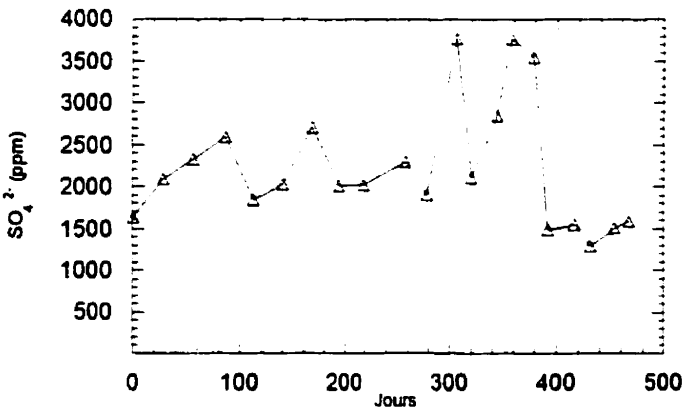
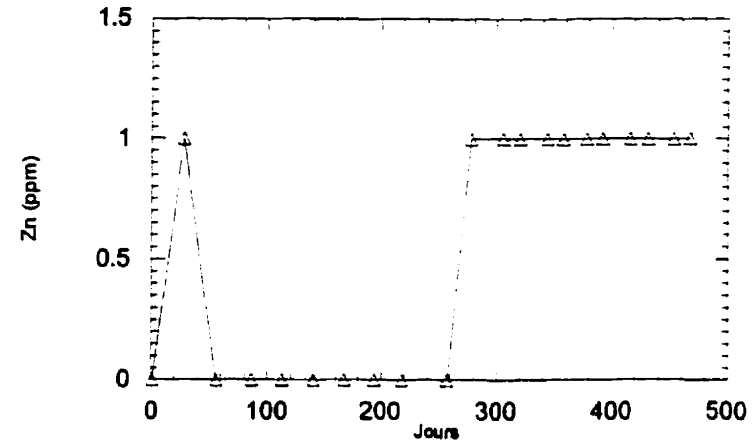
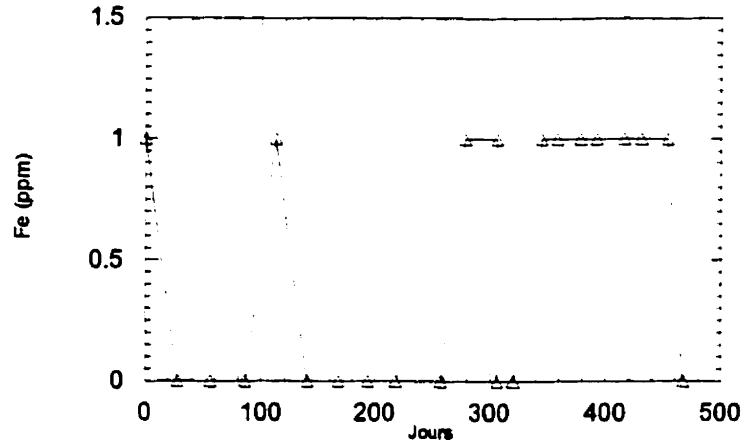


Figure 4.5 (suite): Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 5





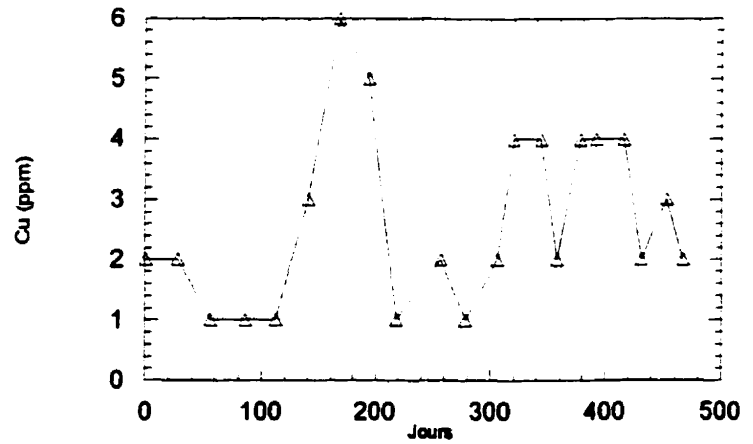


Figure 4.5 (suite et fin) :Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 5

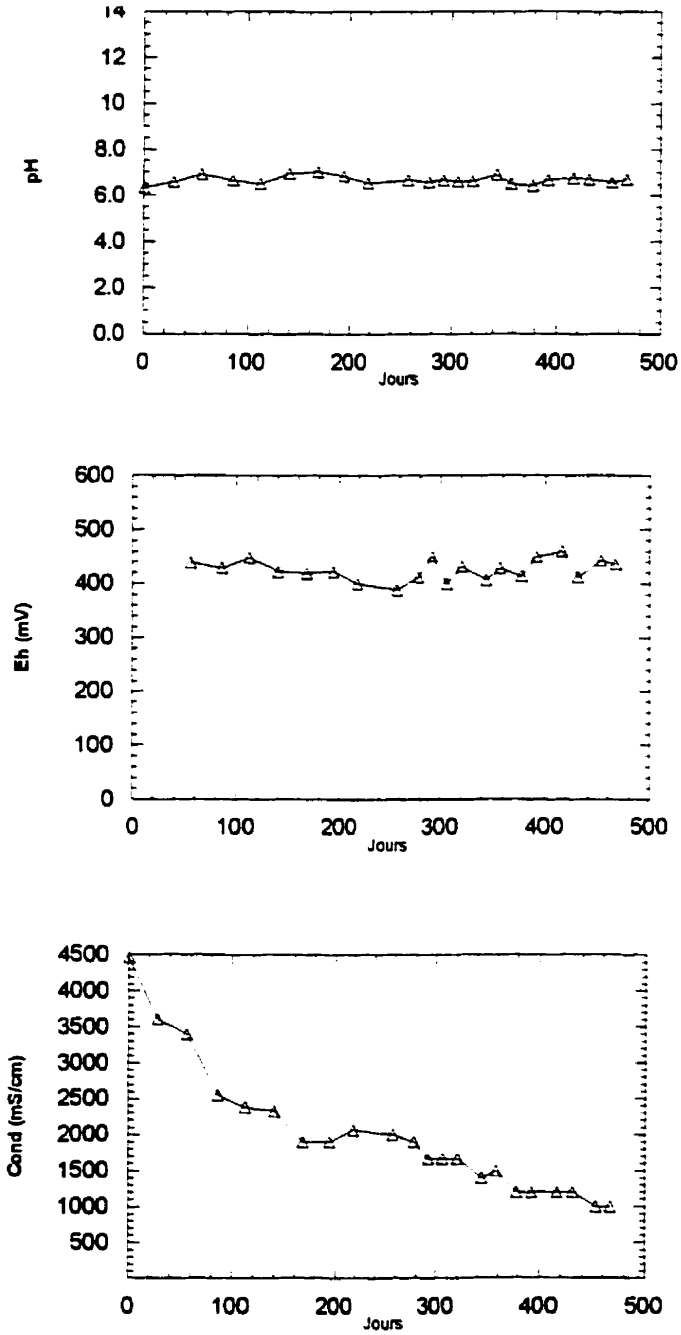
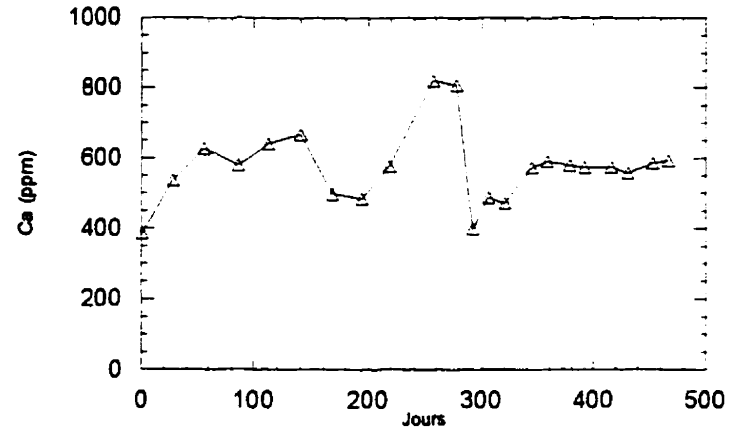
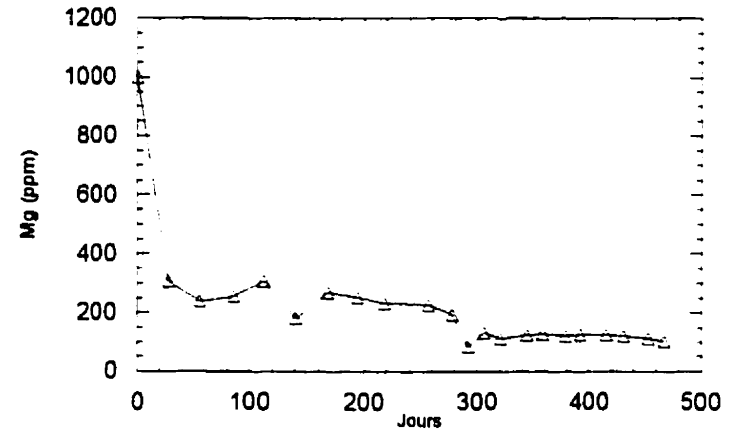


Figure 4.6 : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 8





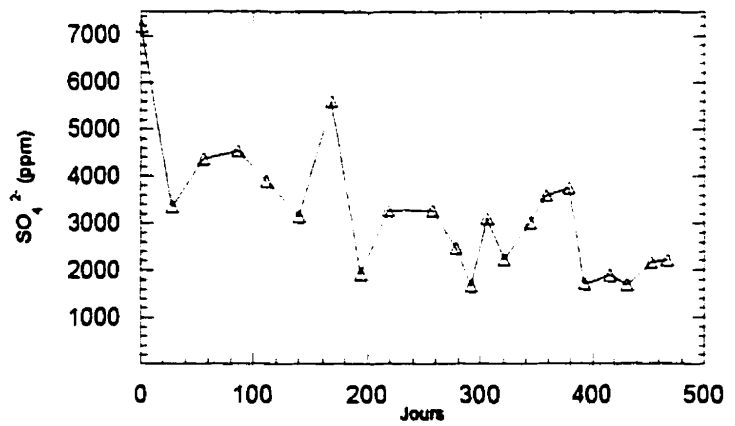


Figure 4.6 (suite) : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 8

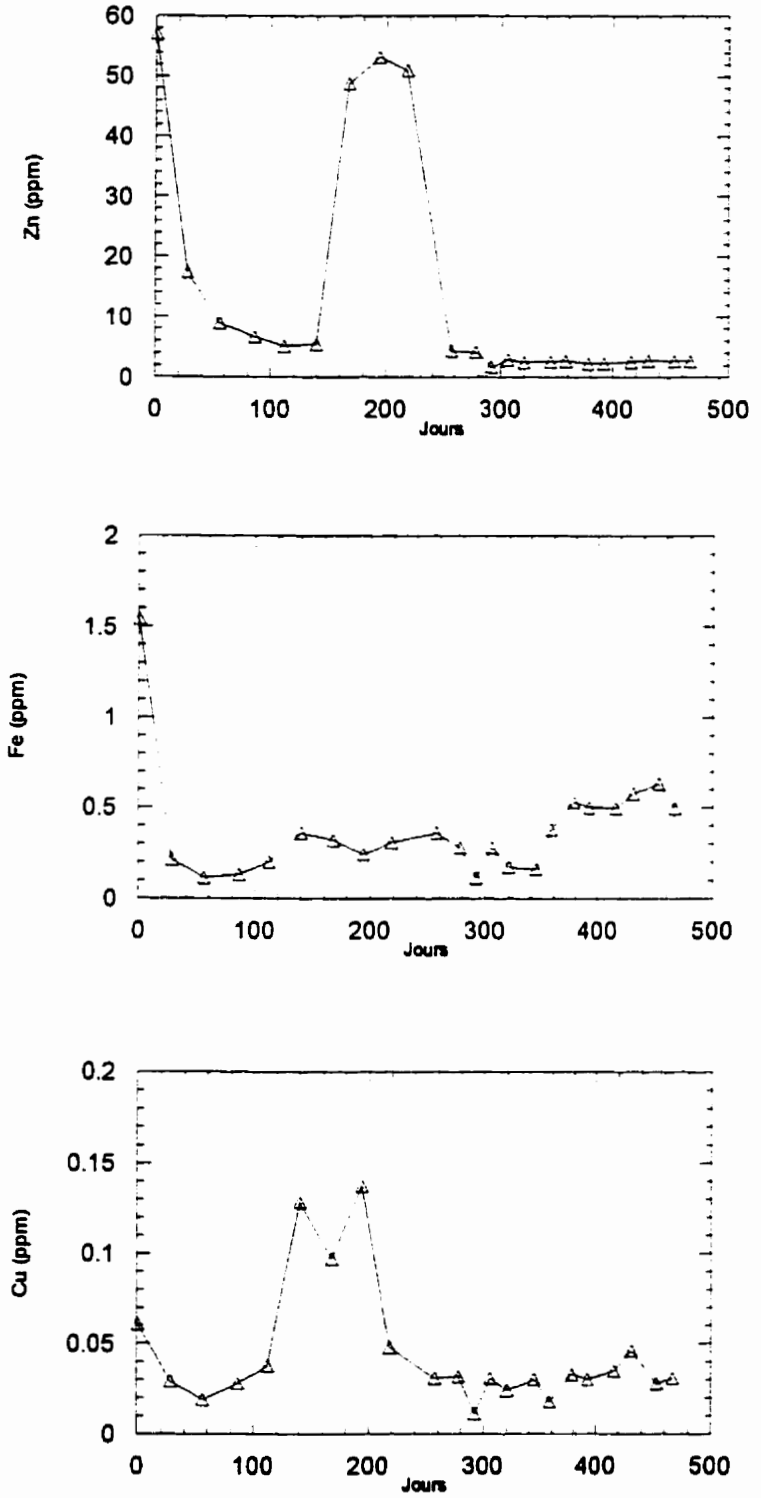


Figure 4.6 (suite et fin): Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 8

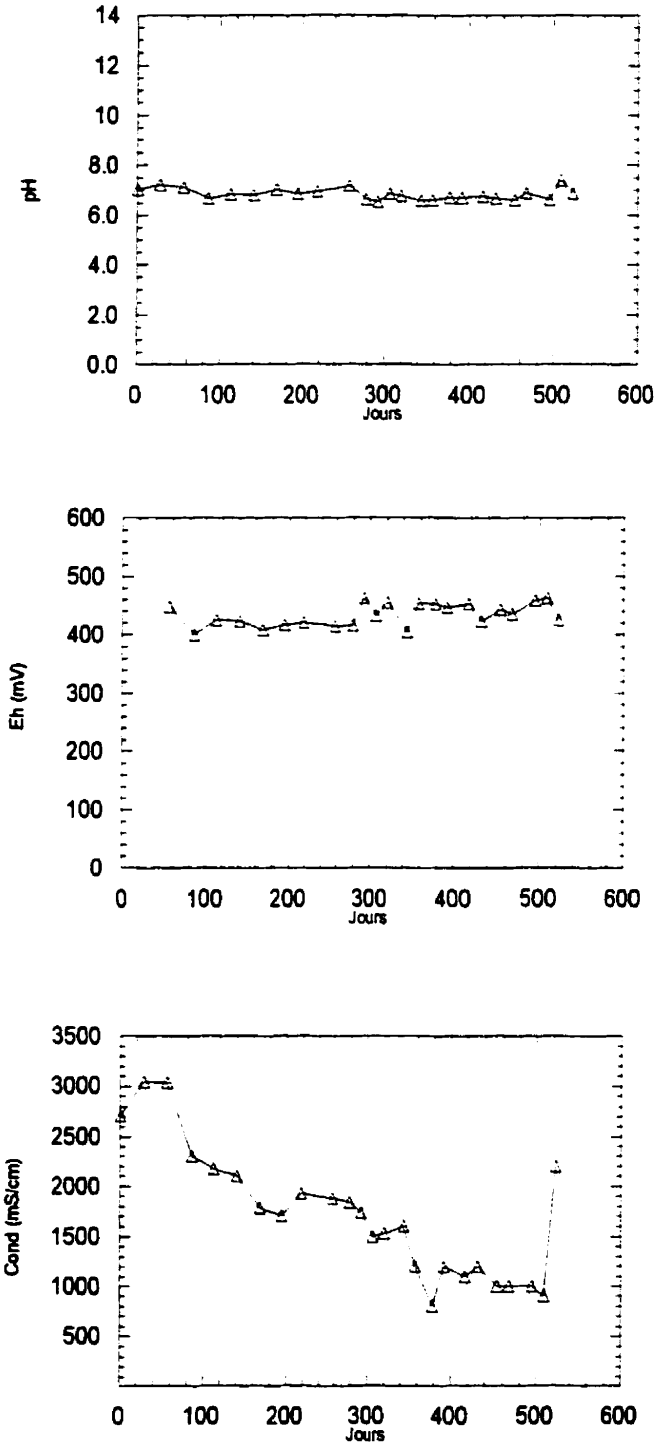


Figure 4.7 : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 9

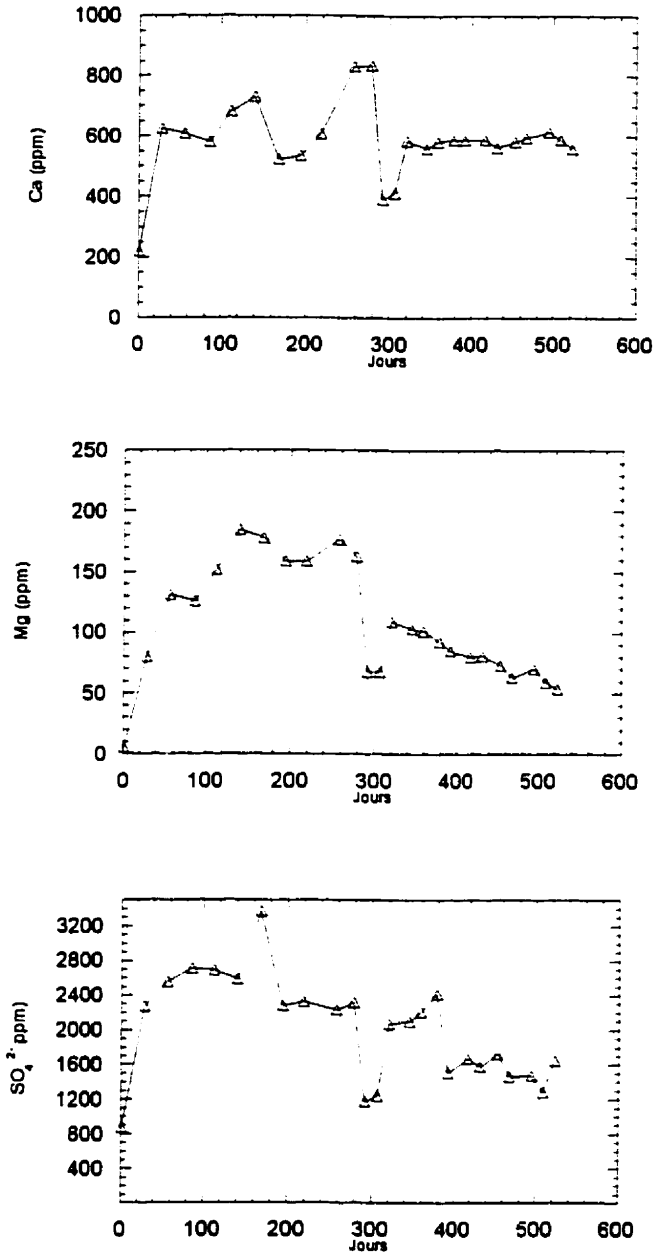
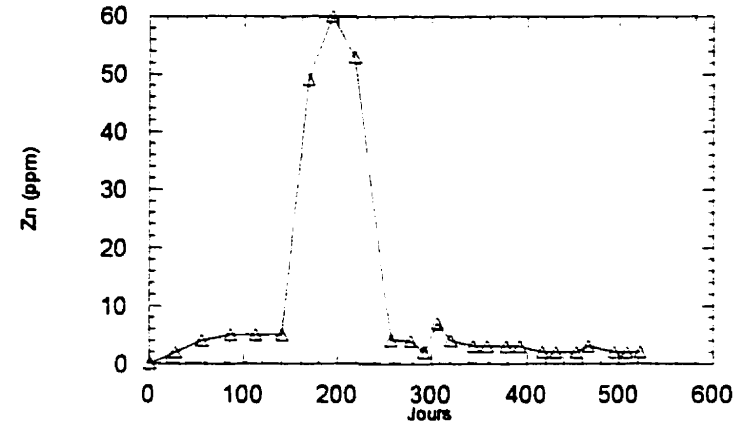
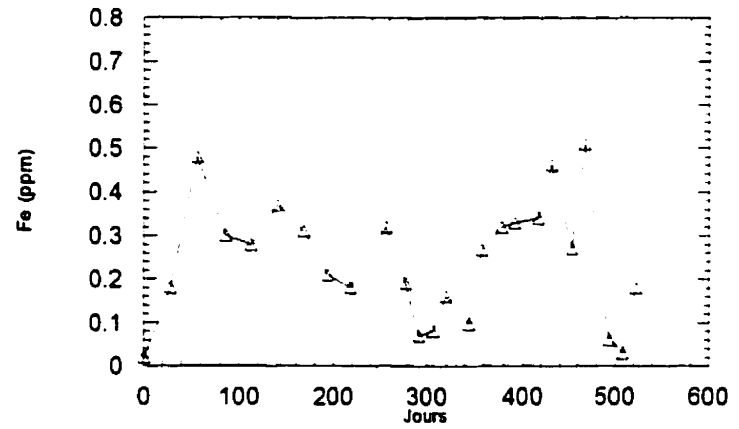


Figure 4.7 (suite) :Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 9





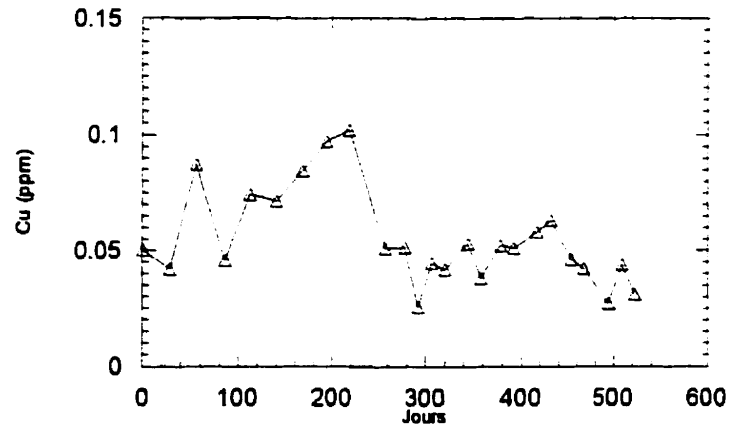


Figure 4.7 (suite et fin) : Caractéristiques de l'eau récupérée au bas de la colonne 9

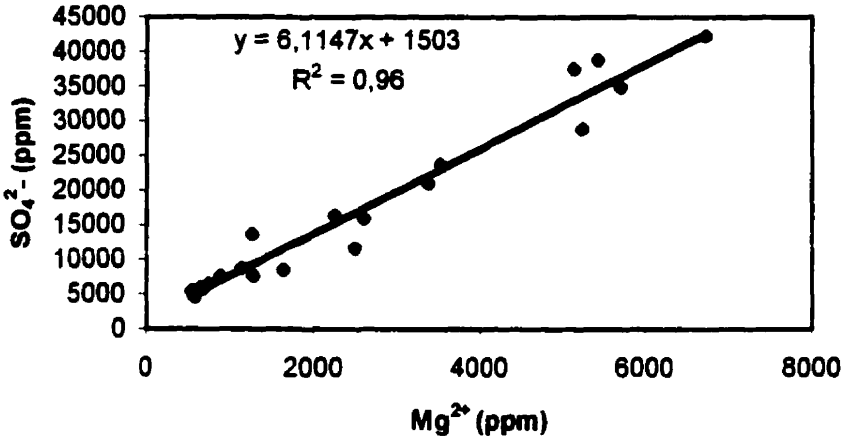


Figure 4.8 : Corrélation entre les ions Mg^{2+} et SO_4^{2-} dans les eaux de percolation des colonnes 1, 2 et 8 pour le premier cycle correspondant à l'ouverture des valves.

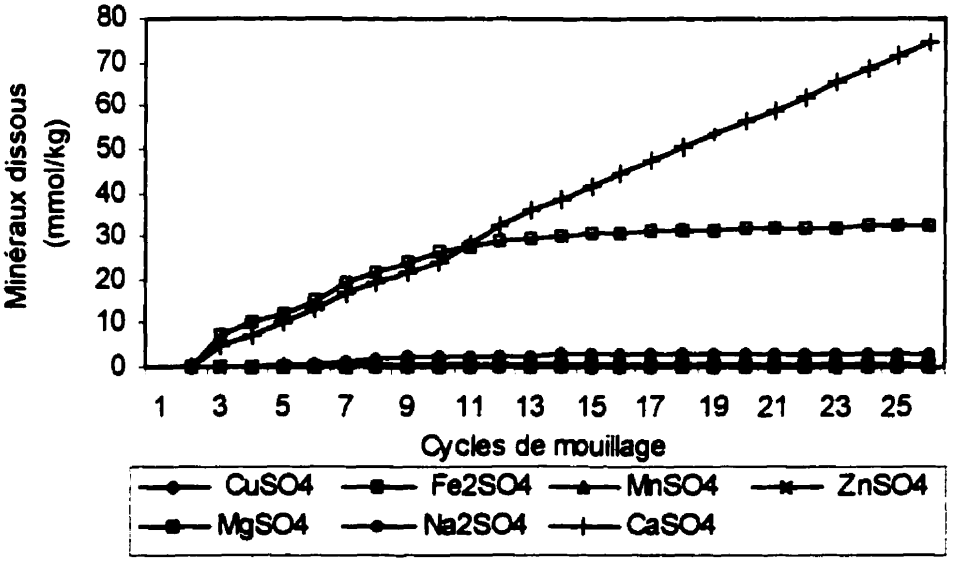


Figure 4.9: Taux de dissolution calculés pour la colonne 1

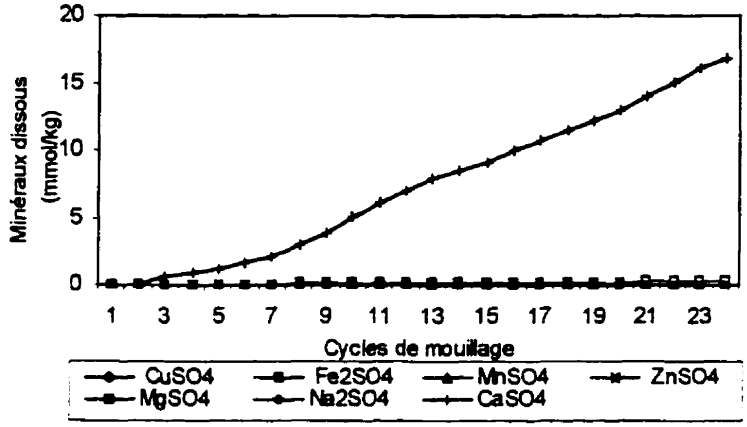


Figure 4.10 : Taux de dissolution calculés pour la colonne 3

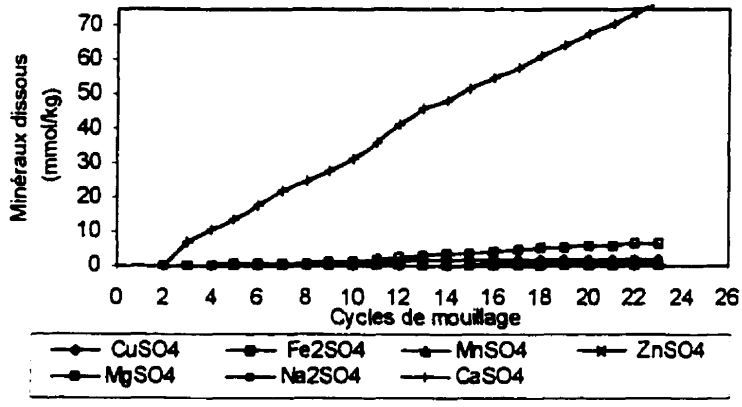


Figure 4.11 : Taux de dissolution calculés pour la colonne 5

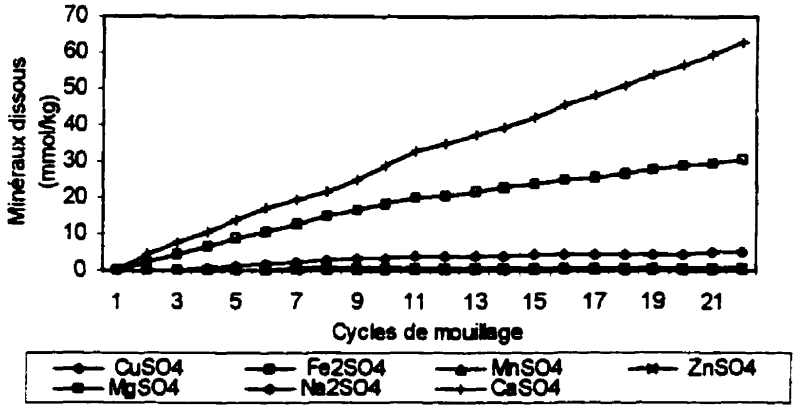


Figure 4.12 : Taux de dissolution calculés pour la colonne 8

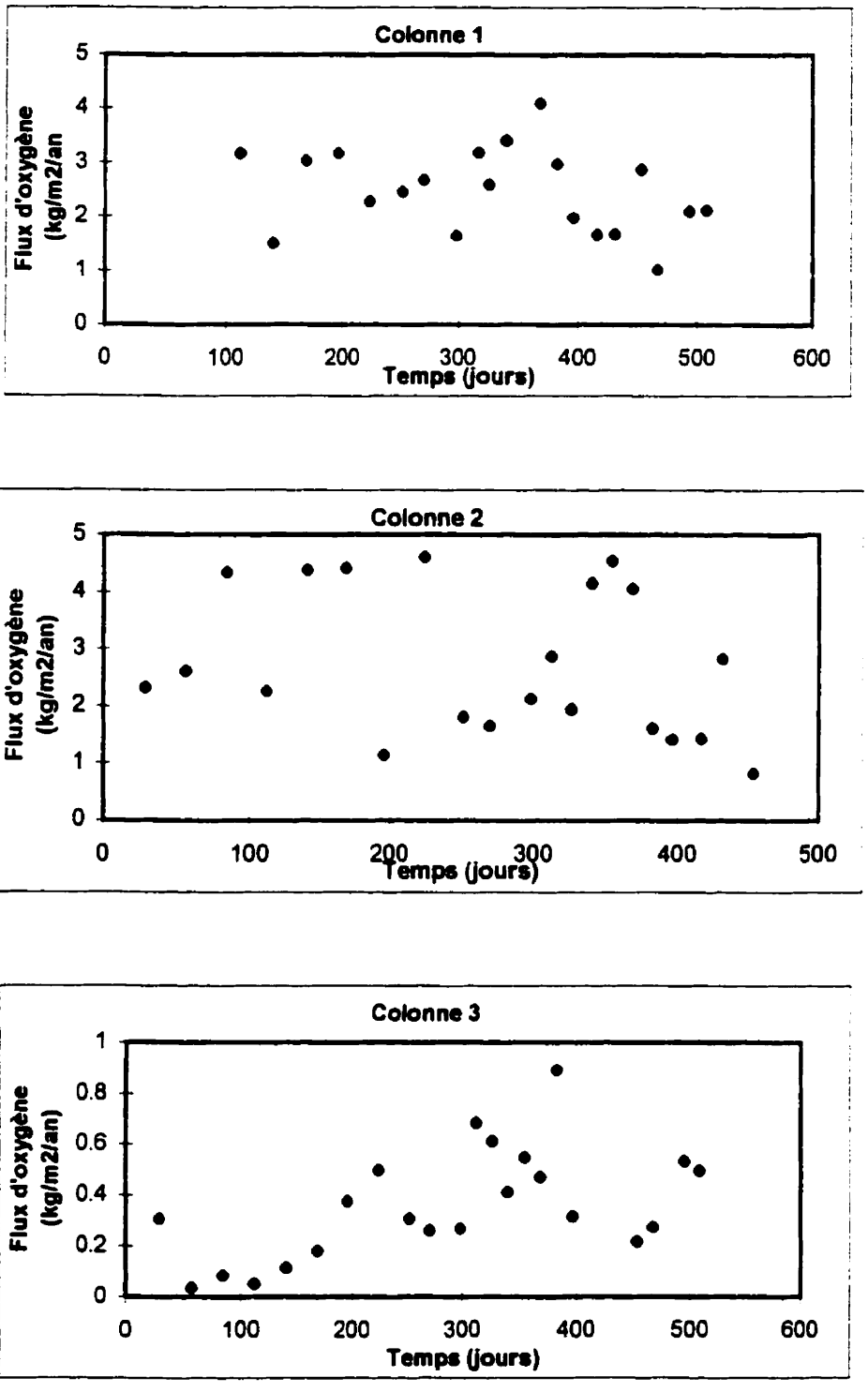
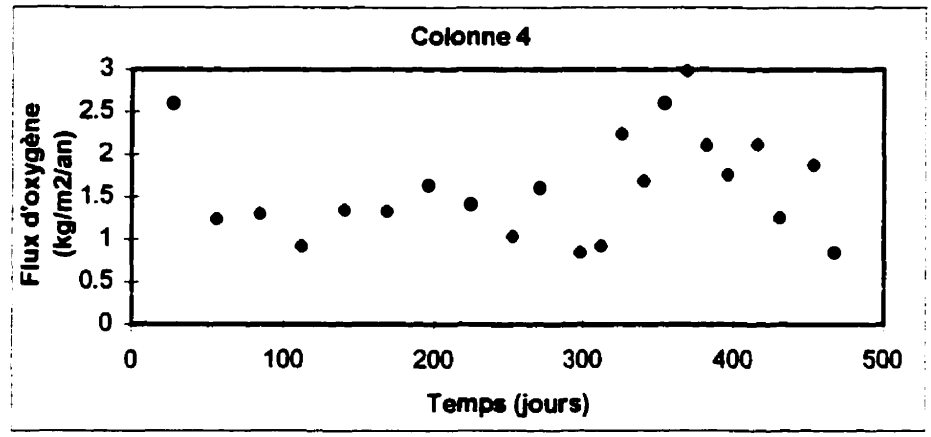
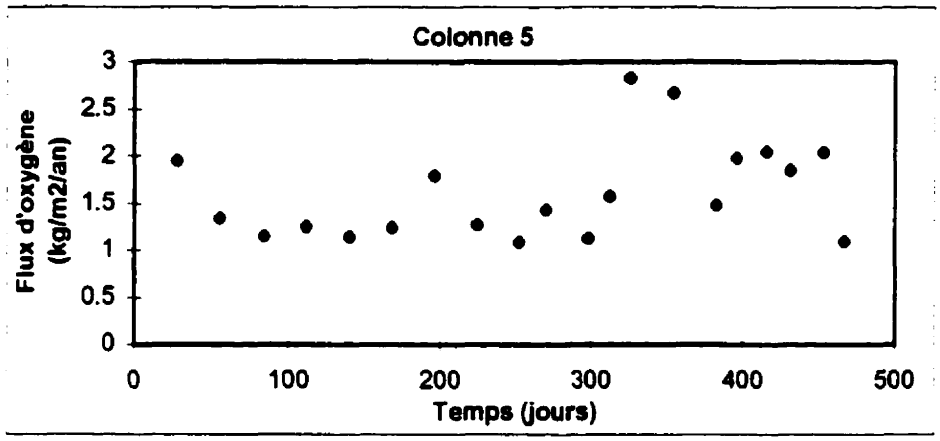


Figure 4.13 : Flux d'oxygène calculés avec la méthode des sulfates





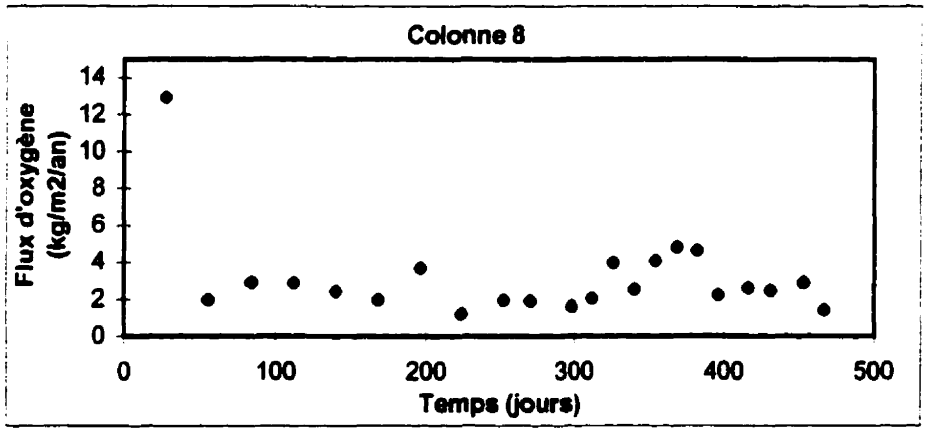


Figure 4.13 (suite) : Flux d'oxygène calculés avec la méthode des sulfates

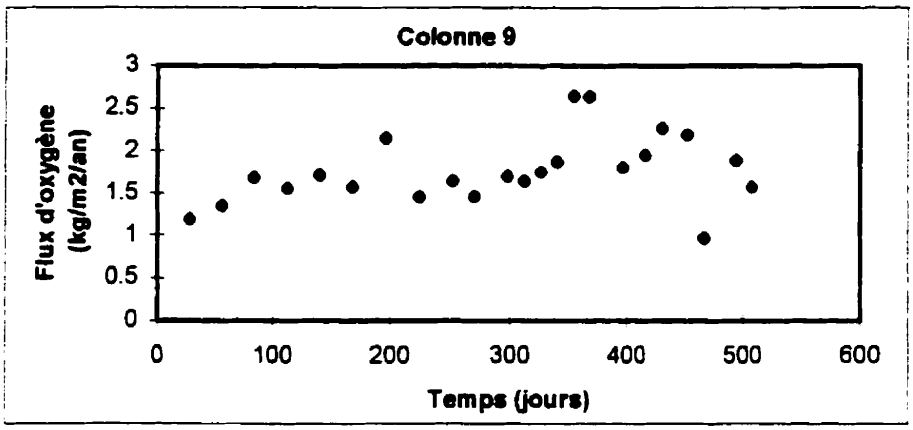
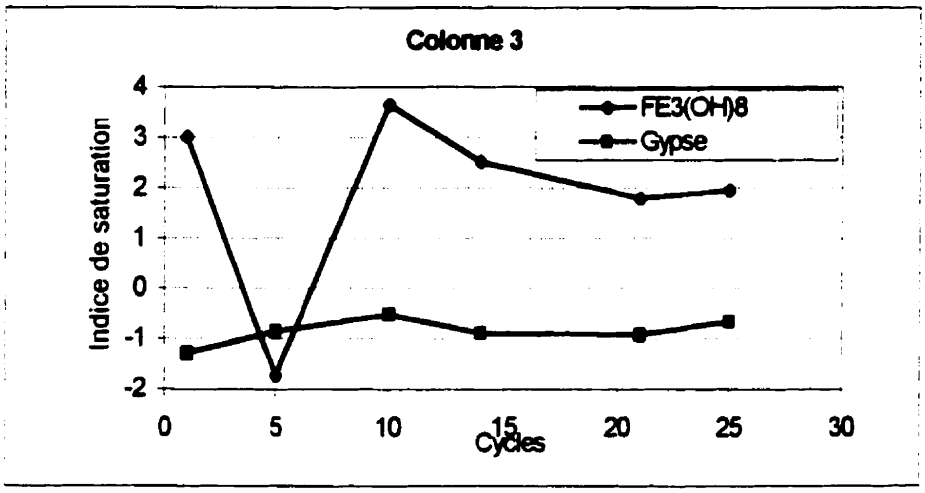


Figure 4.13 (suite et fin) : Flux d'oxygène calculés avec la méthode des sulfates



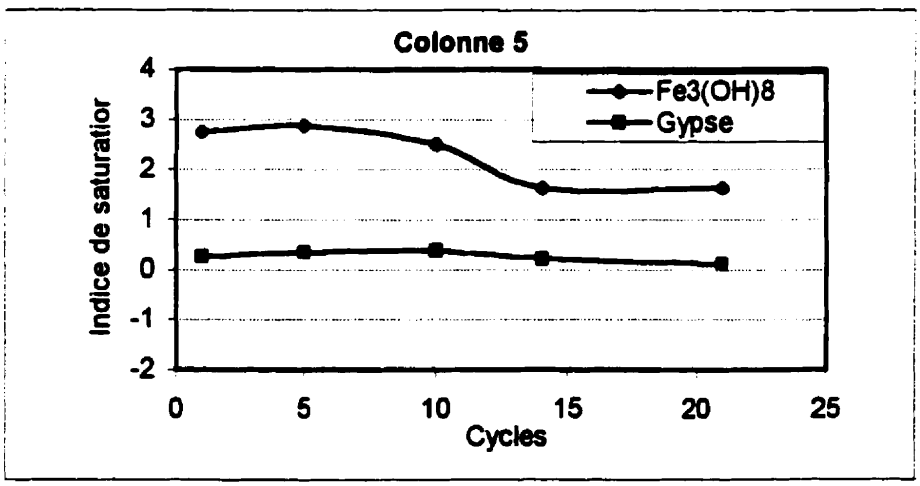


Figure 4.14 : Indices de saturation des eaux de percolation des colonnes 3 et 5

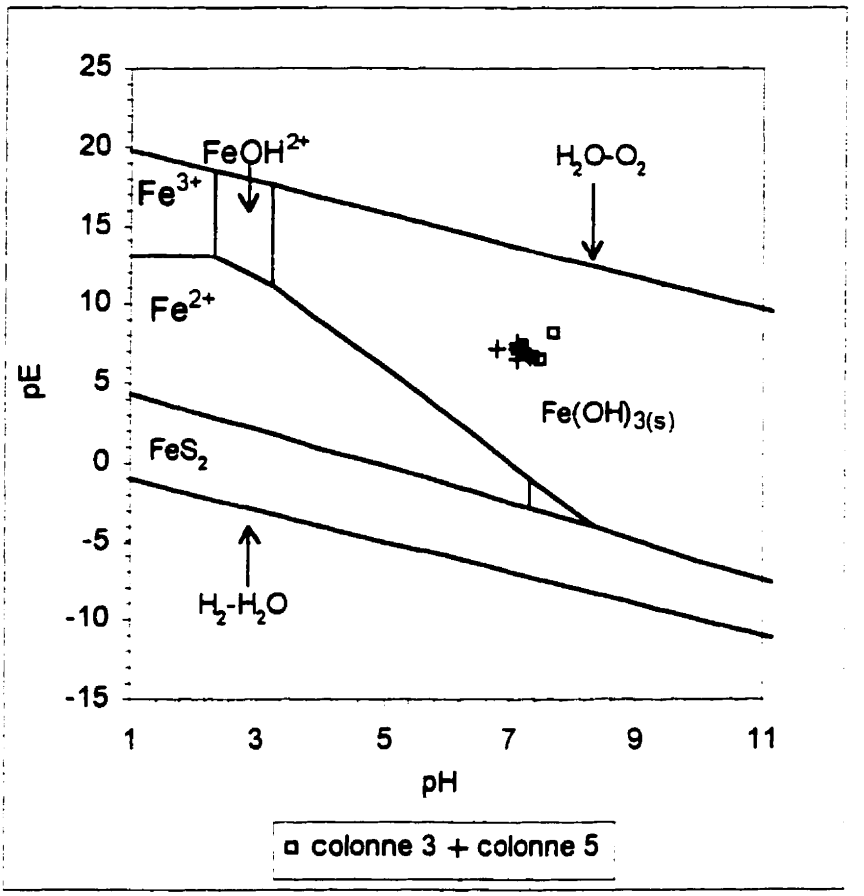


Figure 4.15 :Résultats de la qualité géochimique de l'eau de percolation des colonnes 3 et 5 dans le diagramme Eh-pH des champs de stabilité du système Fe-H_2O pour les cycles 1, 5, 10, 22 et 25.

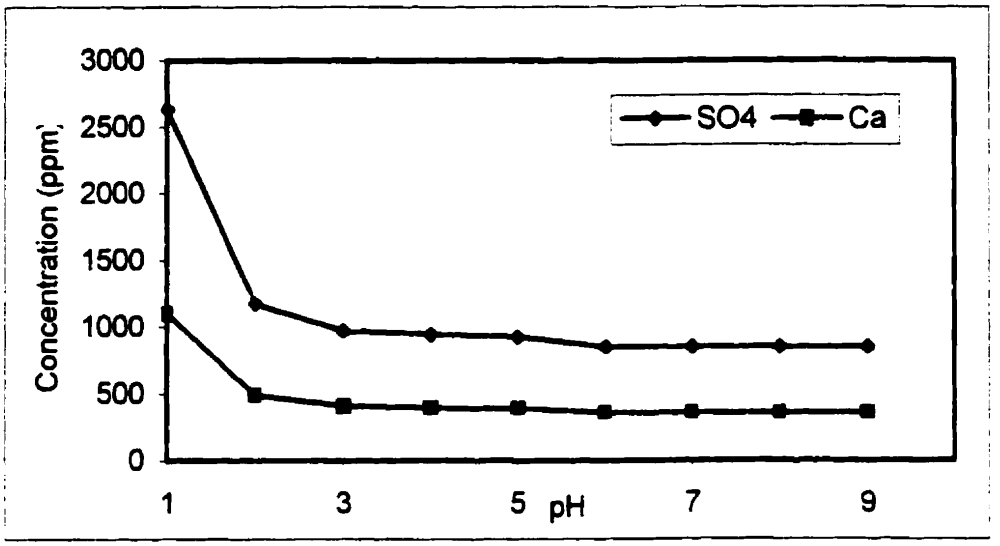


Figure 4.16 : Concentration des ions SO_4 et Ca en fonction du pH lors de la dissolution d'équilibre du gypse

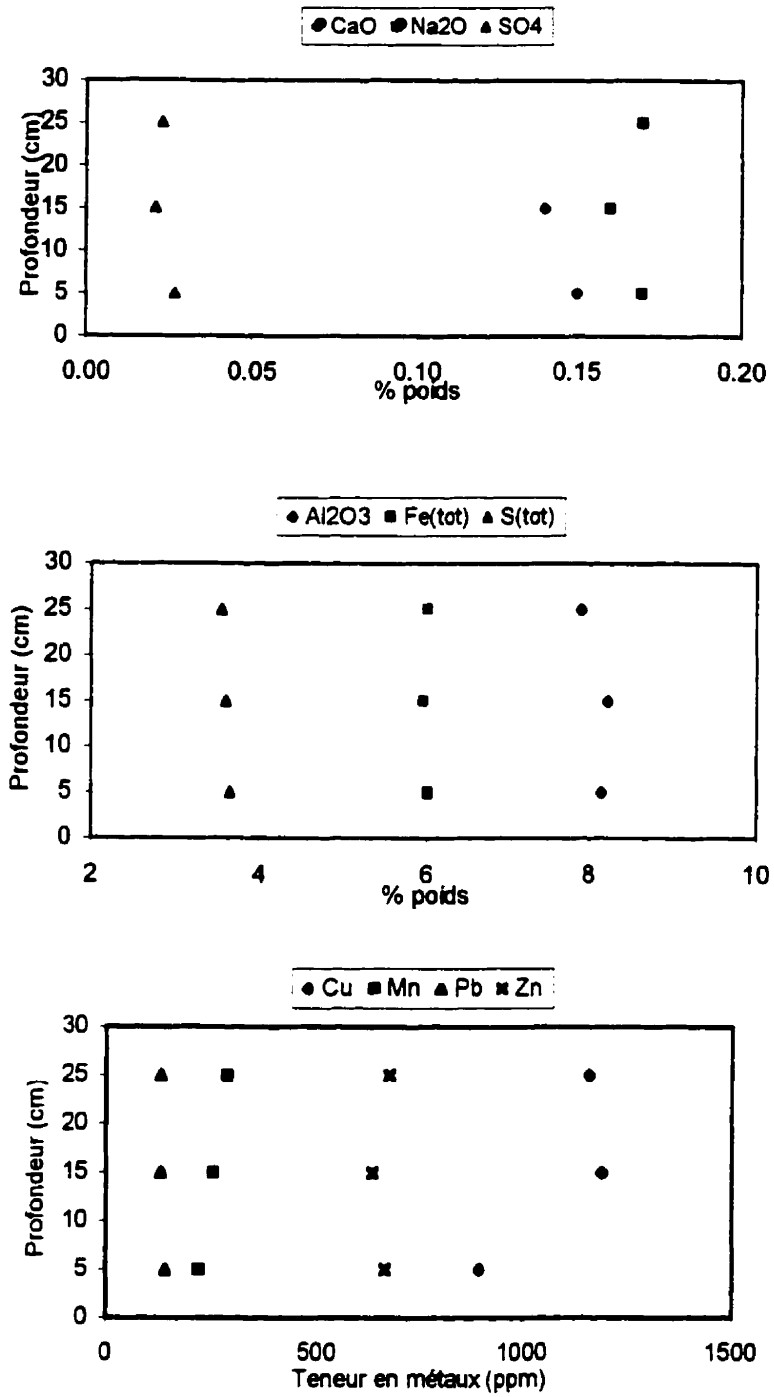


Figure 4.17 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, de soufre total et teneur en métaux en fonction de la profondeur pour le résidu Manitou de la colonne 2

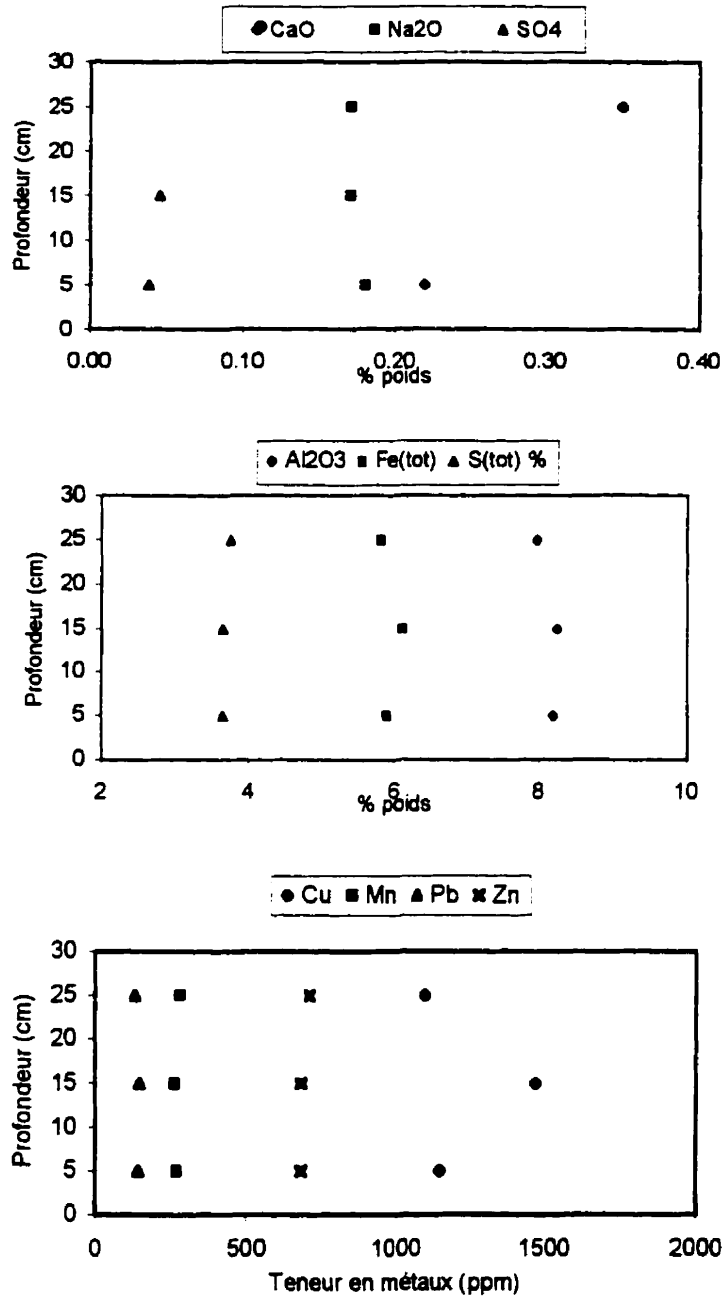


Figure 4.18 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, de soufre total et teneur en métaux en fonction de la profondeur pour le résidu Manitou de la colonne 4

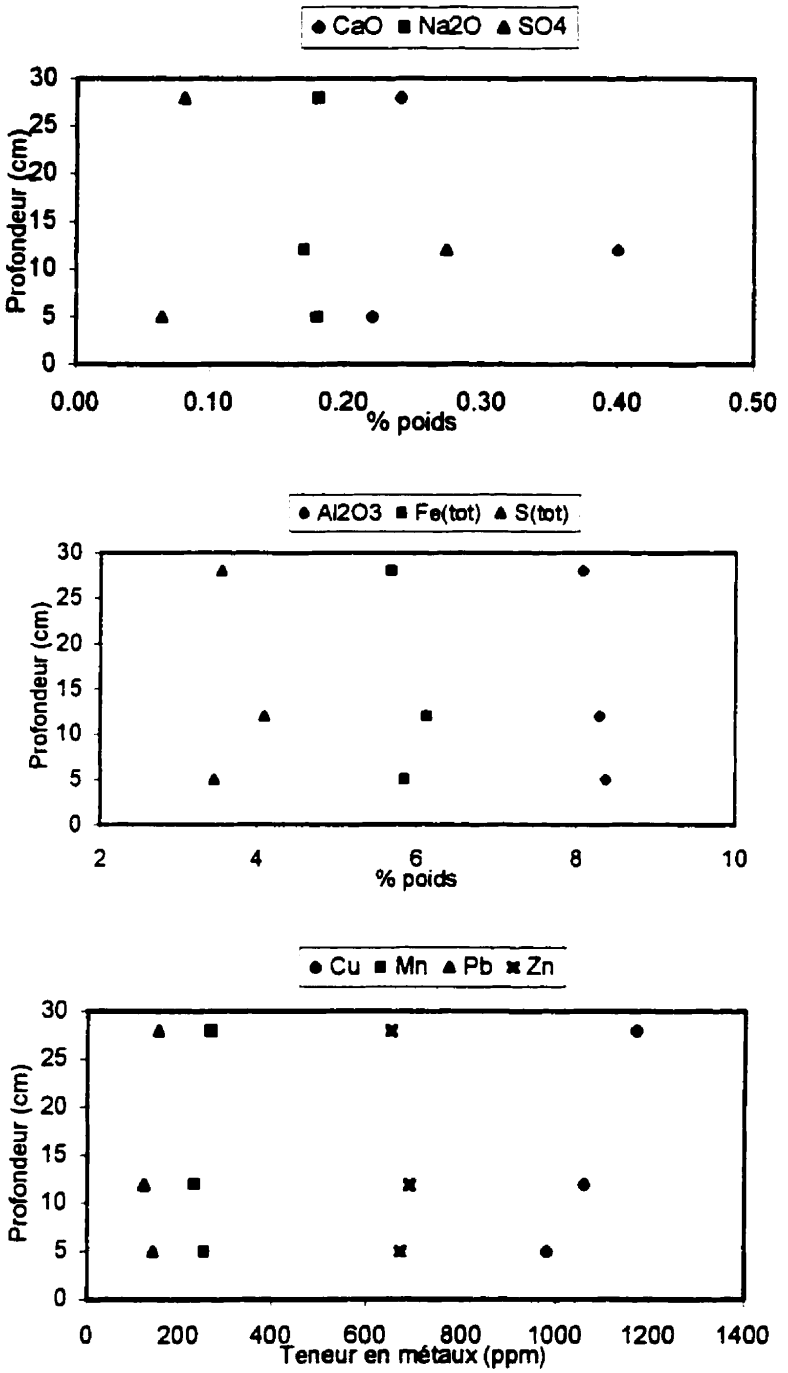


Figure 4.19: Concentration des oxydes d'éléments majeurs, de soufre total et teneur en métaux en fonction de la profondeur pour le résidu Manitou de la colonne 5

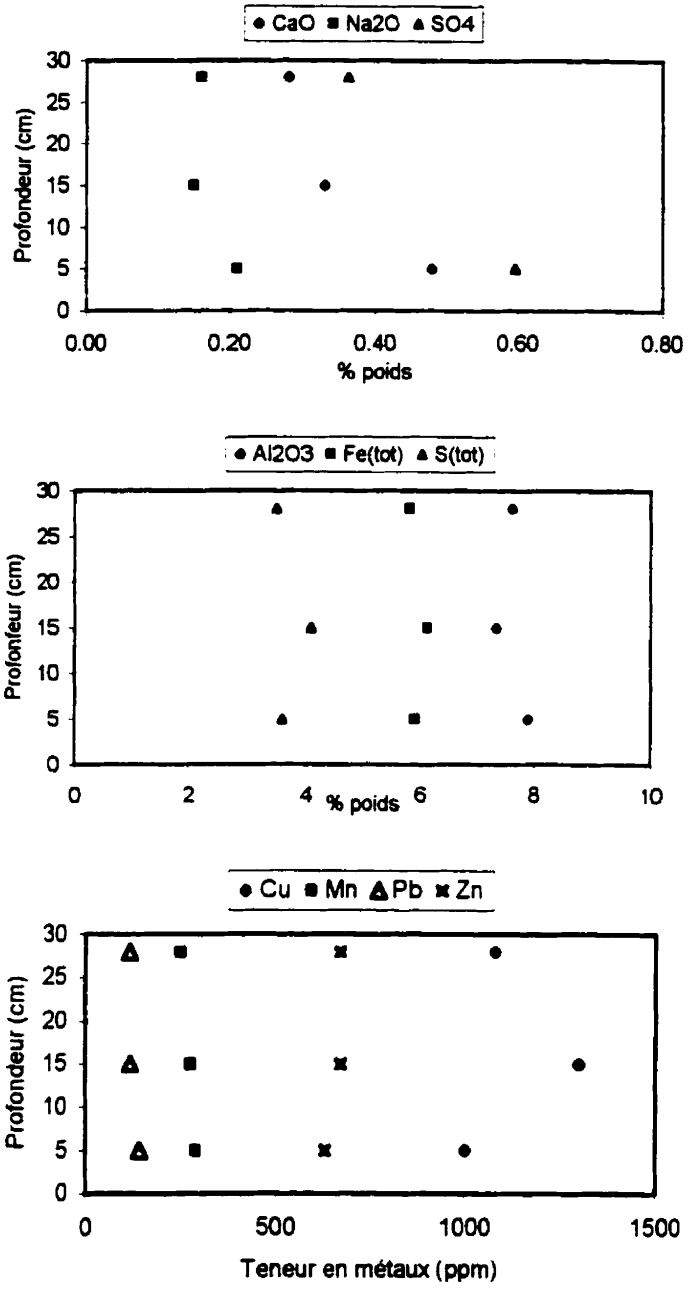


Figure 4.20 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, de soufre total et teneur en métaux en fonction de la profondeur pour le résidu Manitou de la colonne 8

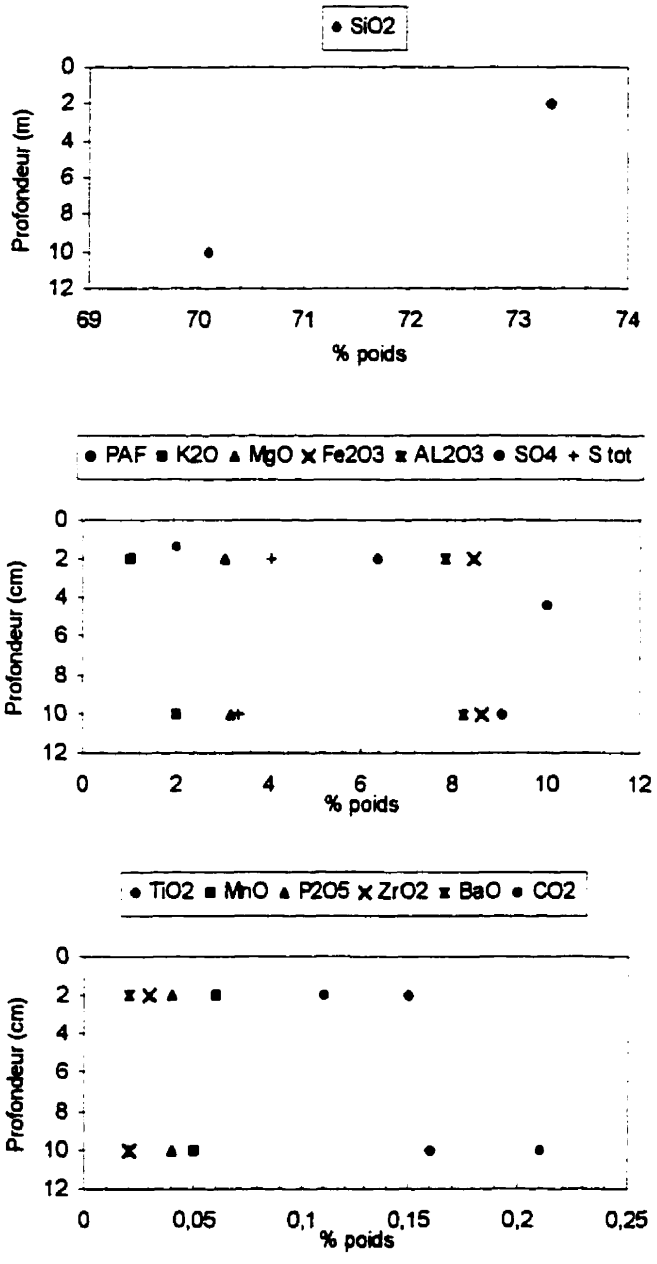


Figure 4.21 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, des sulfures et de soufre total pour le site d'échantillonnage 1

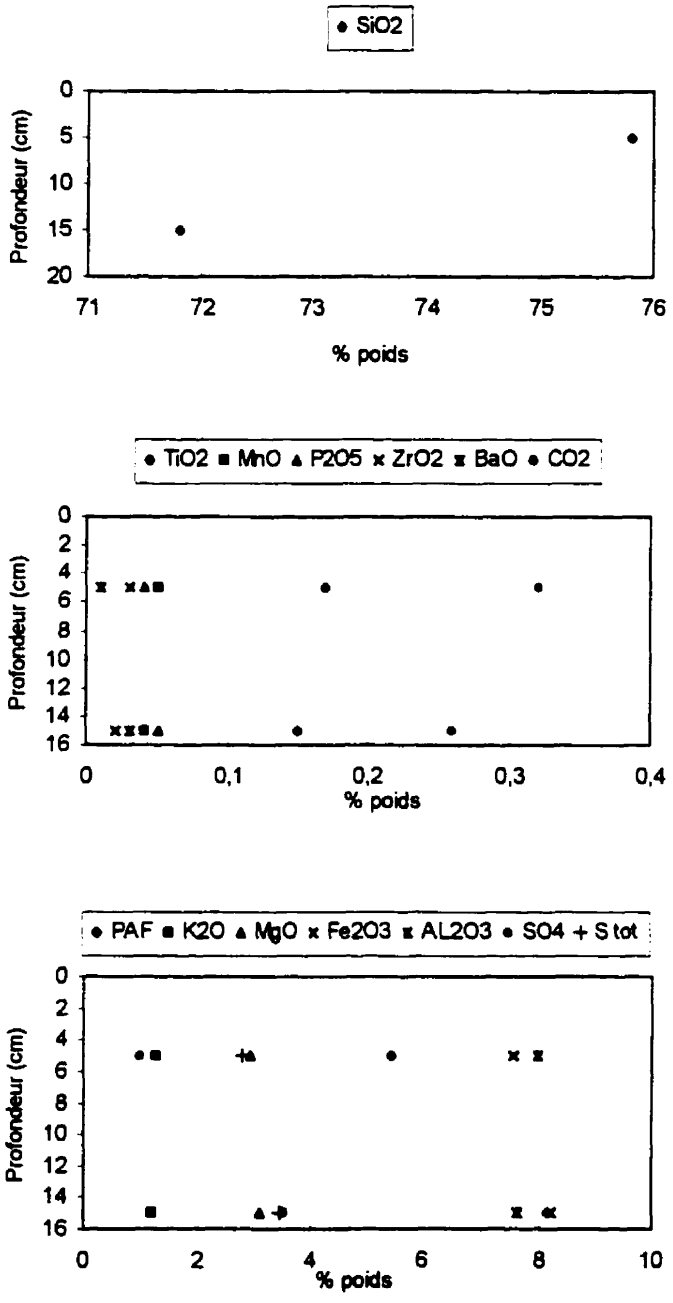


Figure 4.22 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, des sulfures et de soufre total pour le site d'échantillonnage 2

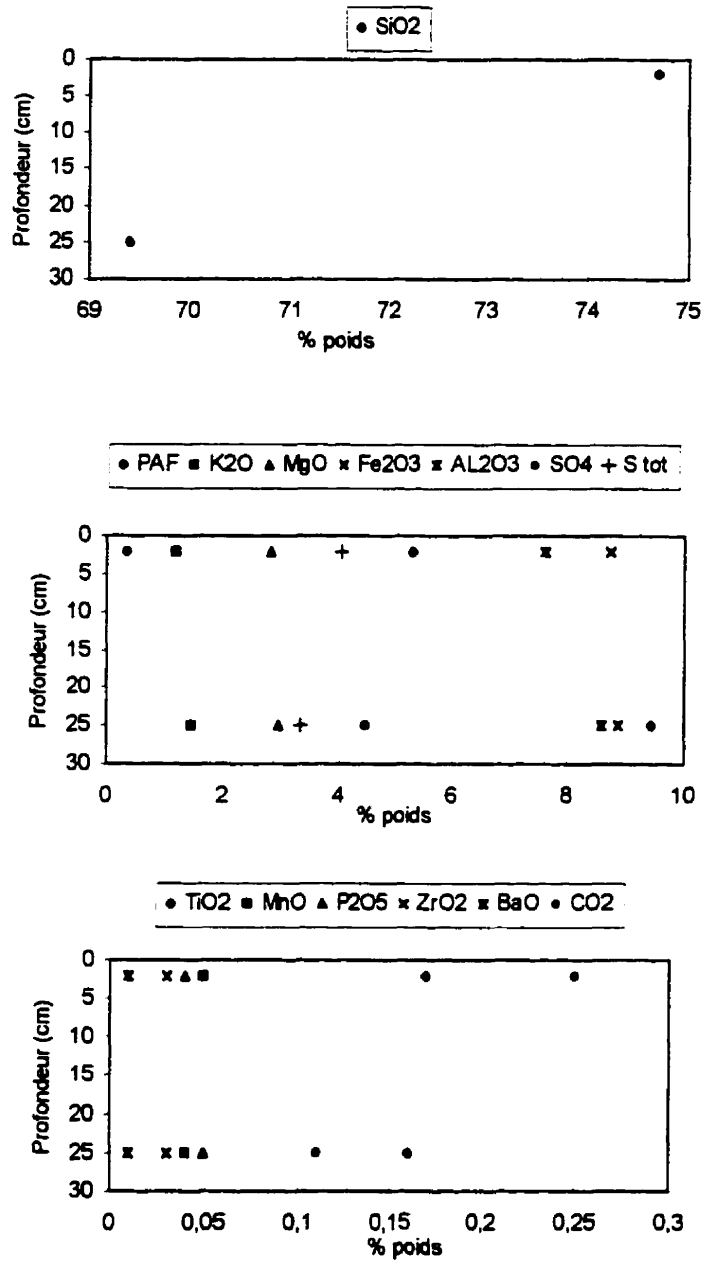


Figure 4.23 : Concentration des oxydes d'éléments majeurs, des sulfures et de soufre total pour le site d'échantillonnage 3

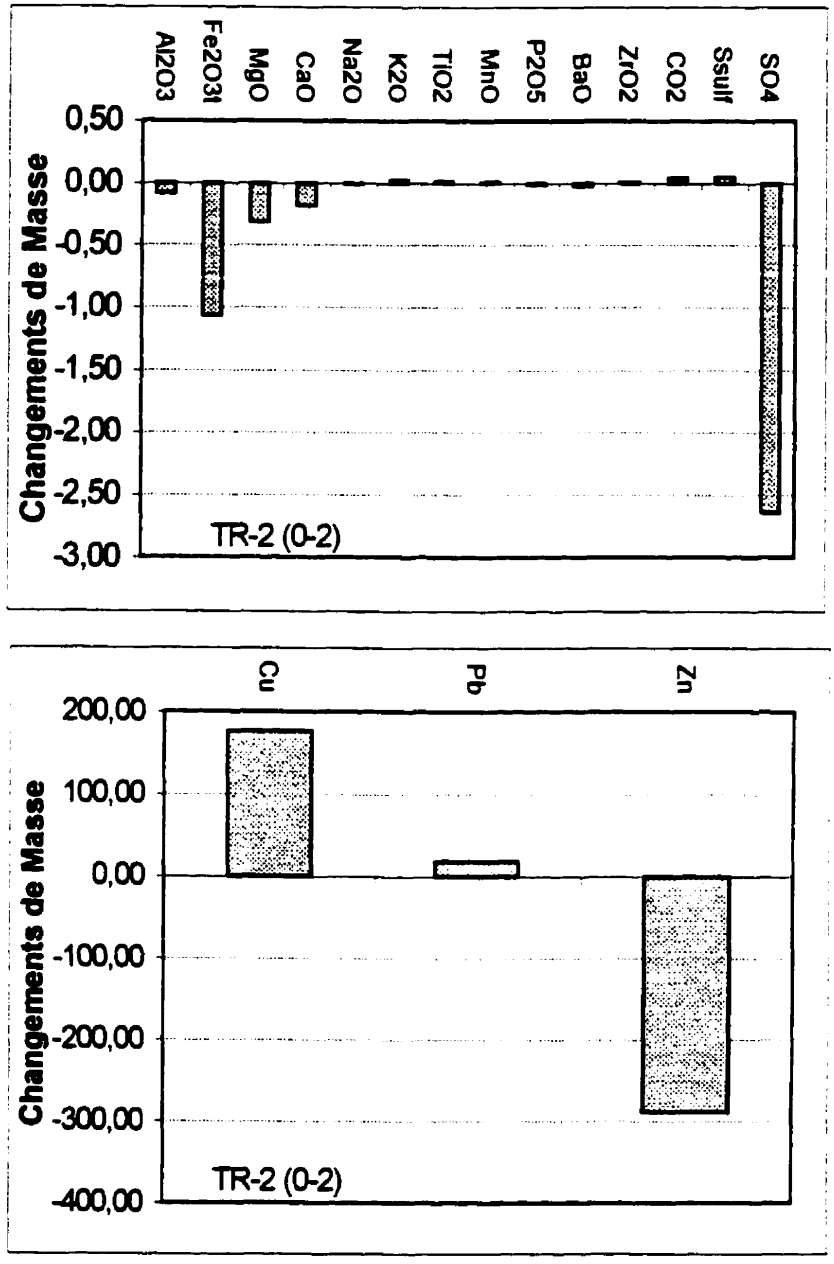


Figure 4.24 : Diagrammes montrant les changements de masse calculés au site d'échantillonnage 2 (0-2cm)

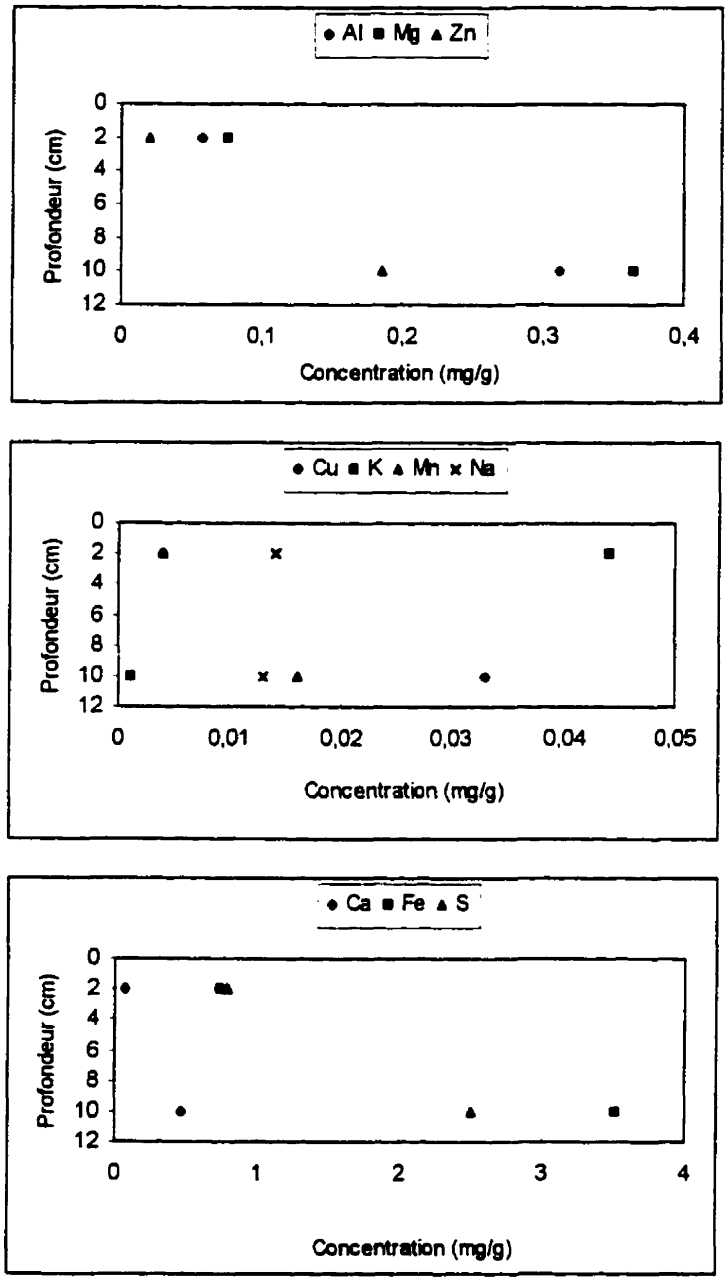


Figure 4.25 : Teneur en métaux en fonction de la profondeur dans la solution de rinçage au site d'échantillonnage 2

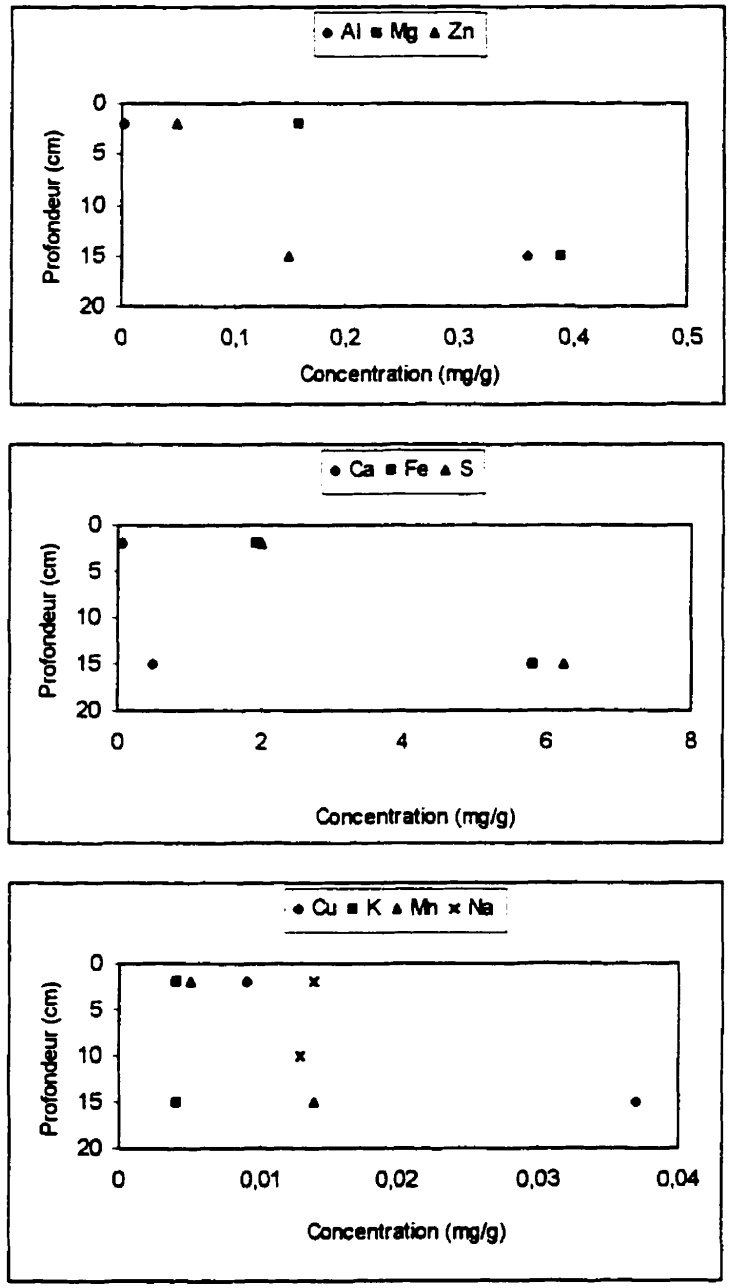


Figure 4.26 Teneur en métaux en fonction de la profondeur dans la solution de rinçage au site d'échantillonnage 2

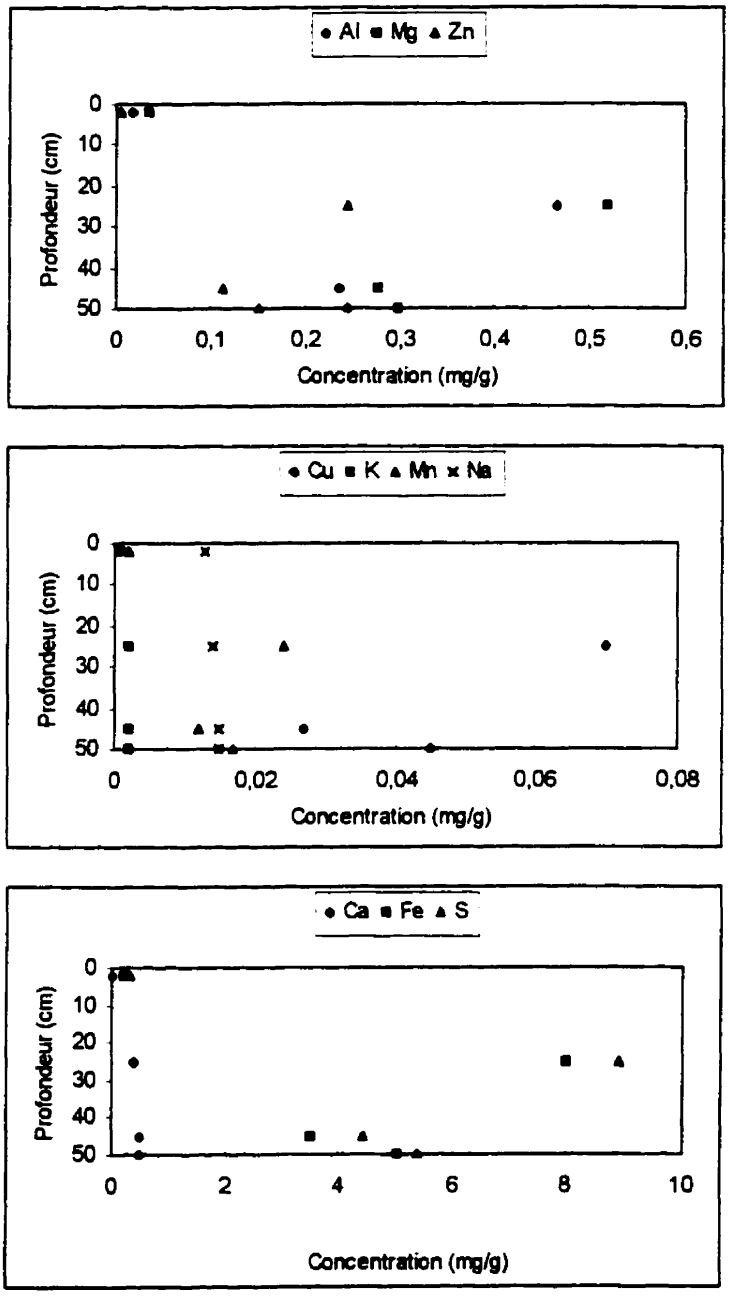


Figure 4.27 : Teneur en métaux en fonction de la profondeur dans la solution de rinçage au site d'échantillonnage 3

CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

Ce mémoire a présenté les résultats d'une étude en laboratoire sur l'efficacité de barrières de recouvrement visant à réduire la production d'eaux de drainage minier acide (DMA).

Pour ce faire, des couvertures multicouches construites à partir de fractions fines de rejets de concentrateur non réactifs et d'un matériau géologique ont été testées en laboratoire. Cette étude a été menée parallèlement à des essais sur le terrain. La configuration des couvertures et les matériaux utilisés lors des essais en colonne de laboratoire étaient les même que ceux utilisés in situ. L'un des objectifs de cette étude de laboratoire visait à isoler les effets propres aux matériaux de ceux reliés aux conditions d'exposition sur le terrain.

Les différentes techniques utilisées pour mieux comprendre le comportement des couvertures et vérifier leur efficacité à limiter le DMA se sont avérées concluantes. Ainsi, les résultats des essais en laboratoire et des simulations numériques supportent pleinement l'hypothèse de travail :les degrés de saturation dans la couche capillaire d'une couverture multicouche sont restés supérieurs à 90% pour l'ensemble des couvertures, et ce, sur une période d'environ 20 mois. Ces degrés de saturation élevés ont contribué à limiter l'infiltration d'oxygène vers les résidus réactifs comme le démontrent les résultats des calculs de flux d'oxygène et le pH du lixiviat recueilli au bas des colonnes. Ce flux dépend du degré de saturation et de l'épaisseur de la couverture, lesquels influencent le temps nécessaire à l'atteinte du régime permanent et l'ampleur du flux stationnaire.

Les résultats au démontage des colonne ont montré des degrés de saturation suffisamment faibles dans la couche de résidu Manitou pour générer la production d'acide. Et ce, même si les colonnes témoin n'ont pas bien joué leur rôle.

Aussi, le suivi de la qualité physico-chimique des effluents n'a pas révélé de signe d'oxydation : les valeurs de pH sont restées neutres, les valeurs de Eh entre 300 et 400mV et les teneurs en métaux et en sulfates sont demeurées relativement faibles et constantes tout au long des essais. De plus, les analyses en sulfates et en métaux dissous dans l'eau de percolation confirment également que les couvertures réduisent grandement la production de DMA et la présence d'éléments solubles.

Toutefois, les analyses des données de percolation ont révélé une contamination externe d'origine inconnue par un sulfate de magnésium dans 3 des 7 colonnes. Les teneurs élevées en ions SO^{2-}_4 et Mg^{2-} se sont toutefois résorbées après quelques cycles de drainage, sans affecter la performance des couvertures.

La comparaison des résultats obtenus des essais en colonne avec des couvertures construites à partir de résidus miniers non réactifs et ceux de la colonne contenant du till montre que les rejets non réactifs de concentrateur sont aussi efficaces à réduire le DMA lorsqu'employés comme couche à rétention capillaire dans une couverture multicouche.

La caractérisation géochimique et hydrogéochimique des résidus oxydés de la cellule expérimentale non recouverte construite in situ a servi de point de référence pour confirmer l'efficacité des couvertures à limiter le DMA. Les valeurs de pH (entre 2 et 3) et les données de conductivité élevées (2000 à 6600 µS/cm) obtenues avec les eaux de rinçage montrent qu'une couverture avec effet de barrière capillaire est efficace pour limiter la production de DMA. Enfin, dans les résidus Manitou in situ, un horizon induré enrichi en éléments Al, Fe et Ca témoigne de l'oxydation de la pyrite.

À la lumière de ces résultats, nous pouvons conclure que **les essais en laboratoire se sont avérés utiles pour évaluer le comportement des couvertures multicouches avec effets de barrière capillaire.** En ce sens, les données de laboratoire confirment les résultats obtenus sur le terrain.

Concernant les études futures, l'utilisation de la bentonite dans la configuration des barrières de recouvrement pourrait être étudiée plus en détail. Ainsi, une structure Sigma grossier/Sigma amendé/sable du bas serait préférable à celle utilisée ici mais devrait faire l'objet de simulations et d'essais.

De plus, les résultats obtenus sur les petites colonnes (sans couverture) ont montré qu'il est possible de prévenir à long terme la production de DMA par de simples effets capillaires. En effet, en maintenant la position de la nappe phréatique sous la surface à une hauteur inférieure à l'AEV du matériau, les résidus demeurent pratiquement saturés par capillarité. Si l'évaporation était limitée par une couche de sable en surface, cette technique présenterait l'avantage d'être peu coûteuse; elle mériterait une investigation plus approfondie.

Finalement, puisque l'on sait que la dissolution des minéraux secondaires en solution contrôle la chimie du lixiviat, il serait profitable, lors d'essais futurs en laboratoire, d'utiliser des résidus non oxydés afin de faciliter l'analyse des résultats.

RÉFÉRENCES

AACHIB, B., AUBERTIN, M., CHAPUIS, R.P., (1993). Étude en laboratoire de la performance des barrières de recouvrement constituées de rejets miniers pour limiter le drainage minier acide - Un état de la question. Rapport EPM/RT-93/32, École Polytechnique de Montréal.

AACHIB, M. (1997). Étude en laboratoire de la performance des barrières de recouvrement constituées de rejets miniers pour limiter le DMA. Thèse Ph.D., Département Génie Minéral, École Polytechnique de Montréal.

AKINDUNNI, F.F., GILLHAM, R.W. et NICHOLSON, R.V. (1991). Numerical simulation to investigate moisture-retention characteristics in the design of oxygen-limiting covers for reactive mine tailings. Canadian Geotechnical Journal, 28 : 446-451.

ALLISON, J.D., BROWN, D.S. NOVO-GRADAC, K.J. (1991). MINTEQA2/PRODEFA2, A geochemical assement model for environmental systems: version 3.0 User's manual. Environmental research laboratory, Office of Research and Development, U.S. Environmental Protection Agency, EPA/600/3-91/021.

ALPERS, C.N., BLOWES, D.W., NORDSTROM,D.K. JAMBOR, J.L. (1994). Secondary minerals and acid mine-water chemistry. Environmental geochemistry of sulphide mine-wastes. Short-course handbook, V.22 Chap.9 p.247-270.

ANON. (1995). L'industrie minérale du Québec, Ministère des Ressources naturelles du Québec.

APPELO, C.A.J., POSTMA, D. (1993). Geochemistry, groundwater and pollution. A.A. Balkema, Rotterdam, 536p.

AUBERTIN, M., AUTHIER, K., JOANES, A.-M., MONZON, M., AACHIB, M. (1998). Gas diffusion through a GCL. Conference on Geosynthetics 99 Boston. (À paraître).

AUBERTIN, M., BUSSIÈRE, B., AACHIB, M., CHAPUIS, R.P., CRESPO, J.R., (1996). Une modélisation numérique des écoulements non saturés dans des couvertures multicouches en sols. Hydrogéologie, 1 :3-13.

AUBERTIN, M., AACHIB, M., MONZON, M., JOANES, A.-M., BUSSIÈRE, B., CHAPUIS, R.P. (1997). Étude de laboratoire sur l'efficacité des barrières de recouvrement construites à partir de résidus miniers-phase II :essais en place. Rapport de recherche Project CDT P1899 (Dec. '97). Soumis à MEND-CANMET, Rapport NEDEM/MEND 2.22.2b

AUBERTIN, M., BUSSIÈRE, B., MONZON, M., JOANES, A.-M., GAGNON, D., BARBERA, J.-M., AACHIB, M., BÉDARD, C., CHAPUIS, R.P. (1999). Étude de laboratoire sur l'efficacité des barrières de recouvrement construites à partir de résidus miniers-phase II :essais en place. Rapport de recherche Project CDT P1899 (Mars '99). Soumis à MEND-CANMET, Rapport NEDEM/MEND 2.22.2c

AUBERTIN, M., CHAPUIS, R.P. (1990). Devis technique- Projet de recherche: Parc à résidus miniers Manitou-Barvue. CDT 1537, Rapport préparé pour le Centre de recherche minérale, École Polytechnique de Montréal, 30p.

AUBERTIN, M., CHAPUIS, R.P. (1991) Considérations hydro-géotechniques pour l'entreposage des résidus miniers dans le nord-ouest du Québec. Deuxième conférence internationale sur la réduction des eaux de drainage acides, Montréal, Vol. 3, pp.1-22

AUBERTIN, M., CHAPUIS, R.P., AACHIB, M., BUSSIÈRE, B., RICARD, J.F. et TREMBLAY, L. (1995). Evaluation en laboratoire de barrières sèches construites à partir de résidus miniers. École Polytechnique de Montréal, MEND Projet 2.22.2a, CANMET, Ottawa (March '96), 164 p.

BALL, J.W., NORDSTROM, D.K. (1991). User's manual for WATEQ4, with revised thermodynamic database and test cases for calculating spaciation of major, trace and redox element in natural waters. U.S. Geological Survey Open-File 91-183, 189p.

BEAR, J. (1972). Dynamics of fluids in porous media. Elsevier , N.Y.

BERNER, R.A. (1978) Rate control of mineral dissolution under earth surface conditions. Am.J. Sci. 278, 1235-1252.

BERNIER, L. (1996). Rapport d'analyses minéralogiques par diffraction des rayons-X sur des échantillons de till et de résidus miniers des mines Sigma et Manitou, Val-D'Or : Phase II. Rapport interne, École Polytechnique, Géoberex Recherche

BERNIER, L. (1997). Caractérisation minéralogique et potentiel d'acidité du résidu minier manitou, Val D'Or. Rapport interne, École Polytechnique, Géoberex Recherche

BERNIER, L.R. (1998). Rapport d'analyses minéralogiques par diffraction des rayons-X sur des échantillons de till et de résidus de mines Sigma et Manitou, Val d'Or: Phase II. Rapport interne, École Polytechnique, Géoberex Recherche (non publié)

BETHKE, C. (1992). The geochemist's workbench: A user's guide to Rxn, ACT2, Tact, React and Gtplot. Copyright to University of Illinois, 174p.

BLOWES, D.W., PTACEK, C.J. (1994). Acid neutralization mechanisms in inactive mine tailings. Environmental geochemistry of sulphide mine-wastes. Short-course handbook, V.22 , Chap 10 271-292.

BUSSIÈRE, B. (1993). Évaluation des propriétés hydrogéologiques de résidus miniers utilisés comme barrière de recouvrement. Mémoire M.Sc.A., Département de génie minéral, École Polytechnique de Montréal, 171p.

BUSSIÈRE, B., BENZAAZOUA, M., AUBERTIN, M., LELIÈVRE, J., BOIS, D., SERVANT, S. (1998). Valorisation des résidus miniers : Une approche intégrée-Phase II. URSTM. Rapport final. 198p.

BUSSIÈRE, B., NICHOLSON, R.V., AUBERTIN, M., BENZAAZOUA, M. (1997). Evaluation of the effectivenes of covers built with desulfurized tailings for preventing Acid Mine Drainage. Proceedings of the 50th Canadian Geotechnical Conference, Ottawa, 1 : 17-25.

CHAPMAN, J.T., HOCKLEY, D.E., ROBERSTON, A. MACG, BROUGHTON, L.M. (1994). Rock-pile water quality modelling- the Q-ROCK mathematical model (based upon a presentation at the environmental management for mining conference, Saskatoon, October 27-29, 1993)

CHAPUIS , R.P., et MONTOUR, I. (1992). Évaluation de l'équation de Kozeny-Carman pour prédire la conductivité hydraulique. Compte Rendu, 45e Conférence Canadienne de Géotechnique, Toronto, pp. 78-1-78-10.

CHILDS, E.C. ET COLLIS-GEORGE, G.N. (1950). The permeability of porous materials. Proceedings of the Royal Society of London, Series A, 201 :392-405

COLLIN, M. (1987). Mathematical modelling of water and oxygen transportation in layered soil covers for deposits of pyritic mine tailings. Thèse de doctorat, Royal Institute of technology, Suède. Department of Chemical Engineering, S-100 44, Stockholm, Sweden.

COLLIN, M., (1998). The Bersbo Pilot Project. Numerical Simulation of Water and Oxygen Transport in the Soil Covers at the Mine Waste Deposits. Swedish Environmental Protection Agency Report.

COLLIN, M., RASMUSON, A. (1988). Gas diffusivity models for unsaturated porous media. Soil Sciences American Journal, Vol.52: 1559-1565.

CRANK, J. (1975). The Mathematics of Diffusion. 2nd edition. Clarendon Press, Oxford, United Kingdom.

CURRIE, J.A. (1960). Gaseous diffusion in porous media. Part 1 : A non-steady state method. Part 2: Dry granular materials. Brit. J. Appl. Physics, 11, 314-324.

DAVELER, S.A., WOLERY, T.J. (1992). EQPT, a data file preprocessor for the EQ3/6 software package: User's guide and related documentation (Version 7.0) UCRL-MA-110662 PT II, 89p.

DAVIES, C.W., (1962). Ion association : Butterworths, London

DAVIS, G.B. et RITCHIE, A.I.M., (1982). A Mathematical Model for Pyrite Oxidation In Waste Rock Dumps. Proc. 5th Conf. of the Simulation Society of Australia, may 1982, p.137-141.

DAVIS, G.B. et RITCHIE, A.I.M., (1986). A Model of Oxidation in Pyritic Mine Wastes: Part 1, Equations and Approximate Solutions, Appli. Math. Modelling 10:310-322.

DAVIS, J.A., et KENT, D.B. (1990). Surface complexion modelling in aqueous geochemistry. In Mineral-Water Interface Geochemistry, HOCHELLA, M.F. and WHITE, A.T. (eds). Min. Soc. Amer. Reviews in Mineralogy 23, 177-230.

DEBYE, P. et HUCKEL. E. (1923). On the theory of electrolytes: Physical Z 185-208, 305-325.

EATON, J.W. (1995). A high-level interactive language for numerical computations. Edition 1.1 for Octave version 1.1.1. GNU Software foundation

EBERLING,B., NICHOLSON.R.V., REARDON, E.J. et TIBBLE, P. (1994). Evaluation of sulphide oxidation rates : a laboratory study comparing oxygen fluxes and rates of oxidation product release. Canadian geotechnical journal, 31 :375-383.

FREEZE, R.A., CHERRY, J.A. (1979). Groundwater, Prentice-Hall, Englewoods Cliffs, New Jersey, 600p.

FRIND, E.O., GILLHAM, R.W., PICKENS, J.F. (1976). Application of unsaturated flow properties in the design of geologic environments for radioactive waste storage facilities. Proceedings of the First Conference on Finite Elements in Water Ressources, Princeton University.

FRIND, E.O., MOLSON, J.W. (1994). Modelling of mill-tailings impoundments. Environmental geochemistry of sulphide mine-wastes. Short-course handbook, V.22 , Chap 2, 19-58.

FURRER, G., WESTALL, J.C., SOLLINS, P. (1989). The study of soil chemistry through quasi-steady-state models: I Mathematical definition of model. Geochemica Cosmochimica Acta, 53:2363-2374.

FURRER, G., SOLLINS, P., WESTALL, J.C. (1990). The study of soil chemistry through quasi-steady-state models: II Acidity of soils solutions. Geochimica Cosmochimica Acta 54: 595-601.

GARRELS, R.M., THOMPSON, M.E. (1960). Oxidation of pyrite by iron sulphate solutions. American Journal of Science 258: 402-418.

GEOSLOPE International, (1994). SEEP/W User's guide, Version 3.

HARRIES, J.R., et RITCHIE, A.I.M. (1981). The use of temperature profiles to estimate the pyritic oxidation rate in a waste rock dump from an open cut mine, Water, air and soil pollution, 15:405-423.

HARRIES, J.R., et RITCHIE, A.I.M. (1983). The microenvironment within waste rock dumps undergoing pyritic oxidation, Proc. Int. Symp. on Biohydrometallurgy, Calgary, 1er au 4 mai.

HASKINS, H.K., HART, T.J., MARTIR, W.K., MOSS, R.M., DUDLEY, J. AND MOORE, C. (1989). Modelling acid stimulation of the Halfway Formation, Canada using REACTRAN, a geochemical computer model. In Proceedings of the 6th Int. Symposium on Water-Rock Interaction. ED: D.L. Miles, Balkema, Rotterdam, 289-292.

HILLEL, D. (1971). Soil and Water: Physical Principles and Processes. Academic Press, N.Y.

HUTCHISON, I.P., ELLISON, R.D. (1992). Mine Waste management. California Mining Association.

JOHNSON, J.W. OELKOERS, E.H. HELGESON, H.C. (1992). SUPCRT92: A software package for calculating the standards molal thermodynamic properties of minerals, gases and aqueous species and reactions from 1 to 5000 bar and o to 1000C. Computers & Geosciences 18: 899-947.

KHARAKA, Y.K., GUNTER, W.D, AGGARWAL, P.K., HULL, R.W. , PERKINS, E.H. (1988). SOLMINEQ.88: A computer program code for geochemical modelling of water-rock interactions, U.S. Geological Survey Water Resources Investigations Report 88-4227, Menlo Park, California, 420p.

LEVENSPIEL, O. (1972). Chemical reaction engineering, John Wiley & Sons, Inc. New York

LICHTNER, P.C. (1985). Continuum model for simultaneous chemical reactions and mass transport in hydrothermal systems. Geochimica Cosmochimica Acta 49: 779-800

MAGNUSSON, M., RASMUSON, A. (1983) (dans SRK, 1989). Transportberakningar pd vittringsforloppet i gruvavfall, The National Swedish Environmental Protection Board, rapport SNV PM 1689.

MARCOTTE, R. (1994). Inventaire, classification et coûts de restauration des sites miniers du Québec. Ministère des ressources naturelles du Québec.

MILLINGTON, R.J., SHEARER, R.C. (1971). Diffusion in aggregated porous media. Soil Science, 111, 372-378.

MONZON, M. (1998). Étude en laboratoire des propriétés hydrogéotechniques des résidus miniers utilisés comme barrière de recouvrement. Mémoire M.Sc.A, Département Génie Minéral, École Polytechnique de Montréal. 150p.

MORIN, K.A. et HUTT, N. M., (1997). Environmental Geochemistry of Minesite Drainage : Practical theory and case studies, MDAG Publishing, 333p.

NICHOLSON, R.V., GILLHAM, R.W., CHERRY, J.A. et REARDON, E.J. (1989). Reduction of acid generation in mine tailings through moisture-retaining cover layers as oxygen barriers. Canadian Geotechnical Journal, 26 : 1-8.

NORDSTROM, M.K. (1982). Aqueous pyrite oxidation and the consequent formation of secondary minerals. In Acid Sulfate Weathering, Soil Science Society of America, Special Publication 10, 37-56.

NORDSTROM, M.K. et MUNOZ, (1994). Geochemical Thermodynamics. Blackwell Scientific Publications, 477 p.

NOVAK, C.F. (1993). Development of the FMT chemical transport simulator: Advective transport sensitivity to aqueous density and mineral volume for reaction coupled to phase compositions. Sandia National Lab., SAND93-0429C, 22p.

O'KANE, M., WILSON, G.W., BARBOUR, S.L. (1998). Instrumentation and monitoring of an engineered soil cover system for mine waste rock. Canadian Geotechnical Journal, 35:5, 828-846.

ORTOLEVA, A.P., MERINO, E., MOORE, C., CHADAM, J., (1987). Geochemical self organization in reaction transport feedbacks and modelling approach. American, J. Science, 287: 979-1007

PANTELIS, G. (1993). FIDHELM: Description of model and users guide. Propriety report, Environmental Science program of the Australian Nuclear Science and Technology Organisation.

PARKHURST, D.L. (1996). User's guide to PHREEQC- a computer program for speciation, reaction-path, advective transport and inverse geochemical calculations. Manuel de l'utilisateur.

PARKHURST, D.L., THORSTENSON, D.C., PLUMMER, L.N. (1980). PHREEQE- A computer program for geochemical calculations. U.S. Geological Survey Water-Resources investigations. Rapport 80-96, 195p.

PERKINS, E.H., NESBITT, H.W., GUNTER, W.D., ST-ARNAUD, L.C., MYCROFT, J.R. (1995). Critical review of geochemical processes and geochemical models adaptable for prediction of acidic drainage from waste rock. Rapport du MEND 1.42.1, 120p.

PITZER, K.S., (1973). Thermodynamics of electrolytes - 1. Theoretical basis and general equations : Journal of Physical Chemistry, 77 :268-277.

PITZER, K.S. AND KIM, J.J. (1974). Thermodynamics of electrolytes. IV. Activity and osmotic coefficients for mixed electrolytes : Journal of Solution Chemistry. 3 :539-546

RASMUSON, A., ERIKSON, J.C. (1987). Capillary barriers in covers for mine tailings dumps. Report 3307, The National Swedish Environmental Protection Board.

REED, M.H. (1982). Calculation of multicomponent chemical equilibria of acid mine-drainage: The $FeSO_4$-H_2SO_4-H_2O system. Geochimica, Cosmochimica Acta 51:2355-2368.

REED, M.H. (1992). Calculations of multicomponent chemical equilibria and reaction processes in systems involving minerals, gases and an aqueous phase. Geochimica Cosmochimica Acta, 46: 513-528.

REED, M.H., SPYCHER, N.F. (1984). Calculation of pH and mineral equilibria in hydrothermal waters with application to geothermometry and studies of boiling and dilution. Cosmochimica Acta, 48, 1479-1492.

RICARD, J.-F., AUBERTIN, M. ET GARAND, P. (1997). Performance d'un recouvrement multicouche au site-Barrick-Bousquet de les terrains aurifères, Québec, Canada. Compte-rendu. Rejets industriels et prévention de la pollution.20e symposium sur les eaux usées. p.293-305

RITCHIE, A.I.M., (1977). Mathematical Model for Pyrite Oxidation, AAEC/E365.

ROWE, R.K., BROOKER, J.R. (1985). 1-D pollutant migration in soils of finite depth. Journal of Geothecnical Engineering, ASCE, Vol. 111, (GT4)p.479-499.

ROWE, R.K., BROOKER, J.R., FRASER, M.J. (1994). POLLUTEV6 and POLLUTE-GUI- User's Guide. GAES Environmental Engineering Ltd, London, Ontario, 305p.

SEGOUVIAN, S.D., LAKE, L.W., SCHECHTER, R.S. (1992). A new geochemical simulator to design more effective sandstone acidizing treatments. 67th Annual Technical Conference and Exhibition of the Soc. Of Petrol. Engineers, Washington, D.C., SPE paper #24780, 161-175.

SENES CONSULTANTS LIMITED et BEAK CONSULTANTS LIMITED (1986). Estimation of the Limits of Acid Generation by Bacterially-Assisted Oxidation in Uranium Mill Tailings, DSS file 15SQ.23241-5-1712

SENES CONSULTANTS (1991). Reactive acid tailings assessments program (RATAP.BMT3), Richmond Hill, Ontario.

SCHARER, J.M. ANNABLE,W.K., NICHOLSON, R.V. (1993). WATAIL 1.0: User's manual, A tailings basin model to evaluate transient water quality of acid mine drainage. Instit. of Groundwater Research, University of Waterloo, 74p.

SCHARER, J.M., PETTIT, C.M., CHAMBERS, D., KWONG, E.C. (1994). Mathematical simulation of a waste rock heap. Proceedings of the 3rd International Conference on the Abatement of Acidic Drainage. U.S. Dept. Int.Bur.Mines Special Pub. SP06A-94, V.1, 30-39

SPYCHER, N.F., REED, M.H. (1988). Fugacity coefficients of H2, CO2, CH4, H2O and of H2O-Co2-CH4 mixtures: A virial equation treatment for moderate pressures applicable to calculations of hydrothermal boiling. Geochimica Cosmochimica Acta, 52: 739-749

SPYCHER, N.F., REED, M.H. (1990a). Users guide for SOLVEQ: A program for computing aqueous-mineral-gas equilibria. Department of Geological sciences, University of Oregon, Eugene, Oregon, 947403, 37p.

SPYCHER, N.F., REED, M.H. (1990b). Users guide for CHILLER: A program for computing water-rock reactions, boiling, mixing and other reaction processes in aqueous-mineral-gas systems. Department of Geological sciences, University of Oregon, Eugene, Oregon, 947403, 70p.

SRK (Steffen, Robertson et Kirsten). (1989). Guide technique du drainage minier acide. BC AMD Task Force, Vol.1.

STEEFEL, C.I. (1993). IDREACT: A one-dimensional reaction-transport model, users manual and programmers guide. Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington, 39p.

STRÖMBERG, B., (1997). Weathering kinetics of sulphidic mining waste: An assessment of geochemical processes in Aitik mining waste rock deposits. AFR Report 159. Dept. of Chemistry, Inorganic Chemistry, Royal Institute of Technology, Sweden.

STUMM, W., MORGAN, J.J. (1981). Aquatic geochemistry- An introduction emphasising chemical equilibria in natural wastes. John Wiley and Sons, 780p.

TOPP, G.C., DAVIS, J.L., ANNAN, A.P. (1980). Electromagnetic determination of soil content: Measurements in coaxial transmission lines. Water Resources Research, 16, 3, 574-582.

TOPP, G.C. (1987). The application of time domain reflectometry (TDR) to soil water content measurement. Proc. of Inter Conference on Measurement of Soil and Plant Water Status, 1, 85-93.

TREMBLAY, L. (1995). Étude du transport de l'oxygène dans des matériaux poreux partiellement saturés. Mémoire M.Sc.A., Département de génie minéral, École Polytechnique de Montréal. 187p.

VAN GENUCHTEN , M. Th. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil Sci. Am. J., Vol. 44. pp. 892-898.

VAN GENUCHTEN , M. Th., LEIJ, F.J. et YATES, S.R. (1991). The RETC code for quantifying the hydraulic functions of unsaturated soils. Environmental Protection Agency, EPA/600-2-91/065

WOLERY, T.J. (1992a). EQ3/6, A software package for geochemical modelling of aqueous systems: Package overview and installation guide (Version 7.0) UCRL-MA-110662 PT I, 66p.

WOLERY, T.J. (1992b). EQ3NR, A computer program for geochemical aqueous speciation-solubility calculations: Theoretical manual, User's guide and related documentation (Version 7.0) UCRL-MA-110662 PT III, 246p.

WOLERY, T.J. DAVELER, S.A. (1992). EQ6 a computer program for reaction path modelling of aqueous geochemical systems: Theoretical manual, User's guide and related documentation (version 7.0). UCRL-MA-110662 PT IV, 338p.

WUNDERLY, M.D., BLOWES, D.W., FRIND, E.O., PTACEK, C.J. (1996). Sulphide mineral oxidation and subsequent reactive transport of oxidation products in mine tailings impoundment: A numerical model. Water resources research, 32 :10: 3170-3187.

YANFUL, E.K., (1993).Oxygen Diffusion through soil covers on sulphidic mill tailings. Journal of Geotechnical Engineering, ASCE, 119:8, 1207-1228.

ANNEXE I

Survol des modèles géochimiques

Cette annexe présente une revue des principaux modèles géochimiques disponibles sur le marché. Les modèles sont présentés en cinq catégories, soit les modèles thermodynamiques, les modèles de transfert de masse, de transfert de masse-écoulement, les modèles de soutien et finalement les modèles géochimiques d'ingénierie.

Modèles thermodynamiques

EQ3

Le codeEQ3 permet principalement de calculer les indices de saturation des espèces en solution et donne un aperçu des phases minérales présentes en solution (Wolery, 1992a et b; Daveler et Wolery, 1992). L'utilisateur peut modifier les paramètres d'entrée. Les paramètres tels que le pH, le Eh et la fugacité de l'oxygène peuvent être spécifiés. Cinq bases de données thermodynamiques accompagnent le programme. Le code EQ3 est un précurseur du code EQ6 (voir section sur les modèles de transfert de masse). Les résultats d'analyse obtenus sont donnés en deux parties ; dans un premier temps on expose les concentrations et l'activité de chaque espèce en solution et la seconde étape consiste à donner les indices de saturation pour les réactions qui ne sont pas à l'équilibre.

SOLMINEQ

Le code SOLMINEQ.88 a été développé par la commission géologique des États-Unis et par le conseil de recherche de l'Alberta. Ce dernier fonctionne comme EQ6 mais permet d'ajuster la pression jusqu'à 1 kilobar. L'utilisateur a également l'option de choisir l'équation de Pitzer. Le modèle incorpore également des options de transfert de masse (point d'ébullition, mélange de fluides, partition des gaz, dissolution des phases

minérales et précipitation) et d'échange d'ions ainsi que des modèles d'adsorption d'ions.

PHREEQE ET PHRQPITZ

Le code PHREEQE (Parkhurst et al., 1980) utilise les équations de Davies et de Debye-Huckel pour calculer les coefficients d'activité. En plus de résoudre les fonctions habituelles, le logiciel permet de calculer les molalités et les activités des espèces aqueuses en fonction du titrage des phases minérales en solution et des variation de température. PHRQPITZ (Plummer et al., 1988) est une version de PHREEQE qui utilise l'équation de Pitzer pour calculer les coefficients d'activité. Son principal défaut serait le manque de coefficients pour plusieurs ions, particulièrement pour le fer et d'autres complexes. Les deux programmes sont distribués par la commission géologique des États-Unis.

WATEQ4F

Le logiciel WATEQ4F est distribué par la commission géologique des États-Unis. Sa principale caractéristique est sa base de données très étendue qui permet de faire des calculs pour des températures de 0° à 100°C. Cependant, son application est restreinte à des solutions diluées puisqu'il n'utilise que l'équation de Debye-Huckel étendue pour les calculs des coefficients.

SOLVEQ/CHILLER

Le code SOLVEQ est distribué par l'université de l'Oregon et est essentiellement conçu pour modéliser la géochimie des systèmes hydrothermaux avec des températures allant jusqu'à 350°C. Ce dernier est utilisé pour déterminer l'équilibre géochimique et est un prédécesseur à CHILLER, qui est un modèle de transfert de masse, lequel travaille avec

l'évaporation, le mélange entre fluides et les interactions entre phases minérales, gazeuses et l'eau.

Modèles de transfert de masse

EQ6

Le code EQ6 utilise les données d'entrée préparées par le code EQ3 pour définir la composition initiale de la solution et la base de données thermodynamique appropriée. Il offre ensuite la possibilité de modéliser 3 différents processus. On peut ainsi simuler un processus de titrage, c'est-à-dire simuler l'ajout d'un réactif dans une solution et suivre l'évolution des produits avec la nouvelle solution. La deuxième option représente l'ajout d'un réactif à une solution en système fermé. Finalement, il est possible de simuler un système en contact avec un réservoir gazeux, où les espèces gazeuses entrent et sortent du système pour y maintenir une fugacité constante. Les modèles de transfert de masse sont appropriés pour décrire les phénomènes de dissolution, les réactions dans les sols et les processus géochimiques dans les formations rocheuses non-saturées. L'oxygène et le gaz carbonique seraient les espèces les plus appropriées pour traiter cette option. Le code EQ6 ne permet pas de modéliser un système contenant des solides où une solution est rechargée de façon constante.

CHILLER

Le code CHILLER (Reed, 1992, Reed and Spycher, 1984, Spycher and Reed, 1988, 1990b) fut initialement conçu pour modéliser la géochimie des gîtes hydrothermaux, particulièrement en présence de phases gazeuses. Le logiciel tient compte des paramètres relatifs aux phases gazeuses : l'évaporation, l'ébullition isobarique et isothermale. Le modèle utilise l'équation de Debye-Huckel étendue pour estimer les coefficients d'activité des espèces aqueuses. Le principal désavantage du modèle réside

dans le fait que l'utilisateur doit spécifier les taux de réactions relatifs à chaque minéral ajouté au fluide.

PATHARC

Le code PATHARC (Perkins et al., 1989) est un modèle qui suit l'évolution des réactions pour des mélanges de fluide où les paramètres cinétiques et l'évaporation sont spécifiés par l'usager. Le programme prend en compte les lois cinétiques de dissolution et de précipitation. Les coefficients d'activité peuvent être calculés selon la méthode de Davies ou celle de Debye-Huckel étendue. Son utilité est réduite par le fait qu'il offre la possibilité de modéliser uniquement les processus isothermaux et qu'il n'inclut pas d'option pour les phases solides.

REACT

Ce code calcule les transfert de masse entre un fluide et un ensemble de minéraux, soit en fonction de la température ou bien de façon isothermique. L'usager peut spécifier l'évolution du système d'une condition à une autre, par exemple d'un pH=5 à un pH=6.5. Si aucune étape n'est spécifiée, le code REACT (Bethke, 1992) fonctionne comme un modèle d'équilibre thermodynamique, de façon similaire à ceux présentés dans la section précédente. Le modèle permet le mélange de fluides et les réactions tampons. Plusieurs bases de données thermodynamiques sont disponibles ; l'équation de Debye-Huckel étendue et le modèle de Pitzer. Le modèle permet finalement de suivre le fractionnement des isotopes stables durant une réaction.

STEADYQL

Le code STEADYQL (Furrer et al., 1989 ; 1990), est un modèle de transfert de masse désigné spécifiquement pour simuler les réactions chimiques à l'intérieur des différents

horizons des sols. Ce modèle prend en compte trois types de réactions : les réactions à l'équilibre (rapides), les réactions contrôlées de façon cinétique (lentes) et les réactions tampons (ajustées au modèle). Il permet également d'inclure les paramètres de dégazage, de capacité d'échange d'ions et d'absorption. L'usager a la possibilité de spécifier les réactions, les constantes d'équilibre et cinétiques, ce qui permet d'avoir une plus grande flexibilité lors d'ajout de composantes solides ou dissoutes. Comme le modèle assume que les réactions atteindront l'équilibre, ce modèle n'est par recommandé pour la modélisation de drainage minier acide (où c'est rarement le cas pour la période d'intérêt).

Modèles de transfert de masse-écoulement

REACTRAN

Ce code simule des écoulements unidimensionnels pour des solutions aqueuses passant à travers un milieu poreux réactif et prédit la distribution temporelle et spatiale des espèces aqueuses et minérales dans le système. Ce code REACTRAN (Ortoleva et al., 1987) divise les réactions chimiques en deux classes, selon leur taux de réaction. Les réactions rapides comparativement à l'incrément de temps utilisé par le logiciel pour modéliser le problème sont traitées comme des réactions à l'équilibre, alors que celles plus longues utilisent des taux de réaction spécifiques.

Les paramètres d'entrée incluent la minéralogie initiale, la chimie du fluide et le gradient de température le long de l'écoulement. L'utilisateur doit spécifier toutes les réactions possibles pour les réactions aqueuses et solides, et si possible, leur cinétique de réaction respective. Le programme débute en calculant le champ d'écoulement. Il calcule ensuite le transport des espèces aqueuses par advection, diffusion et dispersion. La quantité de matériau qui se dissout dans le fluide est également prise en compte selon les principes de dissolution inclus dans le modèle. À la fin de chaque étape, le fluide et

les phases d'équilibre sont ramenées à un équilibre interne. Toutes les phases qui ne sont pas à l'équilibre sont vérifiées pour déterminer si elles sont dissoutes ou en équilibre avec le fluide. Finalement, le modèle ajuste les vitesses d'écoulement de façon à s'adapter aux changement de porosité et de perméabilité.
Les applications de REACTRAN se résument à la modélisation de systèmes naturels ainsi qu'à l'industrie pétrolière (Haskins et al., 1989).

CIRF.A

Le code CIRF.A (Ortoleva et al., 1987) simule l'écoulement en deux dimensions à travers des milieux poreux. La banque de données du modèle inclut le modèle de Debye-Huckel pour l'activité des espèces aqueuses et complexes, les corrections pour la température et la pression et les lois cinétiques pour les phases solides. REACTRAN et CIRF.A ont été conçus pour des systèmes géochimiques qui ont des gradients transitoires causés par des fronts de réactions et pour des systèmes dont l'interaction entre l'écoulement, le transport des solutés et les réactions sont très fortes. Ces systèmes sont caractérisés par des fronts de réaction étroits et le développement de zones de faible perméabilité/porosité. Les applications de CIRF.A s'étendent à l'industrie pétrolière, entre autres pour la dolomitisation.

MPATH

MPATH simule des réactions multiples pour le transport des solutés et des réactions minérales. Il utilise le transport par advection dans un espace unidimensionnel et l'approche de l'état quasi-stationnaire pour la concentration des solutés (Lichtner, 1985). Cette dernière approximation spécifie que la dérivée partielle de la concentration d'un soluté en fonction du temps en tout point est zéro, donc que la concentration varie uniquement en fonction de la distance le long de la direction d'écoulement. MPATH utilise l'équation de Debye-Huckel pour les coefficients d'activité des espèces aqueuses.

La porosité, la perméabilité, la température et la pression du milieu sont assumées constantes.

IDREACT

Le code IDREACT (Steefel, 1993) est un modèle de transport de masse unidimensionnel pour les milieu poreux, utilisant la méthode des différences finies. Ce dernier peut modéliser à la fois des écoulements transitoires et permanent, en tenant compte des déplacements par advection, diffusion et dispersion.

FMT

Le code FMT (Fracture-Matrix Transport) (Novak, 1993) simule le transport d'advection et de diffusion en deux dimensions à travers un milieu poreux tout en tenant compte des modèles chimiques pour la précipitation et dissolution de minéraux. La méthode des différences finies est employée pour résoudre les équations de transport. FMT a été développé dans le but d'évaluer les effets de transport d'advection à travers les fractures couplés à un transport de diffusion dans la matrice. Le modèle utilise l'équation de Pitzer pour calculer les coefficients d'activité, en plus du modèle de Debye-Huckel étendu, afin de calculer les changements de composition des fluides et de densité dans les systèmes. Il permet ainsi de résoudre des problèmes ayant de grandes variations dans la densité de fluide, et prend en compte les changements de porosité et de perméabilité. FMT ne résout pas les réactions qui ne sont pas à l'état d'équilibre; toutes les phases et espèces aqueuses doivent être à l'équilibre. L'application première du modèle consiste à examiner le cheminement des polluants dans un environnement où la composition des eaux souterraines varie de diluée à très concentrée.

PHREEQC

PHREEQC (Parkhurst, 1996) est une version améliorée de PHREEQE (Parkhust et al., 1980) développé au début des années 80. En plus d'avoir les mêmes possibilités que PHREEQE, d'autres fonctionnalités ont été ajoutées tels que les modèles de diffusion de couche double et le modèle non-électrostatique (Davis et Kent, 1990) pour la modélisation des réactions de surface.

PHREEQC permet de simuler le mouvement d'une solution à travers une colonne. En spécifiant la composition initiale des espèces aqueuses, solides et gazeuses, les changements de composition induits par les différentes réactions chimiques et le transport par advection à travers la colonne peuvent être modélisés.
En plus de calculer les indices de saturation, le programme permet également de simuler le mélange de plusieurs solutions pour lesquelles les indices de saturation sont connus. Par exemple, si on a une solution (A), qui représente une eau souterraine mélangée en équilibre avec la calcite et une solution (B) d'eau de mer en équilibre composée d'ions majeurs, le logiciel calcule l'équilibre de chacune des solutions puis modélise le mélange (A) et (B) dans une proportion voulue. Le mélange est calculé pour obtenir l'équilibre avec la calcite et la dolomite. Finalement, le mélange est remis à l'équilibre avec la calcite seulement pour simuler les réactions cinétiques de la dolomite. PHREEQC permet également se simuler l'évaporation. Il peut aussi suivre l'évolution d'une réaction lorsqu'il y a ajout puis dissolution d'une phase solide à une solution. Il calcule ensuite les champs de stabilité entre chaque espèce et les intersections communes sur un diagramme de phase. La modélisation inverse est aussi possible dans PHREEQC. Elle permet de modéliser les changements chimiques qui se produisent dans la composition d'une eau qui s'écoule. Par exemple, lorsqu'on a deux analyses représentant les compositions initiales et finales d'un échantillon d'eau, on peut utiliser la fonction modélisation inverse pour calculer la quantité de minéraux et de gaz qui

entrent ou sortent de la solution pour expliquer les différences de composition initiales et finales.

MINTRAN

Le code MINTRAN (Frind et Molson, 1994) est un modèle conçu pour simuler l'effet des réactions géochimiques qui se produisent durant l'écoulement et le transport des solutés dans les eaux souterraines. MINTRAN est une combinaison de 2 modèles; le modèle numérique PLUME2D qui utilise la méthode des éléments finis, et le programme MINTEQA2. Les 2 modèles permettent de modéliser le transport en 2 dimensions des espèces aqueuses et de calculer l'équilibre géochimique entre les espèces aqueuses et les phases minérales. Un des points forts de MINTRAN est sa capacité à modéliser un écoulement ayant des propriétés initiales très hétérogènes (porosité, perméabilité, composition) avec différentes conditions frontières. Le rabattement à un puits et l'injection sont également des paramètres pouvant être pris en compte. MINTRAN (comme PHREEQC) suppose qu'il y a un équilibre géochimique entre le fluide et la roche, ce qui n'est pas toujours le cas pour les résidus miniers. MINTRAN a surtout été employé pour simuler les réactions qui se produisent dans les eaux interstitielles d'aquifères situés sous les résidus miniers.

PYROX/MINTOX

Le code PYROX (Wunderly et al., 1996) est un modèle numérique qui tient compte de la diffusion d'oxygène et de l'oxydation de la pyrite présente dans les résidus miniers. Il emploie le modèle du noyau réactif décroissant pour calculer la diffusion de l'oxygène et l'oxydation de la pyrite. Associé au modèle MINTRAN, il en résulte un modèle, MINTOX, qui permet de simuler la diffusion d'oxygène et l'oxydation de la pyrite en plus de modéliser le transport des produits d'oxydation.

Modèles de soutien

SUPCRIT92

Le code SUPCRIT92 (Johnson et al., 1992) calcule les propriétés thermodynamiques de molalités pour les gaz, espèces aqueuses et les minéraux ainsi que leurs réactions à des pressions allant jusqu'à 5 kilobars et 1000°C.

RXN

Le code RXN (Bethke, 1992) équilibre les réactions chimiques entre espèces aqueuses et complexes, phases minérales et les gaz. Il peut également calculer les constantes d'équilibre des réactions en fonction de la température.

ACT2

Le code ACT2 (Bethke, 1992) calcule et met sur graphique les log d'activité vs les log d'activité, permettant ainsi de voir la stabilité entre les différentes phases minérales et la prédominance des espèces aqueuses.

Modèles d'ingénierie

WATAIL

Le code WATAIL (Scharer et al., 1993) est un modèle spécifique pour les parcs à résidus miniers élaboré pour examiner les différentes options de réhabilitation tel que les barrières de recouvrement, en comparant les concentrations des principaux produits d'oxydation avec le temps. Les parcs à résidus peuvent être divisés en un maximum de 10 régions, chacune pouvant avoir un écoulement et une décharge pour l'eau de surface

et l'eau souterraine. La précipitation peut également être prise en compte. Les minéraux sulfureux sont la pyrite et la pyrrothite. Seuls quelques paramètres sont pris en compte (pH, Fe, Ca, SO_4^{2-}, carbonates) et quelques solides sont utilisés.

RATAP

Le code RATAP (Senes et Beak, 1986) a été élaboré spécifiquement pour les résidus miniers dans les gîtes d'uranium. Il englobe plusieurs aspects : la cinétique, qui détermine les vitesses d'oxydation biologique et chimique de la pyrite, le pH, la concentration d'oxygène et du gaz carbonique, le transport d'oxygène, l'oxydation de la pyrite, le transport de soluté et la différenciation aqueuse. La concentration d'oxygène selon la profondeur est calculée à l'aide du modèle de transport d'oxygène. La surface des résidus est divisée en 20 bandes verticales de teneur variable en humidité et en pyrite. L'oxydation de la pyrite dans chaque bande est calculée en fonction de la concentration d'oxygène. Enfin, on utilise le transport des solutés et les modèles de différenciation aqueuse de diverses espèces dissoutes, du pH de l'eau interstitielle des résidus et du flux des acides quittant les résidus.

ACIDROCK

Ce modèle a été conçu pour évaluer le drainage minier acide dans les résidus miniers et pour examiner différentes options de désaffectation de sites contaminés (Scharer et al., 1994). Le programme se base sur le modèle RATAP spécifiquement conçu pour la prévision de génération d'acide. Dans le cas d'ACIDROCK, les paramètres de transport d'oxygène et de soluté ont été remplacés afin d'illustrer la différence en ce qui concerne les environnements chimiques et physiques entre les amas de roches stériles et les résidus miniers. La formulation des équations chimiques utilisées dans RATAP est la même que pour ACIDROCK. On a ajouté les éléments uranium et radium ainsi que

l'adsorption à la surface des minéraux. ACIDROCK utilise les lois cinétiques de la dissolution des sulfures.

ACIDROCK peut simuler les réactions dans des amas de roche stérile comme un rectangle de dimensions spécifiques, divisé en 20 couches, liées les unes avec les autres. L'eau s'écoule vers le bas et sort par suintement à la base. On peut y inclure les effets de barrière de recouvrement et les variations d'infiltration.

Q-ROCK

Le code Q-ROCK est conçu spécifiquement pour examiner les problèmes de DMA. La principale caractéristique du modèle consiste à intégrer les données de terrains et de laboratoire dans un ensemble qui pourra être utilisé comme composante d'un modèle de prédiction. Q-ROCK (Chapman et al, 1994) considère l'amas de stériles dans les trois dimensions. La prévision de la quantité de contaminants largués se fait en utilisant des équations empiriques, utilisant les données obtenues sur des colonnes en laboratoire. Le modèle assume un écoulement en régime permanent. Le transport d'oxygène à travers les résidus peut se fait par dispersion ou diffusion.

Q-ROCK est une version abrégée d'un modèle d'ingénierie et ne peut être utilisé que pour déterminer certaines contraintes propres au problème de DMA. La principale limitation de ce modèle réside dans le fait qu'il assume que les observations sur le terrain et les résultats de laboratoire peuvent être extrapolés à long terme sans avoir recours aux lois de la thermodynamique.

FIDELHM

Le code FIDELHM (Pantelis, 1993) est un modèle développé pour simuler le lessivage en deux-dimensions dans les amas de stériles, où ceux-ci sont modélisés en trois systèmes de phase : un milieu rigide et poreux, l'eau et la phase gazeuse. Il n'y a qu'un seul composé dissous dans l'eau, le produit du solide réagissant avec l'oxygène. Le

résultat final donne les valeurs spatiales décrivant la densité de l'oxygène dans la phase gazeuse, la quantité de réactif (la densité du soufre), la température, la pression d'air ainsi que les flux d'air verticaux et horizontaux sortant et entrant des stériles. Le modèle adopte plusieurs hypothèses simplificatrices; par exemple, il considère uniquement l'oxygène dans la phase gazeuse et la décrit comme fraction molaire. Le réactif en phase solide est le soufre et est présenté en fraction molaire, le taux de réaction du solide est décrit par le modèle à noyau réactif décroissant. Finalement, le modèle assume un milieu non saturé dans les stériles mais saturé à la base. FIDELHM ne peut être considéré comme un modèle géochimique, cependant, on peut l'utiliser pour évaluer certains paramètres physiques tels la consommation en oxygène, qui peut ensuite être utilisée comme paramètre d'entrée dans d'autres modèles.

ANNEXE II

Résultats des essais de calibration des sondes RDT

La réflectométrie dans le domaine du temps (RDT) permet de mesurer la teneur en eau volumique directement dans un milieu poreux. Elle est décrite dans (Topp et al., 1980) et Aachib (1997). Cette méthode consiste essentiellement en la détermination de la constante diélectrique apparente (κ_a,) pour un matériau poreux, d'après la mesure de propagation (v) des ondes électromagnétiques le long de tiges parallèles (guide d'onde) placées dans le matériau.

Les particules solides du milieu poreux et l'air interstitiel ont un effet sur la vitesse de propagation. La constante diélectrique varie de 3 à 7 pour les solides, est égale à 1 dans l'air, et varie entre 79 et 82 dans l'eau. Elle gouverne donc la vitesse de propagation (Topp, 1987); la constante diélectrique du sol est entièrement attribuée à la présence d'eau.

Le système utilisé dans les colonnes est le *Soilmoisture Trase 6050X1*. Ce système permet un traitement automatique du signal et la détermination de la teneur en eau, à partir de la valeur mesurée de la constante diélectrique, avec une précision de ± 2 %. Il permet également une acquisition automatique de données de plusieurs sondes et leur transfert sur imprimante ou ordinateur (Aachib, 1997).

La figure AII.1 montre les résultats de calibration pour le sable et pour les matériaux constituants la couche capillaire. Leurs porosités respectives lors de la calibration étaient de 0,36 et 0,45. La calibration des sondes pour le résidu Manitou n'a pas été possible puisque la haute teneur en fer du résidu influence la réponse de la sonde.

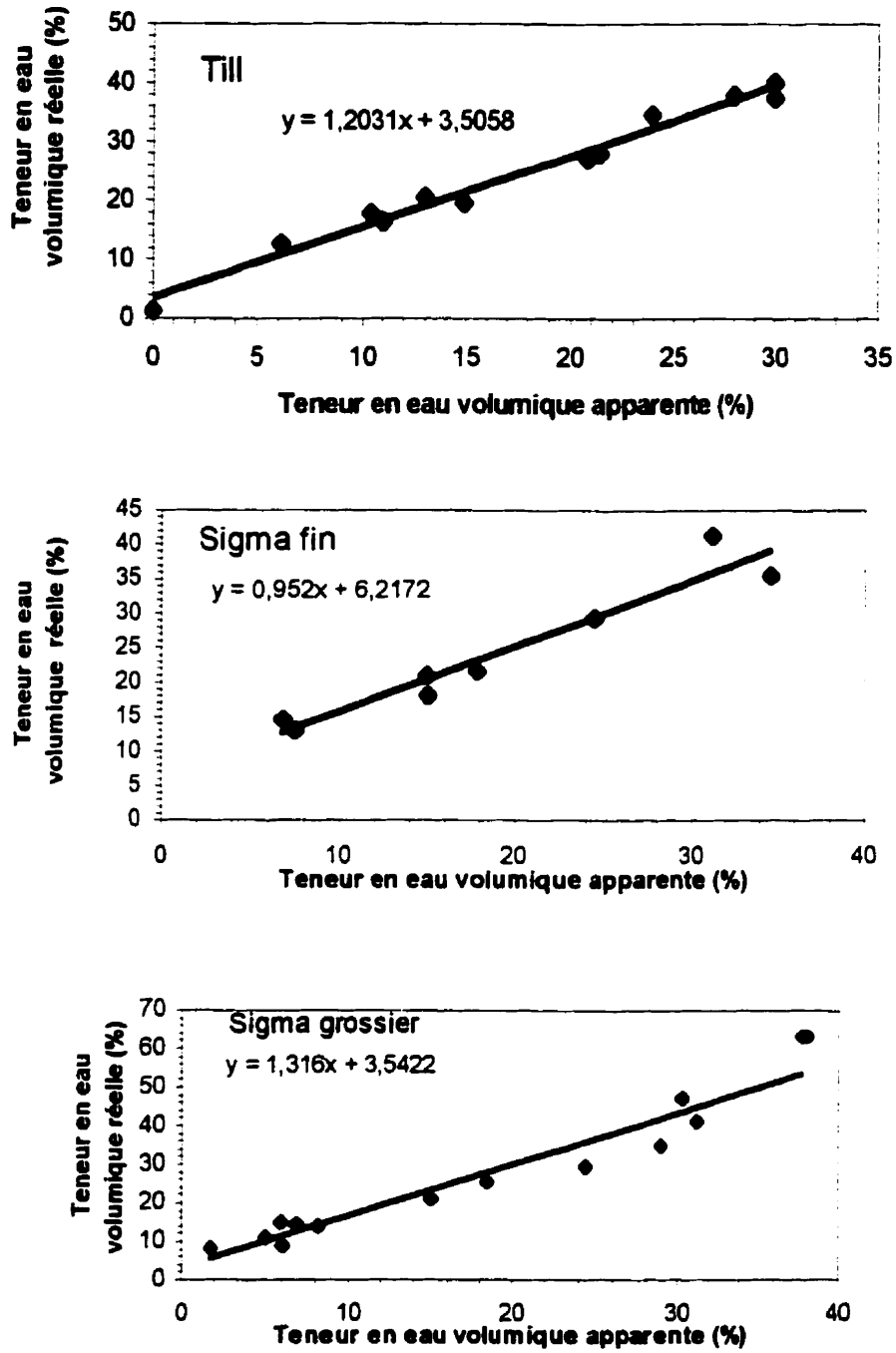
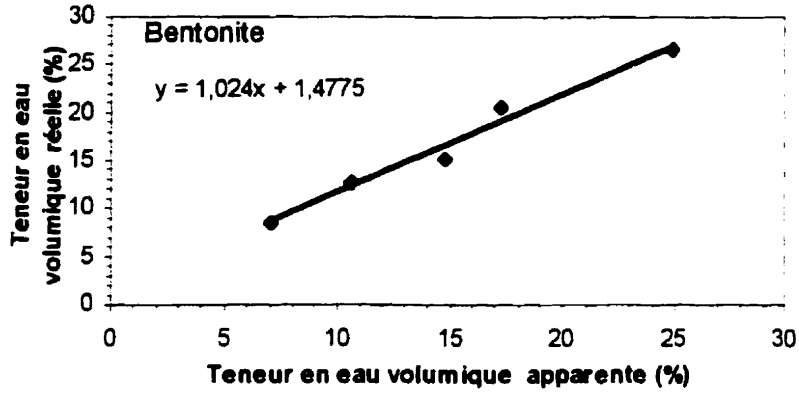


Figure AII.1 : Résultats des essais de calibration de la sonde RDT pour les différents matériaux utilisés dans les colonnes.



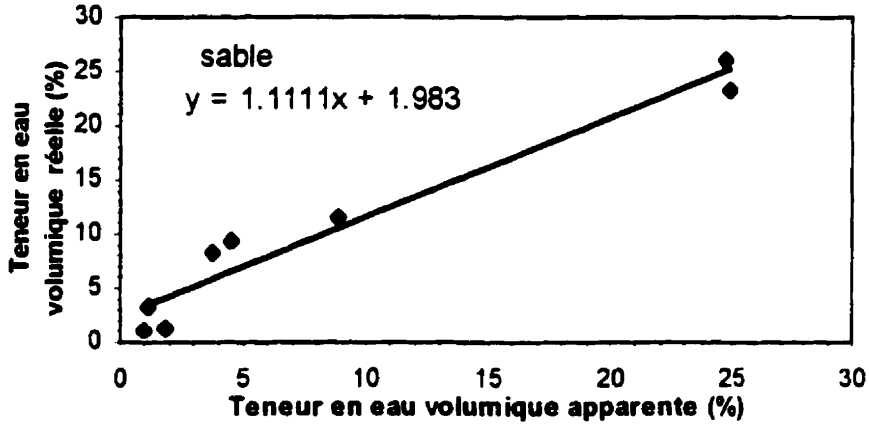


Figure AII.1 (suite et fin): Résultats des essais de calibration de la sonde RDT pour les différents matériaux utilisés dans les colonnes.

ANNEXE III

Analyses par DRX et à la microsonde électronique (spectres EDS)

Les pages qui suivent montrent les résultats des analyses qualitatives et quantitatives à la microsonde qui ont permis de détecter la présence de l'hexahydrite dans les colonnes 1, 2 et 8.

Les premiers tableaux de l'annexe III résultent de l'interprétation d'un diffractogramme obtenu par diffraction des rayons-X (DRX) sur le précipité dérivé de la solution 1-C7-4. Les données sont exprimées en valeurs d'angles 2-thêta qui sont mesurés sur le diffractogramme. Ces valeurs ont été utilisées avec le logiciel MICROID qui contient une base de données cristallographiques et qui permet d'identifier les minéraux diffractés en les comparant avec des diffractogrammes de référence.

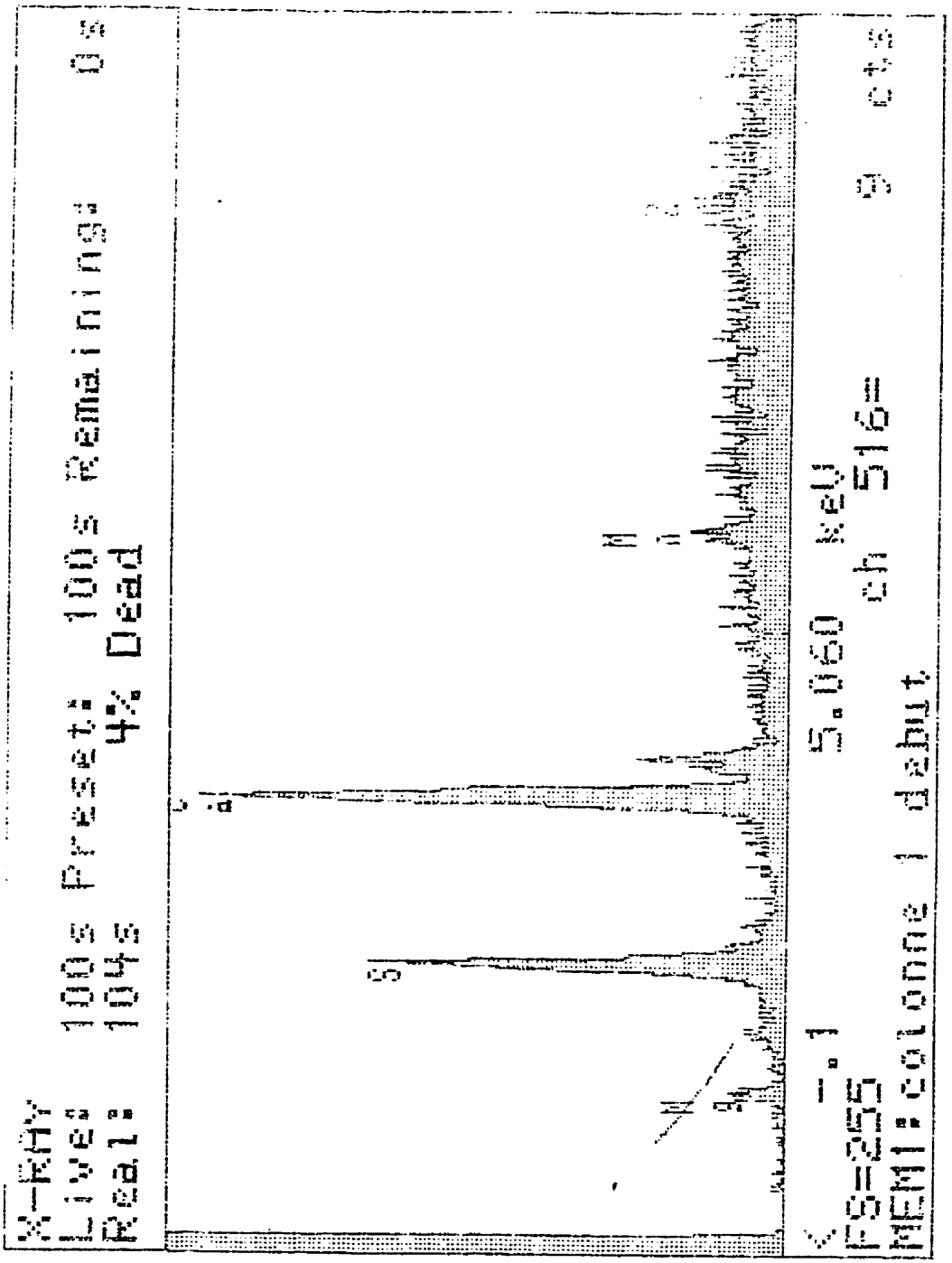
precipite jaune C:\MDI\man1c74.dsp :
No. Matching Lines = 3

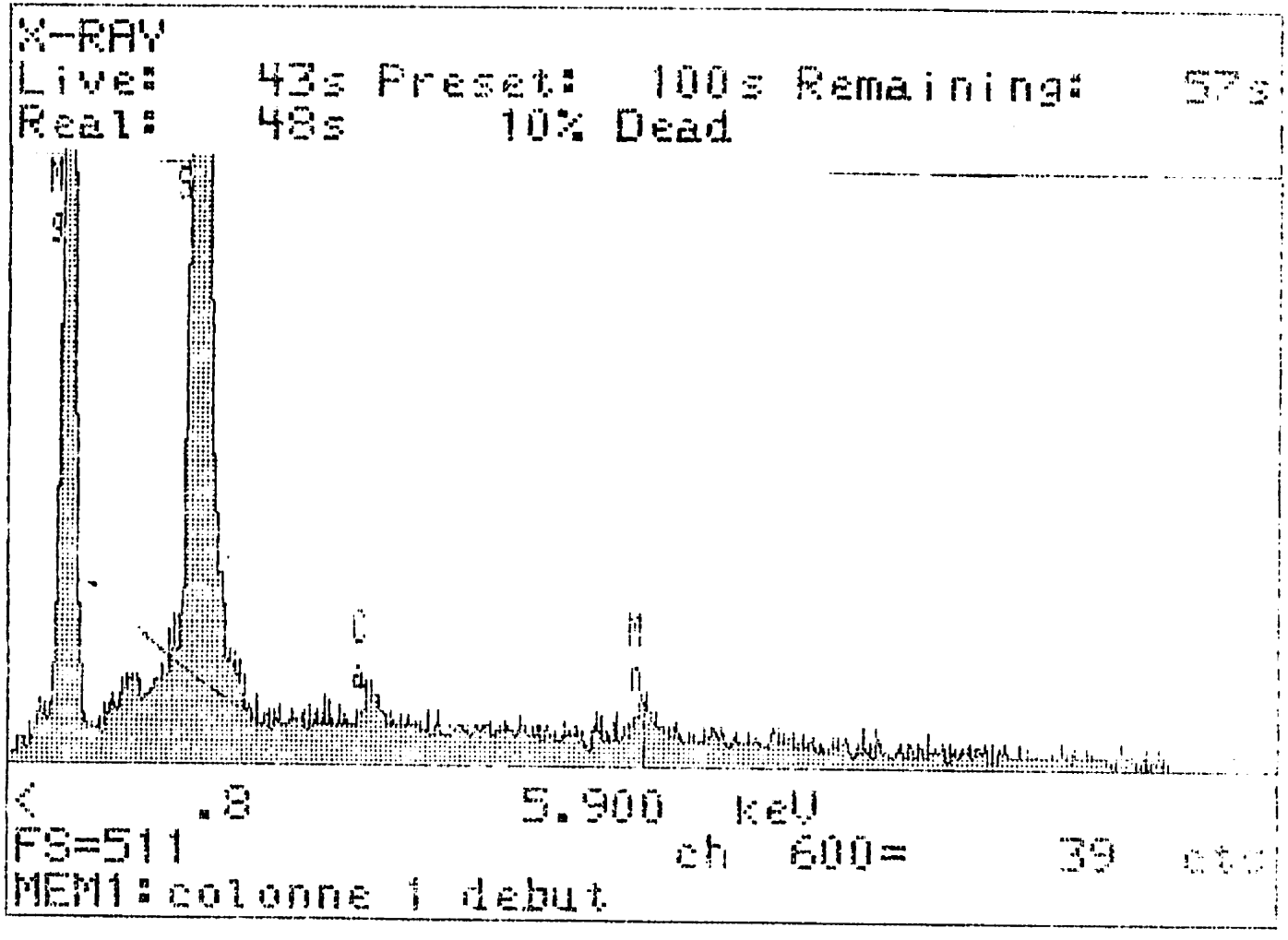
man1c74		33- 311 CaSO4!2H2O Gypsum, syn		24- 719 MgSO4!6H2O Hexahydrite,		28- 496 Fe2(SO4)3!11 Quenstedtite	
11.49	100	11.59	100				
13.79	3					13.89	8
14.19	3					14.04	16
15.09	5			15.26	8	15.17	66
15.69	3			15.87	4	15.70	45
16.09	5			16.25	50	16.48	26
17.49	10			17.37	45	17.45	51
17.89	10						
18.38	3			18.16	30	18.50	16
18.98	3						
19.98	10			20.21	100	19.80	33
20.58	90	20.72	100				
21.88	10			21.98	45	22.15	9
22.48	10			22.82	10	22.84	23
23.28	50	23.40	17			23.62	14
24.28	5			24.64	20		
25.58	5			25.73	14	25.61	18
26.78	5					26.63	8
27.28	5			27.06	4	27.28	17
28.18	5	28.11	4	27.88	16	28.28	14
28.98	95	29.11	75	28.79	4	28.96	12
MATCHING		LINES					
		11.59	100	15.26	8	13.89	8
		20.72	100	15.87	4	14.04	16
		23.40	17	16.25	50	14.74	21
		28.11	4	17.37	45	15.17	66
		29.11	75	18.16	30	15.70	45
				20.21	100	16.48	26
				21.98	45	17.09	9
				22.82	10	17.45	51
				24.64	20	18.28	8
				25.73	14	18.50	16
				27.06	4	19.80	33
				27.88	16	21.61	100
				28.79	4	22.15	9
						22.53	9
						22.84	23
						23.25	54
						23.62	14
						25.22	14

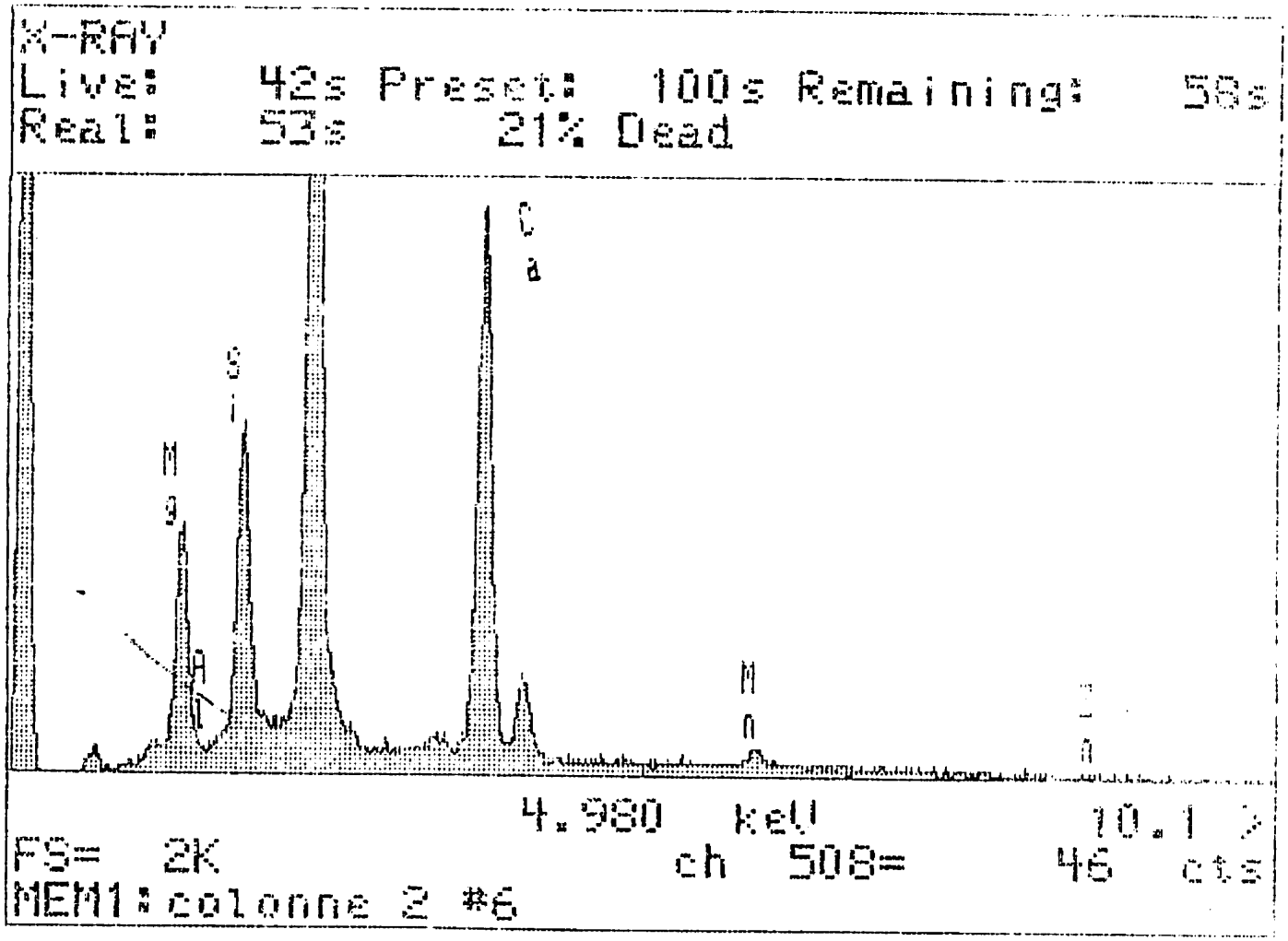
Keyboard Input C:\MDI\amjc2pre.dsp
No. Matching Lines = 3

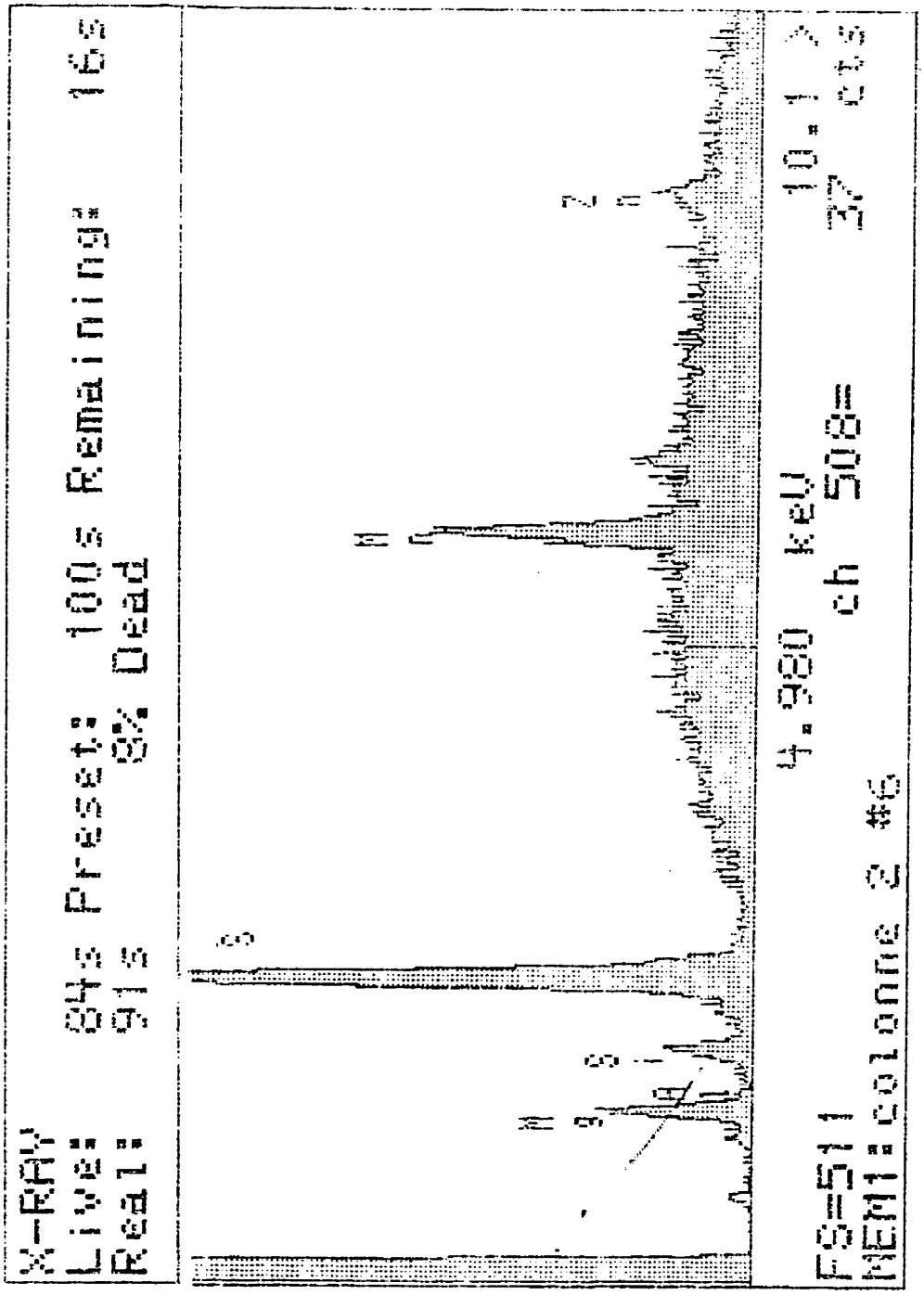
amjc2pre		11- 293 CaPO3(OH)!2H Brushite		33- 311 CaSO4!2H2O Gypsum, syn		16- 165 Na3SO4(F,Cl) Schairerite	
11.49	90	11.60	100	11.59	100		
14.59	45						
16.42	70						
19.58	25						
20.58	60			20.72	100		
20.88	100	20.79	2				
23.28	45	23.39	30	23.40	17		
23.58	15					23.45	70
25.58	20					25.28	80
25.78	20						
26.78	5						
27.88	8			28.11	4		
28.93	50	29.16	8	29.11	75	28.97	5
29.88	30					29.66	60
30.87	40			31.10	45	30.70	5
31.67	5	31.94	1			31.48	10
32.42	30					32.41	100
33.27	45			33.34	35		
33.57	45	33.54	1			33.54	5
34.37	5			34.51	6		
35.17	5	35.45	6				
35.87	5					35.74	5
36.07	5	36.34	1	35.97	11		
37.57	10			37.34	4	37.60	10
39.77	10	39.67	1				
40.47	15						
40.77	15			40.62	15	40.80	20
42.16	10	41.99	1				
42.66	5						
42.86	10	43.04	1				
44.16	5			44.19	6	44.23	20
44.96	5	45.07	2				
46.26	5			46.21	3		
47.86	10	47.83	10	47.84	16	48.02	20
48.36	5			48.39	12		
48.86	5	48.93	1	48.79	3	48.62	10
50.16	5	50.08	1	50.32	13		
50.56	5	50.67	1	50.69	6	50.76	5
52.55	5						
56.15	5	56.40	1			56.29	20

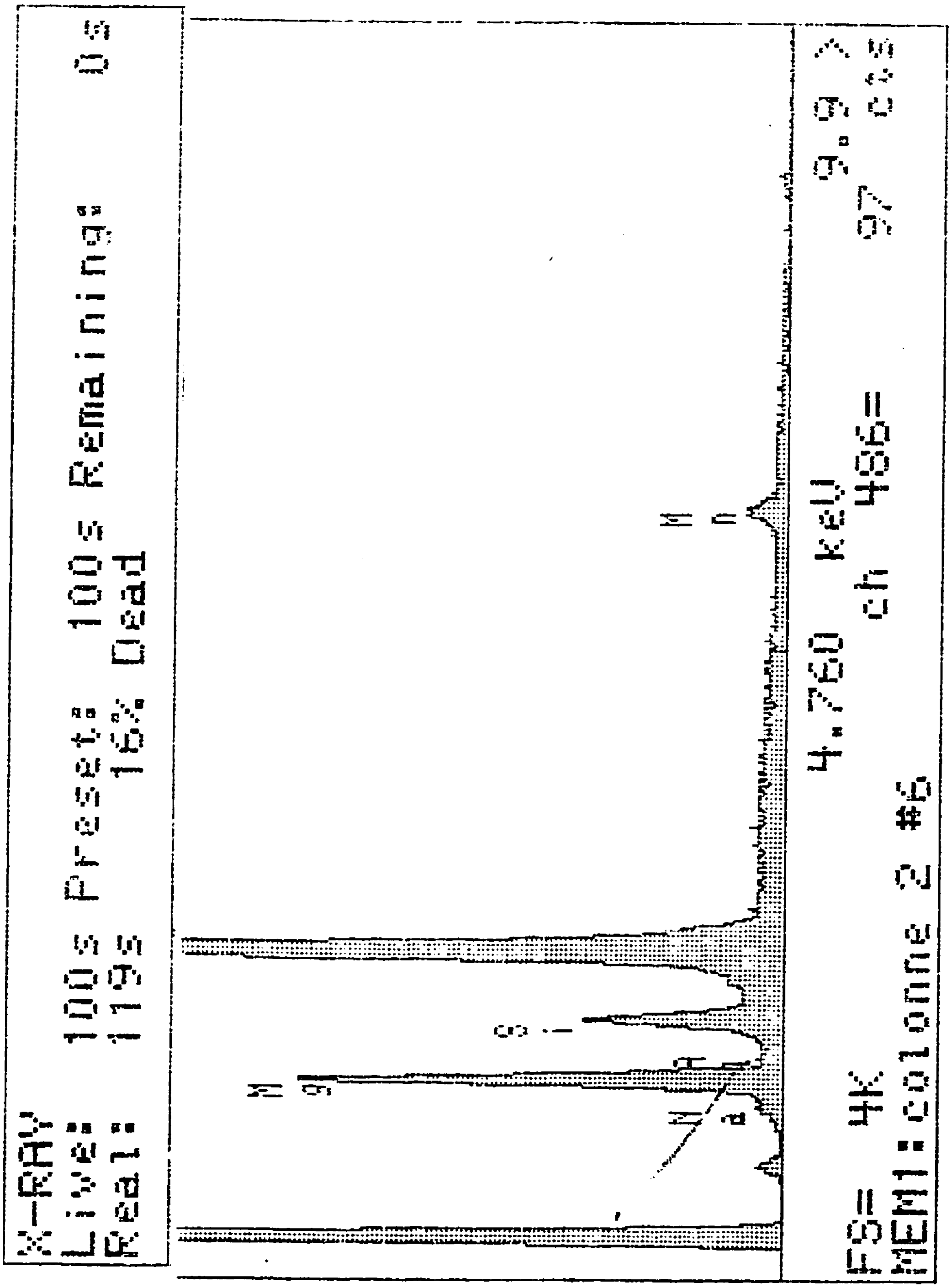
amjc2pre	11- 293 CaPO3(OH)!2H Brushite		33- 311 CaSO4!2H2O Gypsum, syn		16- 165 Na3SO4(F,Cl) Schairerite	
MATCHING LINES						
	11.60	100	11.59	100	23.45	70
	20.79	2	20.72	100	25.28	80
	23.39	30	23.40	17	28.97	5
	29.16	8	28.11	4	29.66	60
	31.94	1	29.11	75	30.70	5
	33.54	1	31.10	45	31.48	10
	35.45	6	33.34	35	32.41	100
	36.34	1	34.51	6	33.54	5
	39.67	1	35.97	11	35.74	5
	41.99	1	37.34	4	37.28	20
	43.04	1	40.62	15	37.60	10
	45.07	2	44.19	6	40.80	20
	47.83	10	46.21	3	44.23	20
	48.93	1	47.84	16	48.02	20
	50.08	1	48.39	12	48.62	10
	50.67	1	48.79	3	50.76	5
	56.40	1	50.32	13	56.29	20
			50.69	6		
UNACCOUNTED LINES						
	30.48	1	32.07	10	9.20	5
	31.25	1	36.62	6	15.34	5
	34.06	1	43.34	25	17.24	5
	41.58	1	43.60	15	19.98	20
	43.25	1	45.50	4	22.96	5
	44.60	1	51.15	9	24.03	10
	45.79	1	51.33	12	27.34	5
	46.79	1	54.42	3	29.36	10
	51.28	1	55.15	6	34.74	60
	53.55	1	55.82	4	39.31	10
	56.78	1	56.75	9	41.58	10
	57.17	1	58.17	4	43.47	5
	57.95	1	63.73	3	45.77	5
	59.60	1	64.72	5	46.81	20
	60.46	1	64.91	3	49.33	5
	60.90	1	65.30	2	51.91	70
	63.69	1	65.82	3	53.01	5
	68.42	1	68.67	5	54.44	5
	70.18	1	71.02	4	55.04	5
	70.78	1	71.19	4	59.51	5


X-RAY
Live: 100s Preset: 100s Remaining: 0s
Real: 104s 4% Dead
< -.1 5.060 keV
FS=255 ch 516= 9 cts
MEM1:colonne 1 debut


X-RAY
Live: 43s Preset: 100s Remaining: 57s
Real: 48s 10% Dead
C
N
< .8 5.900 keV
FS=511 ch 600= 39 cts
MEM1: colonne 1 debut


X-RAY
Live: 42s Preset: 100s Remaining: 58s
Real: 53s 21% Dead
Ca
Mn
4.980 keV
FS= 2K
ch 508= 46 cts
MEM1:colonne 2 #6


X-RAY
Live: 84s Preset: 100s Remaining: 16s
Real: 91s 8% Dead
4.980 keV
ch 508=
10.1 >
37 cts
FS=511
MEM1:colonne 2 #6


X-RAY
Live: 100s Preset: 100s Remaining: 0s
Real: 119s 16% Dead
4.760 keV 9.9 >
FS= 4K ch 486= 97 cts
MEM1: colonne 2 #6

ANNEXE IV

Données expérimentales

La disquette qui accompagne ce mémoire contient toutes les données des essais en colonne. Les données sont enregistrées avec l'extension « .xls ». Elles peuvent être importées dans le logiciel Excel version 97. La disquette contient les fichiers suivants :

DÉMONTAGE DES COLONNES (dossier « démontage »

Comprend les données relatives au démontage des colonnes. Les fichiers portent le nom des colonnes :

Colonne 1

Colonne 2

Colonne 3

Colonne 4

Colonne 5

Colonne 8

Colonne 9

LIXIVIAT RECUEILLI (fichier « lixiviat »)

Un seul fichier qui comprend les données physico-chimiques de chacune des colonnes. Les feuilles portent le nom de la colonne :

Colonne 1

Colonne 2

Colonne 3

Colonne 4

Colonne 5

Colonne 6

Colonne 7

Colonne 8

Colonne 9

Une disquette accompagne ce mémoire de maîtrise.

Toute personne intéressée à se la procurer doit contacter :

École Polytechnique de Montréal

Service de fourniture de documents

B.P. 6079, Succursale Centre-Ville

Montréal, Québec H3C 3A7

Canada

Tél. : (514) 340-4846
Télécopieur : (514) 340-4026